



Université  
de Toulouse

# THÈSE

En vue de l'obtention du

## DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par : *l'Université Toulouse 3 Paul Sabatier (UT3 Paul Sabatier)*

---

---

Présentée et soutenue le 19/09/2014 par :

**EMERIC HACHE**

---

**Apport de la bande de Chappuis pour la mesure de l'ozone  
depuis un satellite géostationnaire pour la surveillance de la  
qualité de l'air**

---

---

### JURY

JEAN-MARIE FLAUD  
SÉBASTIEN PAYAN  
VINCENT-HENRI PEUCH  
WILLIAM LAHOZ  
PHILIPPE RICAUD  
LAAZIZ EL AMRAOUI  
JEAN-LUC ATTIE  
CYRILLE TOURNEUR

Président du Jury  
Rapporteur  
Examineur  
Examineur  
Examineur  
Examineur  
Directeur de thèse  
Co-Directeur de thèse

---

**École doctorale et spécialité :**

*SDU2E : Océan, Atmosphère et Surfaces Continentales*

**Unité de Recherche :**

*Laboratoire d'Aérodynamique (UMR 5560) et CNRM-GAME Météo-France (UMR 3589)*

**Directeur(s) de Thèse :**

*Jean-Luc ATTIE et Cyrille TOURNEUR*

**Rapporteurs :**

*Jean-Marie FLAUD et Sébastien PAYAN*



---

## Résumé

La qualité de l'air (QA) concerne la composition atmosphérique de la basse troposphère (et plus particulièrement dans la Couche Limite Atmosphérique -CLA-, entre la surface et 1 km d'altitude) qui a un impact direct sur les activités et la santé humaines. Elle dépend en particulier des processus d'émissions, de chimie, de transport atmosphérique ou encore de turbulence dans la CLA. La variabilité temporelle et spatiale de la QA sont respectivement de l'ordre de l'heure et de la dizaine de kilomètres. La QA est à ce titre difficile à modéliser et surtout à prévoir. Il est donc nécessaire de surveiller les espèces clés de la QA que sont par exemple l'ozone, les oxydes d'azote, les particules fines ou le monoxyde de carbone. Dans cette thèse, nous nous intéressons en particulier aux mesures d'ozone depuis un satellite géostationnaire à partir d'un instrument simulé qui vise dans l'infrarouge thermique (TIR) et le visible (VIS). L'instrument simulé s'appuie sur le concept MAGEAQ (Monitoring the Atmosphere from Geostationary orbit for European Air Quality) présenté lors de l'appel d'offre Earth Explorer-8 de l'ESA en 2010. Une première étude dans cette thèse porte sur la valeur ajoutée de la composante VIS de l'instrument par rapport à sa composante TIR seule. La CLA est particulièrement étudiée pendant la journée pour comprendre l'apport du VIS dans la mesure de l'ozone, pour la QA, par l'instrument simulé. Une deuxième étude présente une expérience de simulation de système d'observation, dans laquelle les observations simulées de l'instrument sont assimilées dans le modèle de chimie transport MOCAGE pour y quantifier la valeur ajoutée par rapport aux observations existantes (essentiellement des mesures de stations sol) dans la détermination de l'ozone dans la CLA.

**Mots-clés :** Qualité de l'air, Géostationnaire, Modélisation, Bande de Chappuis, Ozone.

## Summary

Air quality (AQ) concerns the atmospheric composition of the lowermost troposphere between the ground and 1 km heights. Air quality has a strong impact on human health and human activities; it depends on chemical and transport processes and emissions. The temporal and spatial variability of AQ is  $\sim 1$  hour and  $\sim 10$  km. It is thus difficult to model and forecast AQ. It is therefore necessary to monitor key species for AQ, these include ozone, carbon monoxide, nitrogen oxides and particulate matter. This thesis focus on ozone measurement from a geostationary satellite with a simulated instrument that couples a thermal infrared band (TIR) with a visible band (VIS). The simulated instrument comes from the MAGEAQ (Monitoring the Atmosphere from Geostationary orbit for European Air Quality) concept proposed during the ESA EE-8 call in 2010. This thesis study the added value of the visible band of the instrument compared to the thermal infrared band on its own. We focus on the lowermost troposphere (between the ground and 1 km heights) during daytime to understand the visible contribution of the simulated instrument in the ozone measurement for AQ purpose. Also, we study the results of an Observing System Simulation Experiments (OSSEs), which use the assimilation of the simulated observations into the chemistry transport model MOCAGE to quantify their impact on the Global Observing System (GOS), for ozone determination for air quality purpose.

**Keywords :** Air quality, Geostationary, Modelisation, Chappuis band, Ozone.



---

## Remerciements

Je tiens, à travers ces quelques lignes, à remercier toutes les personnes qui durant mes 3 années de thèse auront su m'apporter leur soutien, leur aide et leur amitié. Ces personnes qui ont énormément compté dans mon travail et qui ont permis de faire de ma thèse une expérience enrichissante et agréable.

Ainsi, je tiens tout d'abord à remercier les membres de mon jury, pour leurs investissements autour de mes travaux de thèse : merci à Sébastien Payan et à Jean-Marie Flaud pour avoir accepté d'être les rapporteurs de mon travail de thèse, pour avoir accepté de relire et corriger mon manuscrit en plein mois d'Août, et pour avoir affronté une grève d'Air France pour venir à ma soutenance. Merci à William Lahoz, Vincent-Henri Peuch, Philippe Ricaud et Laaziz El Amraoui pour m'avoir donné beaucoup de votre temps pour étudier/corriger/améliorer mes travaux, votre aide m'aura été précieuse. Je tiens à remercier spécialement William pour avoir toujours su apporter de la bonne humeur lors de ses séjours en France ! Enfin, un grand Merci à Cyrille Tourneur mon co-directeur de thèse et Jean-Luc Attié mon directeur de thèse, pour m'avoir permis de réaliser cette thèse, pour m'avoir encadré durant ces 3 années, et m'avoir toujours soutenu. Je remercie tout spécialement Jean-Luc pour avoir su être toujours agréable et pour m'avoir prêté une oreille attentive lorsque cela était nécessaire, durant ma thèse j'ai énormément progressé que ce soit sur le plan professionnel ou personnel et c'est grâce à toi !

Je tiens également à remercier toutes les personnes qui m'ont été proches à Météo-France durant ces 3 années, à savoir l'équipe CARMA et CAIAC entre 2011 et 2014 ! Merci à la fine équipe de thésard/post-doctorants, et bien entendu merci au bureau 147 pour avoir réussi à me supporter tout ce temps dans la bonne humeur ! :-D

Sans oublier, merci à MLM qui a su gérer d'une main de maître toute la partie administrative de ma thèse !

Enfin, mes derniers remerciements iront tout simplement à mes amis et à ma famille, qui même si c'est parfois de loin, m'ont toujours soutenu et m'ont permis d'arriver là où j'en suis aujourd'hui ! En particulier, merci à Aude...



# Table des matières

|   |           |
|---|-----------|
| <b>Table des figures</b>  | <b>11</b> |
| <b>Liste des tableaux</b>   | <b>19</b> |
| <b>Introduction Générale</b>  | <b>21</b> |
| <b>1 La qualité de l'air et sa mesure</b>                                       | <b>27</b> |
| 1.1 Introduction . . . . .  | 28        |
| 1.2 L'atmosphère terrestre . . . . .  | 30        |
| 1.2.1 Structure verticale de l'atmosphère . . . . .                             | 30        |
| 1.2.1.1 L'exosphère . . . . .   | 30        |
| 1.2.1.2 La thermosphère . . . . .   | 31        |
| 1.2.1.3 La mésosphère . . . . .   | 32        |
| 1.2.1.4 La stratosphère . . . . .   | 32        |
| 1.2.1.5 La troposphère . . . . .  | 33        |
| 1.2.1.6 La couche limite atmosphérique . . . . .                                | 33        |
| 1.2.2 Les processus influençant la qualité de l'air . . . . .                   | 34        |
| 1.2.2.1 Émissions . . . . .   | 34        |
| 1.2.2.2 Réactions chimiques . . . . .   | 36        |
| 1.2.2.3 Transport . . . . .   | 36        |
| 1.2.2.4 Dépôt . . . . .   | 37        |
| 1.2.3 Le lien entre la qualité de l'air et les conditions climatiques . . . . . | 37        |
| 1.3 Les polluants atmosphériques . . . . .                                      | 40        |
| 1.3.1 Les polluants issus de sources primaires . . . . .                        | 40        |
| 1.3.1.1 Le dioxyde de soufre . . . . .  | 40        |
| 1.3.1.2 Les oxydes d'azote . . . . .  | 40        |
| 1.3.1.3 Le monoxyde de carbone . . . . .  | 41        |
| 1.3.1.4 Les composés organiques volatils . . . . .                              | 41        |
| 1.3.2 Les polluants issus de sources secondaires . . . . .                      | 41        |
| 1.3.3 L'ozone . . . . .   | 43        |
| 1.3.3.1 L'ozone stratosphérique . . . . .                                       | 44        |
| 1.3.3.2 L'ozone troposphérique . . . . .  | 44        |
| 1.3.3.3 L'ozone dans la couche limite atmosphérique . . . . .                   | 45        |
| 1.3.4 Les particules fines . . . . .  | 46        |
| 1.4 Normes et seuils de la qualité de l'air en Europe . . . . .                 | 49        |

|          |  |           |
|----------|--|-----------|
| 1.4.1    | Les normes européennes . . . . .   | 49        |
| 1.4.2    | Les organismes de régulation . . . . .   | 50        |
| 1.4.3    | Projet européen pour la qualité de l'air : Copernicus . . . . .                        | 51        |
| 1.5      | La mesure de la qualité de l'air et en particulier de l'ozone . . . . .                | 53        |
| 1.5.1    | Les mesures in-situ . . . . .  | 53        |
| 1.5.1.1  | Les différents capteurs . . . . .  | 53        |
| 1.5.1.2  | Les stations sols . . . . .  | 54        |
| 1.5.1.3  | Les mesures aéroportées (ballons, avions) . . . . .                                    | 54        |
| 1.5.2    | Les mesures par télédétection . . . . .  | 57        |
| 1.5.2.1  | Les spectromètres . . . . .  | 58        |
| 1.5.2.2  | Télédétection à partir des satellites . . . . .  | 60        |
| 1.5.3    | État de l'art des satellites mesurant l'ozone troposphérique . . . . .                 | 62        |
| 1.5.3.1  | Les satellites en opération . . . . .  | 63        |
| 1.5.3.2  | Les satellites géostationnaires en préparation pour la QA . . . . .                    | 64        |
| 1.5.3.3  | MAGEAQ . . . . .   | 65        |
| 1.6      | Conclusions du chapitre . . . . .  | 68        |
| <b>2</b> | <b>Simulateur d'observations synthétiques</b>  | <b>71</b> |
| 2.1      | Introduction . . . . .   | 72        |
| 2.1.1    | Description du simulateur d'observations synthétiques . . . . .                        | 74        |
| 2.2      | Simulation de l'atmosphère . . . . .   | 75        |
| 2.2.1    | Généralités sur les modèles de chimie transport . . . . .                              | 75        |
| 2.2.2    | Le modèle MOCAGE . . . . .   | 76        |
| 2.2.3    | Simulation de l'atmosphère avec MOCAGE . . . . .                                       | 77        |
| 2.3      | Simulation du rayonnement . . . . .  | 80        |
| 2.3.1    | Généralités sur les modèles de transfert radiatif . . . . .                            | 80        |
| 2.3.2    | Le modèle de transfert radiatif KOPRA . . . . .  | 83        |
| 2.3.3    | Le modèle de transfert radiatif VLIDORT . . . . .                                      | 84        |
| 2.3.4    | Modélisation de l'albédo spectral dans VLIDORT . . . . .                               | 84        |
| 2.3.5    | Simulation du rayonnement en sortie de l'atmosphère avec KOPRA<br>et VLIDORT . . . . . | 86        |
| 2.4      | Le modèle instrumental . . . . .   | 89        |
| 2.4.1    | Caractéristiques du spectromètre infrarouge thermique . . . . .                        | 91        |
| 2.4.2    | Caractéristiques du spectromètre visible . . . . .                                     | 93        |
| 2.5      | L'inversion de données . . . . .   | 94        |
| 2.5.1    | Généralités sur l'inversion de données . . . . .                                       | 94        |
| 2.5.1.1  | Le modèle direct . . . . .   | 94        |
| 2.5.1.2  | Le modèle inverse . . . . .  | 95        |
| 2.5.1.3  | L'estimation des erreurs . . . . .   | 96        |
| 2.5.2    | Mise en place de l'algorithme d'inversion de données . . . . .                         | 97        |
| 2.5.3    | Vecteur d'état et information a priori . . . . .                                       | 98        |
| 2.5.4    | La chaîne d'inversion de données . . . . .   | 101       |
| 2.6      | Étude de l'impact de la polarisation sur les résultats de l'inversion de données       | 103       |
| 2.7      | Conclusions du chapitre . . . . .  | 107       |

|          |  |            |
|----------|--|------------|
| <b>3</b> | <b>Intercomparaison entre GEO TIR et GEO TIR+VIS</b>   | <b>111</b> |
| 3.1      | Résumé long de l'article 1 . . . . .   | 112        |
| 3.2      | Article 1 - The added value of a visible channel to a geostationary thermal infrared instrument to monitor ozone for air quality . . . . . | 115        |
| 3.2.1    | Introduction . . . . .   | 115        |
| 3.2.2    | Simulated observations and reference state . . . . .   | 118        |
| 3.2.2.1  | Chemical transport model . . . . .   | 118        |
| 3.2.2.2  | Radiative transfer models . . . . .  | 118        |
| 3.2.2.3  | Inverse method . . . . .   | 119        |
| 3.2.2.4  | A priori information . . . . .   | 120        |
| 3.2.2.5  | Instrument model . . . . .   | 121        |
| 3.2.3    | Results : intercomparaison between GEO TIR and GEO TIR+VIS . . . . .   | 125        |
| 3.2.3.1  | Surface ozone sensitivity . . . . .  | 125        |
| 3.2.3.2  | Ozone retrievals over a week period . . . . .  | 129        |
| 3.2.3.3  | Air quality monitoring . . . . .   | 134        |
| 3.2.4    | Conclusions . . . . .  | 137        |
| 3.3      | Conclusions du chapitre . . . . .  | 139        |
| <b>4</b> | <b>Assimilation de données et expériences de systèmes d'observations simulés</b>   | <b>143</b> |
| 4.1      | Introduction . . . . .   | 144        |
| 4.2      | L'Assimilation de données . . . . .  | 146        |
| 4.2.1    | Principes . . . . .  | 146        |
| 4.2.2    | MOCAGE-PALM . . . . .  | 150        |
| 4.2.3    | Expériences de systèmes d'observations simulés . . . . .   | 151        |
| 4.3      | OSSE : L'apport de GEO TIR+VIS comparé aux stations sol pour la mesure de l'ozone pour la qualité de l'air . . . . .                       | 153        |
| 4.3.1    | Description de l'OSSE . . . . .  | 153        |
| 4.3.2    | Caractérisation de l'assimilation et des incréments d'analyse . . . . .  | 158        |
| 4.3.3    | Résultats de l'assimilation de données : Évaluation statistique des analyses de l'ozone . . . . .  | 159        |
| 4.3.3.1  | Évaluation statistique des analyses de l'ozone à la surface . . . . .  | 159        |
| 4.3.3.2  | Évaluation statistique des analyses de l'ozone dans la couche 0–1 km d'altitude . . . . .  | 163        |
| 4.3.3.3  | Évaluation statistique des profils des analyses moyennées sur le domaine . . . . .   | 165        |
| 4.3.4    | Résultats de la prévision de l'ozone de surface et dans la couche 0–1 km . . . . .   | 168        |
| 4.4      | Conclusions du chapitre . . . . .  | 172        |
|          | <b>Conclusions générales</b>   | <b>175</b> |
|          | <b>Perspectives</b>  | <b>179</b> |
| <b>A</b> | <b>Liste des acronymes</b>   | <b>183</b> |

|  |            |
|--|------------|
| <b>B Les grandes dates de la qualité de l'air</b>                                | <b>187</b> |
| <b>C Impact de la qualité de l'air sur la santé et l'environnement</b>           | <b>195</b> |
| C.1 Interaction entre les polluants et l'organisme humain . . . . .              | 195        |
| C.2 Les effets des polluants sur la santé . . . . .                              | 196        |
| C.2.1 Effets symptomatiques des polluants . . . . .                              | 196        |
| C.2.2 Études épidémiologiques . . . . .  | 199        |
| C.2.3 Les chiffres de l'organisation mondiale de la santé . . . . .              | 201        |
| C.3 Les effets des polluants sur l'environnement . . . . .                       | 204        |
| C.3.1 Les pluies acides . . . . .  | 204        |
| C.3.2 L'eutrophisation . . . . .   | 206        |
| C.3.3 Le dépôt des métaux lourds . . . . .                                       | 207        |
| C.3.4 Le stress oxydatif subi par la végétation . . . . .                        | 209        |
| C.4 Le coût économique de la qualité de l'air . . . . .                          | 210        |
| <b>D Lexique et définitions du vocabulaire médical</b>                           | <b>213</b> |
| <b>E Les différents processus modélisés dans les modèles de chimie transport</b> | <b>217</b> |
| E.1 Équation d'advection-diffusion . . . . .                                     | 217        |
| E.2 Équation chimique . . . . .  | 218        |
| E.3 Le dépôt . . . . .   | 220        |
| E.4 Les sources d'émissions . . . . .  | 221        |
| E.5 L'équation du transport réactif . . . . .                                    | 222        |
| <b>F Liste des publications et conférences</b>                                   | <b>223</b> |
| <b>Bibliographie</b>   | <b>227</b> |

# Table des figures

|      |  |    |
|------|--|----|
| 1    | Couverture du document envoyé à l'ESA illustrant la mission MAGEAQ, un satellite géostationnaire, dédié à la mesure de l'ozone et du monoxyde de carbone pour la qualité de l'air, proposé lors de l'appel à projets EE-8. . . . .   | 24 |
| 1.1  | Schéma représentant la structure de l'atmosphère terrestre, divisée en couche en fonction du gradient de température. . . . .  | 31 |
| 1.2  | Schéma représentant la variation de l'épaisseur de la couche limite atmosphérique durant le cycle diurne. Adaptation d'après Stull (1988). . . . .   | 34 |
| 1.3  | Schéma représentant les processus dynamiques ayant lieu dans l'atmosphère et affectant la qualité de l'air. D'après P. Rekacewicz, July 2003. . . . .  | 35 |
| 1.4  | Photo de l'épisode de poussières désertiques s'étant abattu sur la ville de Riyad en Mars 2009. Photo de Boyd Jones ( <a href="http://boydjones.blogspot.fr/2009/03/massive-sand-storm-hits-riyadh-saudi_1414.html">http://boydjones.blogspot.fr/2009/03/massive-sand-storm-hits-riyadh-saudi_1414.html</a> ). . . . .   | 38 |
| 1.5  | Profil d'ozone moyen, en ppbv (partie par milliard par unité de volume), dans l'atmosphère, d'après <a href="http://education.meteofrance.fr">http://education.meteofrance.fr</a> . . . . .  | 43 |
| 1.6  | Exemple du cycle diurne de l'ozone ( $O_3$ ) dans la couche limite atmosphérique et des oxydes d'azote ( $NO_x$ ) lors d'une journée au-dessus de Mexico City. D'après le cours « Atmosphère et climat » donné par le LPAS-EPFL. . . . .   | 46 |
| 1.7  | Illustration de la pollution aux particules fines. En haut, photo de Paris, à gauche journée en Mars 2010 sans épisode de pollution, à droite journée en Mars 2014 correspondant à un épisode de pollution. En bas, photos de Pékin durant l'hiver 2013. Photos tirées du site <a href="http://www.lemonde.fr">www.lemonde.fr</a> . . . . .  | 48 |
| 1.8  | Répartition des stations sol mesurant la qualité de l'air. (À gauche) En Europe. (À droite) Zoom autour de la région Midi-Pyrénées. Les couleurs n'ont pas de significations particulières. D'après <a href="http://www.eea.europa.eu/themes/air/air-quality/map/real-time-map">http://www.eea.europa.eu/themes/air/air-quality/map/real-time-map</a> . . . . .  | 55 |
| 1.9  | Photo prise lors de la campagne TRAQA réalisée en Juin et Juillet 2012, en fond on distingue un ballon plafonnant dans la couche limite s'appêtant à être lancé. . . . .   | 56 |
| 1.10 | Schéma optique d'un spectromètre à réseau. Un rayonnement polychromatique (composé de deux longueurs d'onde $\lambda_1$ et $\lambda_2$ ) traverse le réseau avec un angle d'incidence $\theta_0$ . L'angle du rayonnement sortant du réseau $\theta_e$ est alors dépendant de la longueur d'onde, on a ainsi un angle $\theta_{e1}$ pour les rayons de longueur d'onde $\lambda_1$ , et un angle $\theta_{e2}$ pour les rayons de longueur d'onde $\lambda_2$ . Le rayonnement est alors collecté par une lentille et mesuré par un capteur placé à la distance focale $f$ de la lentille. . . . . | 58 |

|      |   |    |
|------|---|----|
| 1.11 | Schéma optique d'un interféromètre de Michelson. . . . .  | 60 |
| 1.12 | Schéma décrivant les deux types de visée satellite. (À gauche) La visée au nadir. (À droite) La visée au limbe. . . . .   | 61 |
| 1.13 | Nombres de satellites en orbites basses nécessaires pour couvrir l'Europe. (À gauche) Pour une résolution spatiale de $1^\circ$ (environ 100 km). (À droite) Pour une résolution spatiale de $0,4^\circ$ (environ 40 km). D'après Lahoz et al. (2012). . . . .  | 62 |
| 1.14 | Design de l'instrument MAGEAQ proposé lors de EE-8. . . . .   | 67 |
| 2.1  | Illustration de la chaîne de modélisation utilisée permettant de simuler les observations synthétiques d'un instrument à bord d'un satellite géostationnaire. . . . .   | 74 |
| 2.2  | Profil d'ozone en fonction de l'altitude obtenue à l'aide du modèle MOCAGE. La courbe noire représente la moyenne de tous les profils obtenus sur le domaine Europe sur la période allant du 1 <sup>er</sup> Juillet au 31 Août 2008. Les courbes rouges représentent les valeurs extrêmes (minimum et maximum) obtenues pour chaque niveau du profil d'ozone, sur le même domaine et la même période de temps. . . . .   | 78 |
| 2.3  | Champ d'ozone tel qu'il pourrait être vu par l'instrument MAGEAQ, sur un satellite géostationnaire (36 000 km d'altitude) orbitant au dessus du point $0^\circ$ Nord de latitude et $10^\circ$ Est de longitude. La déformation du champ est due à la rotondité de la Terre. La barre de couleur représente les valeurs d'ozone en ppbv. Le rectangle gris représente le domaine Europe de MOCAGE (avec une résolution spatiale de $0,5^\circ \times 0,5^\circ$ ). Le rectangle rouge représente le domaine réduit utilisé dans les études du chapitre 3 et du chapitre 4 (avec une résolution spatiale de $0,5^\circ \times 0,5^\circ$ ). . . . .        | 79 |
| 2.4  | Tracé de l'albédo de surface en fonction de la longueur d'onde. Les couleurs indiquent différents types de surface à des mois particuliers (cf. légende sur la figure). . . . .   | 85 |
| 2.5  | Raies spectrales d'absorption atmosphérique dans la bande TIR allant de 1000 à $1070 \text{ cm}^{-1}$ , issues de la base de données HITRAN 2008. Dans cette bande, $\text{O}_3$ est le principal absorbant, avec la contribution de $\text{H}_2\text{O}$ et $\text{CO}_2$ . De manière moins importante, $\text{N}_2\text{O}$ et $\text{CH}_4$ sont également présents. L'intensité des raies spectrales pour chaque constituant est fonction également de l'abondance du constituant, prise dans le cas d'une atmosphère standard, à la surface. Cette figure provient du site <a href="http://www.spectralcalc.com">www.spectralcalc.com</a> . . . . . | 87 |
| 2.6  | Sections efficaces, tirées de VLIDORT, dans l'ultraviolet et le visible des principaux constituants chimiques impactant la bande visible entre 520 et 650 nm. Les différentes couleurs représentent différents constituants chimiques (cf. légende sur la figure). . . . .  | 88 |
| 2.7  | Courbes de SNR pour l'instrument TIR du concept MAGEAQ. En magenta le SNR pour un cas de radiance issu d'un profil atmosphérique typique. En bleu un cas minimum, et en rouge un cas maximum. En gris le SNR pour un profil de radiance issu d'un corps noir à $T = 280 \text{ }^\circ\text{K}$ . En vert est représenté le SNR modélisé utilisé dans ce travail de thèse. . . . .  | 89 |

|      |  |     |
|------|--|-----|
| 2.8  | Courbes de SNR pour l'instrument VIS du concept MAGEAQ. En magenta le SNR pour un cas de radiance typique, et en bleu pour un cas de radiance minimum. En gras sont représentées les courbes de SNR issues de l'exigence scientifique. En trait fin sont représentées les courbes de SNR estimés par Airbus Defence and Space pour l'instrument. En vert est représenté le SNR modélisé utilisé dans ce travail de thèse. . . . .  | 90  |
| 2.9  | Radiances dans l'infrarouge thermique mesurées en sortie de l'atmosphère, et comparaison avec les radiances prévues par la loi du corps noir pour diverses températures (courbes en pointillées). Les principaux absorbants d'une bande sont également donnés. D'après les données de l'instrument IRIS distribué par le Goddard EOS Distributed Active Archive Center (DAAC) et Hanel et al. (1971). . . . .  | 92  |
| 2.10 | Représentation de la sensibilité des radiances à une variation des paramètres de l'inversion, comparé à la sensibilité de l'instrument de mesure déterminée par son SNR. En vert est représentée la sensibilité obtenue pour un écart de 10 % du profil d'ozone. En bleu est représentée la sensibilité obtenue pour un écart de 10 % du profil de vapeur d'eau. En jaune est représentée la sensibilité obtenue pour un écart de 10 % de l'albédo de surface. En rouge est représentée la sensibilité obtenue pour un écart de 1 °K du profil de température. En noir est représentée la limite de sensibilité de l'instrument de mesure, donnée par son SNR. La sensibilité désigne ici la différence absolue, obtenue entre des radiances de référence ( $Radiance_{ref}$ ) et des radiances obtenues après perturbation d'un paramètre ( $Radiance_b$ ), normalisé par la valeur des radiances de référence. . . . . | 99  |
| 2.11 | Schéma bloc représentant le fonctionnement de la chaîne de modélisation et d'inversion de données réalisée durant ce travail de thèse. . . . .   | 101 |
| 2.12 | Représentation d'un exemple des vecteurs de Stokes normalisés ( $\frac{Q}{I}$ et $\frac{U}{I}$ ), en fonction de la longueur d'onde, obtenus avec le RTM VLIDORT. En rouge sont tracées les interpolations polynômiales d'ordre 2 correspondantes. . . . .   | 104 |
| 3.1  | Calibration curves representing the variation of the SNR with respect to the wavelength for the MAGEAQ VIS instrument. The pink lines indicate the SNR for the typical radiance case (L_ref) and the blue lines indicate the SNR for the minimal radiance case (L_min). The thick lines show the SNR requirement and the thin lines show the SNR estimated for the instrument. The thin pink curve is fitted by a linear line (green line) to derive the instrument noise model. . . . .   | 123 |
| 3.2  | Image of the surface ozone field from MOCAGE 11 July 2009 at 12 :00 UTC simulated with the field of view and the spatial resolution of the MAGEAQ geostationary instrument ( $\sim 15 km \times 15 km$ ). The colour bar indicates the ozone concentration in parts per billion by volume (ppbv), with red/blue indicating relatively high/low values. The red square indicates the domain of ozone simulation with the MOCAGE grid ( $0.5 \times 0.5$ ). . . . .  | 124 |

- 3.3 Mean averaging kernels (normalized to 1 km), over the red square domain (over both land and sea pixels) in Fig. 3.2, as a function of altitude (km) at 02 :00, 06 :00 and 12 :00 UTC for GEO TIR (top 3 panels) and GEO TIR+VIS (bottom 3 panels). Black curves indicate the surface to 0.5 km averaging kernels, red curves indicate the 0.5 to 1.2 km averaging kernels, the green curves indicate the 1.2 to 3.8 km averaging kernels, and the blue curves indicate the 3.8 to 12 km averaging kernels. . . . . 126
- 3.4 As in Fig. 3.3 except for over sea pixels (first and third columns) and land pixels (second and fourth columns) at 06 :00 UTC and 12 :00 UTC. . . . . 127
- 3.5 DFS values for GEO TIR (left panel) and GEO TIR+VIS (right panel) over Europe and averaged over the daytime (07 :00–17 :00 UTC) period from 9 to 15 July 2009. The colour bar indicates the different DFS values, with red/blue indicating relatively high/low values. . . . . 128
- 3.6 As in Fig. 3.5 but for the height (km) of the surface averaging kernels maximum. The colour bar indicates the different height value in km, with red/blue indicating relatively high/low levels. . . . . 129
- 3.7 0–1 km ozone column (ppbv) for the 11 July 2009 at 16 :00 UTC for the reference state (top), GEO TIR (bottom left panel) and GEO TIR+VIS (bottom right panel). The colour bar indicates the ozone concentration in parts per billion by volume (ppbv), with red/blue indicating relatively high/low values. 130
- 3.8 Time series of ozone correlation (left column, dimensionless) and standard deviation (right column, ppbv) between GEO TIR (red lines), GEO TIR+VIS (blue lines) and the reference state. This is calculated for all pixels of the red square domain (see Fig. 3.2) for the period between 9 to 15 July 2009. The green line shows the results obtained with the a priori. The first row corresponds to the surface ozone results and the second row corresponds to the 0–1 km ozone column results. . . . . 131
- 3.9 0–1 km DFS, for all the pixels of the red square domain (see Fig. 3.2), over time (period between the 9 to 15 July 2009) for GEO TIR (in red) and GEO TIR+VIS (in blue). . . . . 132
- 3.10 As in Fig. 3.8 but for the sea pixels (first and second column) and land pixels (third and fourth column). First and third columns show the correlation; second and fourth columns show the standard deviation. . . . . 133
- 3.11 As in Fig. 3.9 but for the sea pixels (first column) and land pixels (second column). . . . . 134

|      |  |     |
|------|--|-----|
| 3.12 | Receiver Operating Characteristic (ROC) curves, that represent the probability of detection (PD) vs. the false alarm rate (FAR) considering the pixels for daytime (07 :00–17 :00 UTC) over land at the surface. In black is plotted the equal likelihood line, in blue the ROC curve for GEO TIR+VIS and in red the ROC curve for GEO TIR. The ROC curves are calculated for air quality purposes, and we highlight the value corresponding to the European threshold (2008/50/CE) for health protection of a surface ozone concentration of $120 \mu\text{g m}^{-3}$ , measured for the daily maximum of the 8 h running average of the surface values. As a complementary information, two other thresholds ( $100$ and $140 \mu\text{g m}^{-3}$ ) are highlighted. Also the histogram of the distribution of the daily ozone maximum of the 8 h running average of the surface values of the reference state is shown. . . . .   | 136 |
| 4.1  | Répartition des observations dans la méthode 3D-VAR d’après Daget (2007).  | 147 |
| 4.2  | Répartition des observations dans la méthode 3D-FGAT d’après Daget (2007).   | 149 |
| 4.3  | Illustration de la méthode du 4D-VAR, d’après Daget (2007). Pour chaque cycle $c$ , le modèle d’évolution est intégré de $t_0$ à $t_N$ à partir de l’état initial d’ébauche $x_c^b(t_0)$ (courbe noire pleine) et le vecteur d’innovation $d_i$ est calculé pour les différentes observations $y_i^o$ avec $i = 1, \dots, N$ (ligne fine verticale). L’analyse est effectuée à l’instant $t_0$ en ramenant les innovations à l’instant $t_0$ à l’aide du modèle adjoint. Après la minimisation, un incrément est obtenu qui est rajouté à l’état de l’ébauche initial pour obtenir l’état analysé $x_c^a(t_0) = x_c^b(t_0) + \delta x^a$ . Cet état analysé tient compte de la dynamique du modèle de sorte que la trajectoire analysée (courbe grise pointillée) minimise au mieux l’écart aux observations tout au long du cycle d’assimilation (de $t_0$ à $t_N$ ). L’état analysé $x_c^a(t_N)$ est ensuite utilisé comme état initial d’ébauche pour le cycle suivant. . . . . | 149 |
| 4.4  | Représentation schématique d’une expérience de simulation de systèmes d’observations (OSSE), d’après (Edwards et al., 2009). . . . .   | 151 |
| 4.5  | Schéma explicatif représentant l’OSSE réalisée dans ce travail de thèse pour comparer l’instrument GEO TIR+VIS, les stations sol, et les deux à la fois. .   | 154 |
| 4.6  | Série temporelle de la concentration horaire moyenne de l’ozone lors du mois d’Août 2003, pour le modèle MOCAGE (courbe rouge), le modèle LOTOS-EUROS (courbe bleue), et les données de stations sol du réseau AirBase (courbe noire). D’après Attié et al. (2013). . . . .  | 155 |
| 4.7  | Représentation de la couverture spatiale des stations sol incluses dans l’OSSE.  | 156 |
| 4.8  | Histogramme de la différence entre les observations et le modèle, avant assimilation (en rouge) et après assimilation (en vert). (À gauche) Pour les stations sol, (au centre) pour GEO TIR+VIS, (à droite) pour les deux à la fois, stations sol + GEO TIR+VIS. . . . .   | 158 |
| 4.9  | Profils, entre 0 et 7 km d’altitude, des incréments de l’assimilation, moyennés sur le domaine spatial, en fonction du temps. a) Incréments pour les stations sol, b) incréments pour GEO TIR+VIS, c) incréments pour les deux à la fois, stations sol + GEO TIR+VIS. Les barres de couleurs donnent les valeurs de ces incréments en ppbv. . . . .  | 160 |

- 4.10 À partir des valeurs à la surface : cartes de la corrélation (première colonne), du biais en % (seconde colonne), et de l'erreur quadratique moyenne en % (RMS, troisième colonne), entre le Nature Run et le Free Run (première ligne), entre le Nature Run et ASSIM stations sol (seconde ligne), entre le Nature Run et ASSIM GEO TIR+VIS (troisième ligne), et le Nature Run et ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS (quatrième ligne). Ces valeurs statistiques ont été obtenues en moyennant sur la période du 5 au 10 Août. Le biais et l'erreur quadratique moyenne (RMS) sont exprimés en pourcentage. Les valeurs pour chaque paramètre sont représentées par les barres de couleur. 162
- 4.11 À partir des valeurs de la colonne 0–1 km : cartes de la corrélation (première colonne), du biais (seconde colonne), et de l'erreur quadratique moyenne (RMS, troisième colonne), entre le Nature Run et le Free Run (première ligne), entre le Nature Run et ASSIM stations sol (seconde ligne), entre le Nature Run et ASSIM GEO TIR+VIS (troisième ligne), et le Nature Run et ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS (quatrième ligne). Ces valeurs statistiques ont été obtenues en moyennant sur la période du 5 au 10 Août. Le biais et l'erreur quadratique moyenne (RMS) sont exprimés en pourcentage. Les valeurs pour chaque paramètre sont représentées par les barres de couleur. 164
- 4.12 Profils moyens de la corrélation (en haut, à gauche), du biais (en haut, à droite), et de l'erreur quadratique moyenne (RMS, en bas, au centre), entre le Nature Run et le Free Run (en noir), entre le Nature Run et ASSIM stations sol (en vert), entre le Nature Run et ASSIM GEO TIR+VIS (en bleu), et le Nature Run et ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS (en jaune). 167
- 4.13 Évolution temporelle de la corrélation et de l'erreur quadratique moyenne (RMS), pour la période allant de 5 au 12 Août 2003. La première colonne présente les résultats obtenus avec les valeurs à la surface, et la deuxième colonne présente les résultats obtenus avec la colonne 0-1 km. La première ligne donne les courbes de corrélation, la deuxième ligne donne les courbes de RMS. Les courbes noires représentent les résultats obtenus avec le modèle Free Run, les courbes vertes représentent les résultats obtenus avec ASSIM stations sol, les courbes bleues représentent les résultats obtenus avec ASSIM GEO TIR+VIS, et les courbes en jaune représentent les résultats obtenus avec ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS. Les zones grisées indiquent les périodes où il fait nuit. Les lignes verticales rouges représentent la date du 10 Août 2003 à 0h, date à laquelle démarre la prévision. . . . . 168
- 4.14 Cycle diurne moyen de l'ozone de surface en Août 2003 pour le modèle MO-CAGE (courbe rouge), pour le modèle LOTOS-EUROS (courbe bleue), et pour le réseau de stations sol AirBase (courbe noire). D'après Attié et al. (2013). . . . . 170
- 4.15 Illustration d'un champ d'ozone de surface tel qu'il pourrait être mesuré par l'instrument MAGEAQ. Les couleurs vont du bleu pour les valeurs les plus faibles (10 ppbv), au rouge pour les valeurs les plus fortes (90 ppbv). . . . . 177

---

|     |   |     |
|-----|---|-----|
| C.1 | Illustration de l'appareil respiratoire de l'homme, et représentation de la pénétration par les particules fines en fonction de leurs tailles. D'après la présentation de Momas I., lors des deuxièmes assises nationales de la qualité de l'air, du 23 et 24 octobre 2013, à Paris. . . . .  | 196 |
| C.2 | Carte représentant la diminution de l'espérance de vie en mois en Europe dû à la qualité de l'air, et plus particulièrement pour les niveaux d'émissions de PM 2.5 d'origine anthropique de l'année 2000. D'après les résultats du programme Clean Air For Europe (CAFE), 2005 ( <a href="http://ec.europa.eu/environment/archives/cafegeneral/keydocs.htm">http://ec.europa.eu/environment/archives/cafegeneral/keydocs.htm</a> ). . . . . | 201 |
| C.3 | Nombres de morts attribués à la pollution atmosphérique dans les différentes régions du monde. Ces résultats font la distinction également entre les pays dont les revenus sont faibles ou moyens (FMR), et les pays avec un haut revenu (HR). D'après l'OMS ( <a href="http://www.who.int/">http://www.who.int/</a> ). . . . .   | 203 |
| C.4 | Répartition en pourcentage des différentes causes de décès par rapport au nombre de morts attribués à la pollution atmosphérique. D'après l'OMS ( <a href="http://www.who.int/">http://www.who.int/</a> ). . . . .  | 204 |
| C.5 | Carte représentant la tolérance à l'acidité des organismes d'eau douce communs. Tiré du site <a href="http://www.epa.gov">www.epa.gov</a> de l'agence pour la protection de l'environnement des États-Unis. . . . .   | 206 |
| C.6 | Schéma du cycle biogéochimique du mercure. D'après le site <a href="http://www.learner.org">www.learner.org</a> . . . . .   | 208 |



# Liste des tableaux

|     |   |     |
|-----|---|-----|
| 1.1 | Tableau récapitulatif des normes européennes de la qualité de l'air. . . . .  | 49  |
| 1.2 | Tableau récapitulatif des caractéristiques de l'instrument MAGEAQ, pour la mesure de l'ozone, proposé lors de EE-8. . . . .   | 66  |
| 2.1 | Configuration instrumentale du spectromètre infrarouge thermique. . . . .   | 91  |
| 2.2 | Configuration instrumentale du spectromètre visible. . . . .  | 93  |
| 2.3 | Corrélation et écart-type obtenus, entre l'ozone inversé et l'ozone vrai, dans la couche entre 0 et 1 km d'altitude, pour les différents cas d'études sur l'impact du taux de polarisation instrumental. Plus de détails sur les différents cas d'études sont disponibles dans le texte. . . . .  | 105 |
| 3.1 | Summary of the instrument configurations used. TIR = thermal infrared ; VIS = visible ; FWHM = full width half maximum ; NESR = noise equivalent source radiance. . . . .   | 122 |
| 3.2 | Summary of the 0–1 km Degrees of Freedom for Signal (DFS) with GEO TIR and GEO TIR+VIS at 02 :00, 06 :00 and 12 :00 UTC for all the pixels of the red square domain (land and sea pixels together) in Fig. 3.2, and at 06 :00 and 12 :00 UTC for the case of sea and land pixels. Bold values represent the highest DFS values when comparing GEO TIR and GEO TIR+VIS. . . . .  | 127 |
| 3.3 | Air quality monitoring results for GEO TIR and GEO TIR+VIS. For all the pixels of the red square domain (land and sea pixels together) in Fig. 3.2, the land pixels, and the sea pixels, we calculate the accuracy (ACC), the probability detection (PD) and the false alarm rate (FAR). See Sect. 3.2 for more details. Bold values represent the best values in the comparison between GEO TIR and GEO TIR+VIS. . . . .   | 135 |
| 4.1 | Descriptif de l'OSSE réalisée. . . . .  | 157 |
| 4.2 | Tableau résumant les extrema de la corrélation et du RMS obtenus avec le Free Run et les analyses (ASSIM GEO TIR+VIS, ASSIM stations sol et ASSIM Stations sol + GEO TIR+VIS) entre le 6 et 10 Août 2003, et donnant les valeurs de la corrélation et du RMS pour les prévisions à h+1, h+7, h+13, h+25, h+49. Les valeurs en gras représentent une amélioration notable apportée par le système d'observations, c'est à dire lorsque la corrélation du système d'observations est supérieure de 0.05 à la corrélation du Free Run, ou encore lorsque le RMS du système d'observations est inférieur de 5 % au RMS du Free Run. . . . . | 171 |

|  |     |
|--|-----|
| C.1 Directives de l’OMS concernant les valeurs de référence à ne pas dépasser<br>pour les différents polluants atmosphériques. . . . . | 202 |
|--|-----|

# Introduction Générale

La qualité de l'air est, dans le monde, l'un des principaux sujets de préoccupations environnementales ; et ce à juste titre puisque l'Organisation Mondiale de la Santé (OMS) a rendu public un rapport en mars 2014 attribuant la mort de 3,7 millions de personnes dans le monde sur l'année 2012 à la pollution de l'air. De plus, en prenant également en compte la mortalité due à une mauvaise qualité de l'air intérieur, plus de 7 millions de morts dans le monde sur l'année 2012 sont imputables à la pollution de l'air, soit 1 décès sur 8. La pollution de l'air représente ainsi le principal risque environnemental pour la santé dans le monde.

En France, malgré une baisse importante des émissions anthropiques de polluants dans l'atmosphère depuis les 30 dernières années, on constate encore de fréquents dépassements de seuil pour certains polluants, dont l'ozone et les particules fines. Ainsi, l'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME) estime que chaque année 5 à 15 millions de français sont exposés à des niveaux excessifs de particules fines (en anglais, Particulate Matter -PM-). De plus, tous les ans se forment, lors des périodes estivales, au-dessus des grandes agglomérations, ce que l'on appelle couramment des pics d'ozone. L'ozone troposphérique et les particules fines sont les deux principaux polluants présents dans les pays développés, notamment en Europe.

L'ozone troposphérique est ce que l'on appelle un polluant secondaire car il n'est pas directement émis dans l'atmosphère mais se forme par réactions chimiques avec des précurseurs. Sa capacité d'oxydation de l'atmosphère (Jacob, 2000) lui confère un rôle majeur dans la chimie troposphérique, et le rend toxique pour les écosystèmes (Cooper et al., 2010). De plus, l'ozone est un gaz nocif pour la santé humaine qui peut engendrer maladies pulmonaires et cardiovasculaires.

D'une manière plus générale, la qualité de l'air est le résultat d'un processus complexe liant les émissions, les réactions chimiques, et le transport des espèces chimiques présentes dans l'atmosphère. La qualité de l'air a une forte variabilité spatio-temporelle (McNair et al., 1996; Lahoz et al., 2012) ; et les modèles qui tentent de la décrire, bien qu'ayant fortement progressés notamment grâce au développement de moyens de calculs toujours plus performants, sont encore loin de permettre d'obtenir des prévisions de dépassement de seuil fiables. Cependant, grâce à l'assimilation de données, la précision des prévisions pourrait être considérablement augmentée avec l'utilisation d'observations ayant une précision et une résolution spatio-temporelle adéquate (Lahoz et al., 2007, 2012).

En Europe, il existe plusieurs plateformes opérationnelles de surveillance et prévision de la qualité de l'air, comme par exemple le projet MACC (Monitoring Atmospheric Composition and Climate; Hollingsworth et al., 2008) qui fournit quotidiennement la prévision et les analyses des concentrations des principales espèces chimiques pour la qualité de l'air. Également, le service PREV'AIR (Rouil et al., 2008) fournit des cartes d'analyses et de prévisions de la qualité de l'air sur l'Europe avec un zoom sur la France. Ces plateformes assimilent les données du système d'observations global actuel, à savoir pour l'essentiel les données des stations sol.

Le système d'observations global actuel est composé de mesures in-situ réalisées par les stations sol (et dans une moindre mesure par des instruments aéroportés avions, ballons), et de mesures par télédétection réalisées principalement par les satellites. L'avantage des stations sol est de fournir une mesure directe des concentrations chimiques de l'air que l'on respire. Cependant elles souffrent d'une couverture spatiale limitée et inhomogène, et présentent des incohérences dans leur représentativité et dans leurs mesures (Ignaccolo et al., 2008). Au contraire, les satellites fournissent des observations avec une très bonne couverture spatiale mais avec une résolution spatiale, et temporelle dans le cas des satellites défilants, plus faibles.

Or, il a été démontré que pour bien échantillonner la variabilité spatio-temporelle de la qualité de l'air, les observations doivent avoir une résolution spatiale de l'ordre d'une dizaine de kilomètres et une résolution temporelle de l'ordre de l'heure (Fishman et al., 2008; Martin, 2008; Lahoz et al., 2012). Au final, en tenant compte de ces contraintes sur la résolution spatio-temporelle, la couverture spatiale, et le coût global, le satellite géostationnaire est le compromis idéal pour satisfaire aux exigences d'un système de mesures de la qualité de l'air (Burrows et al., 2004; Orphal et al., 2005a; Zoogman et al., 2011). Conscient du potentiel des satellites géostationnaires, on voit apparaître de plus en plus de propositions de missions, sur l'étude de la chimie troposphérique et la qualité de l'air, impliquant des instruments à bord de satellites géostationnaires.

Ainsi, aux États-Unis est planifiée la mission TEMPO (Tropospheric Emissions: Monitoring of POLLution; Chance et al., 2013), pour un lancement en 2018/2019. TEMPO est un spectromètre, placé sur un satellite géostationnaire, chargé de mesurer les concentrations de constituants chimiques pour la qualité de l'air au-dessus des États-Unis, opérant dans l'ultraviolet et le visible. On trouve également aux États-Unis la mission GEO-CAPE (GEOstationary Coastal and Air Pollution Events mission), programmée horizon 2020, dédiée à la chimie troposphérique et à la couleur de l'eau. En Corée du Sud, la mission GEO-KOMPSAT (GEOstationary KOREA Multi-Purpose SATellite), un imageur à haute résolution spectrale dédiée à la couleur de l'eau et à la chimie atmosphérique, est programmée pour 2017/2018 (Lee et al., 2010). Enfin, en Europe, vont être lancés en 2017/2018 les satellites géostationnaires Sentinel-4 UVN (Ultra-violet/Visible/Near-infrared; Bazalgette Courrèges-Lacoste et al., 2007) et MTG IRS (Meteosat Third Generation InfraRed Sounder; Munro, 2011). Sentinel-4 UVN est un spectromètre opérant dans l'ultraviolet, le visible et le proche infrarouge, destiné à la mesure de l'ozone troposphérique, du  $\text{NO}_2$ ,

HCHO, SO<sub>2</sub>, et des aérosols. MTG IRS est un sondeur infrarouge qui permettra la mesure de l’ozone troposphérique et du monoxyde de carbone. D’autres missions géostationnaires pour sonder la basse troposphère au-dessus de l’Europe ont été proposées comme GeoTroPE (Geostationary Tropospheric Pollution Explorer; Burrows et al., 2004) et GeoFIS (Geostationary Fourier Imaging Spectrometer; Flaud et al., 2004; Orphal et al., 2005b), enfin plus récemment la mission MAGEAQ (Monitoring the Atmosphere from Geostationary orbit for European Air Quality) a été proposée à l’Agence Spatiale Européenne (en anglais, European Space Agency -ESA-) en tant que candidate pour EE-8 (Earth Explorer Opportunity Mission) en 2010.

MAGEAQ est un instrument multispectral couplant l’infrarouge thermique et le visible dédié à la mesure d’espèces chimiques pour la qualité de l’air, et plus exactement à la mesure de l’ozone et du monoxyde de carbone dans la basse troposphère (Peuch et al., 2010). En effet, plusieurs études ont déjà montré l’importance d’utiliser une approche multispectrale pour mesurer les espèces chimiques pour la qualité de l’air (Landgraf and Hasekamp, 2007; Worden et al., 2007a; Natraj et al., 2011; Lahoz et al., 2012; Cuesta et al., 2013; Fu et al., 2013). MAGEAQ est le résultat d’une étude de phase 0 (cf. Fig. 1) réalisée par l’industriel Airbus Defence and Space (ex EADS-Astrium) afin de proposer un instrument répondant aux exigences scientifiques tout en assurant sa faisabilité et un coût contrôlé. MAGEAQ, candidat non retenu à EE-8, a néanmoins obtenu une très bonne appréciation et a été encouragé à approfondir l’évaluation de son potentiel pour la mesure des espèces chimiques pour la qualité de l’air. Claeys et al. (2011b,a) ont contribué à la première évaluation de MAGEAQ, déterminant l’apport de ses observations dans le système d’observations global actuel. Ces travaux portaient uniquement sur la bande infrarouge thermique de MAGEAQ (baptisé GEO TIR). Ils ont permis de tester la sensibilité de l’instrument pour mesurer l’ozone troposphérique, en montrant la valeur ajoutée de GEO TIR par rapport à un instrument semblable à MTG IRS grâce à la méthodologie des expériences de systèmes d’observations simulés (OSSEs; Lahoz et al., 2005; Stoffelen et al., 2006; Masutani et al., 2010). Mon travail de thèse se place dans la continuité de ces travaux.

En effet, l’objectif de la thèse est de quantifier l’apport de la bande visible de l’instrument MAGEAQ, par rapport à sa bande infrarouge thermique, pour mesurer l’ozone dans la basse troposphère, et plus particulièrement dans la couche 0–1 km d’altitude, pour la qualité de l’air. De plus, à l’aide d’OSSEs, on étudiera l’apport de MAGEAQ dans le système d’observations global pour la mesure de l’ozone à la surface et dans la colonne 0–1 km d’altitude.

Nous présenterons tout d’abord dans le premier chapitre la thématique générale de la qualité de l’air, avec un rappel sur les connaissances de bases sur l’atmosphère, nous détaillerons les principaux polluants atmosphériques et leurs origines. Nous présenterons également les directives européennes de la qualité de l’air et le projet Copernicus. Enfin, nous décrirons les différents systèmes de mesure de l’ozone pour la qualité de l’air.

Le second chapitre sera dédié à la modélisation du système d’observations réalisé durant ce travail de thèse. En particulier, nous décrirons la chaîne de modélisation mise au point pour créer des observations synthétiques de l’instrument MAGEAQ, qui a impliqué l’utilisa-

tion du modèle de chimie transport MOCAGE, les modèles de transfert radiatif KOPRA et VLIDORT, et un algorithme d'inversion de données. Chaque modèle sera étudié de manière détaillé dans ce chapitre.

Le troisième chapitre présente les résultats de l'étude réalisée en s'appuyant sur la chaîne de modélisation du chapitre 2 (Hache et al., 2014). L'étude, publiée dans le journal scientifique Atmospheric Measurement Techniques (AMT), compare les observations synthétiques de deux instruments : le premier, GEO TIR, possède uniquement les caractéristiques de MAGEAQ dans la bande infrarouge thermique ; le second, GEO TIR+VIS, possède les caractéristiques de l'instrument MAGEAQ dans la bande infrarouge thermique et la bande visible. L'étude compare les sensibilités respectives de GEO TIR et GEO TIR+VIS à mesurer l'ozone de surface et l'ozone dans la couche 0–1 km d'altitude, en distinguant les surfaces continentales et les surfaces maritimes, ainsi que le jour et la nuit. L'étude fournit également les résultats de la détection de dépassement de seuil d'ozone.

Enfin, le quatrième chapitre introduit l'assimilation de données et les différentes méthodes existantes, puis détaille l'outil d'assimilation de données MOCAGE-PALM utilisé durant ce travail de thèse. Ensuite un rappel sur le formalisme des OSSEs est donné. Enfin, le chapitre présente une étude où intervient une OSSE qui démontre l'apport de l'instrument MAGEAQ (GEO TIR+VIS), comparé aux données des stations sol, pour la modélisation et la prévision des valeurs d'ozone pour la qualité de l'air.



FIGURE 1 – Couverture du document envoyé à l'ESA illustrant la mission MAGEAQ, un satellite géostationnaire, dédié à la mesure de l'ozone et du monoxyde de carbone pour la qualité de l'air, proposé lors de l'appel à projets EE-8.





# Chapitre 1

## La qualité de l'air et sa mesure

### Sommaire

---

|            |  |           |
|------------|--|-----------|
| <b>1.1</b> | <b>Introduction</b>  | <b>28</b> |
| <b>1.2</b> | <b>L'atmosphère terrestre</b>  | <b>30</b> |
| 1.2.1      | Structure verticale de l'atmosphère                                  | 30        |
| 1.2.2      | Les processus influençant la qualité de l'air                        | 34        |
| 1.2.3      | Le lien entre la qualité de l'air et les conditions climatiques      | 37        |
| <b>1.3</b> | <b>Les polluants atmosphériques</b>                                  | <b>40</b> |
| 1.3.1      | Les polluants issus de sources primaires                             | 40        |
| 1.3.2      | Les polluants issus de sources secondaires                           | 41        |
| 1.3.3      | L'ozone  | 43        |
| 1.3.4      | Les particules fines   | 46        |
| <b>1.4</b> | <b>Normes et seuils de la qualité de l'air en Europe</b>             | <b>49</b> |
| 1.4.1      | Les normes européennes   | 49        |
| 1.4.2      | Les organismes de régulation   | 50        |
| 1.4.3      | Projet européen pour la qualité de l'air : Copernicus                | 51        |
| <b>1.5</b> | <b>La mesure de la qualité de l'air et en particulier de l'ozone</b> | <b>53</b> |
| 1.5.1      | Les mesures in-situ  | 53        |
| 1.5.2      | Les mesures par télédétection  | 57        |
| 1.5.3      | État de l'art des satellites mesurant l'ozone troposphérique         | 62        |
| <b>1.6</b> | <b>Conclusions du chapitre</b>                                       | <b>68</b> |

---

## 1.1 Introduction

La mesure de la qualité de l'air (QA) est par définition l'évaluation de l'état de l'air ambiant selon une échelle dépendant du taux de concentration des polluants dont chaque niveau est déterminé par rapport à l'impact sanitaire de ces polluants. Elle ne concerne donc que la couche limite atmosphérique, fine couche entre la surface de notre planète et environ 1 km d'altitude (cf. Fig. 1.1) sous nos latitudes, et dépend de la présence, à des niveaux de concentrations bien précis, d'une variété d'espèces chimiques et des particules fines.

L'origine de l'intérêt de la qualité de l'air remonte principalement au 18<sup>ème</sup> et 19<sup>ème</sup> siècle, date à laquelle la révolution industrielle s'est effectuée dans les pays européens. En effet, le passage d'une société à dominante agricole et artisanale à une société commerciale et industrielle, l'exploitation grandissante des énergies fossiles (charbon puis pétrole et gaz naturel), l'émergence de nouveaux moyens de transport automobile, ferroviaire et aérien, l'essor des industries sidérurgiques, pétrochimiques, ou encore de l'agriculture intensive, vont avoir un impact très important sur l'environnement. C'est durant cette période que l'on voit apparaître les premiers cas de « smog », un mélange de fumée et de brouillard donnant une épaisse brume brunâtre pouvant persister plusieurs jours sur les grandes villes telles que Londres ou Paris. Très vite la dégradation de la santé est associée avec la présence de cette pollution atmosphérique, c'est ainsi que commencent les premières études sur la qualité de l'air et son impact. L'un des pires cas de smog à Londres, baptisé « Le grand smog de Londres », aurait provoqué la mort de 12 000 personnes et en aurait rendu 100 000 malades, en décembre 1952.

La notion de qualité de l'air a émergé conjointement avec l'étude du climat et des surfaces terrestres, les causes et effets étant étroitement reliés entre eux. Les grandes dates de la qualité de l'air sont données dans l'annexe B, on relèvera principalement à la suite d'épisodes de smogs tueurs l'apparition des premières lois sur l'air propre en Angleterre en 1952 (Clean Air Act), et aux États-Unis en 1963 (US clean Air Act). En France, c'est en 1996 qu'est votée la Loi sur l'Air et l'Utilisation Rationnelle de l'Energie (LAURE) stipulant que « chaque citoyen est en droit de respirer un air qui ne nuise pas à sa santé ». Les gouvernements mettent en place, à travers ces lois, des normes et des seuils pour la QA, ainsi que des organismes chargés de la régulation et de la surveillance de la QA.

Pour assurer la surveillance de la qualité de l'air, on dispose actuellement de différents moyens de mesure, dont les deux principaux sont les stations sol et les satellites. Les stations sol fournissent des mesures, in situ, précises de la QA, mais souffrent d'une couverture spatiale limitée et inhomogène. Les satellites fournissent des mesures par télédétection avec une très bonne couverture spatiale, mais une résolution spatio-temporelle et une sensibilité proche de la surface souvent limitées. En effet, actuellement l'essentiel des mesures satellites pour la QA provient des satellites défilants, dont le temps de revisite de l'ordre de la journée ne permet pas de mesurer l'évolution des espèces relatives à la QA. Cependant, les progrès dans les instruments et capteurs, associés au couplage multispectral et hyperspectral des instruments, permettent d'envisager l'utilisation de satellites géostationnaires pour

la mesure des polluants dans les couches les plus basses de l'atmosphère, pour la qualité de l'air. Ces derniers permettraient ainsi d'offrir des mesures dont la résolution spatiale, de l'ordre de la dizaine de kilomètres, et temporelle, de l'ordre de l'heure, conviendraient parfaitement pour le suivi de l'évolution de la QA.

À ce titre, nous étudions dans ce travail de thèse les capacités d'un instrument simulé à bord d'un satellite géostationnaire, similaire à l'instrument MAGEAQ qui a été proposé lors de l'appel à projet EE-8 de l'ESA, couplant une bande dans le visible et une bande dans l'infrarouge thermique, pour mesurer l'un des principaux polluants atmosphérique : l'ozone.

Dans ce chapitre, nous allons tout d'abord présenter les connaissances générales sur la structure verticale de l'atmosphère, puis les processus impactant la qualité de l'air.

Ensuite, nous présenterons les principaux polluants qui influent négativement sur la qualité de l'air. Nous distinguerons les polluants primaires et secondaires, et nous détaillerons en particulier l'ozone et les particules fines, les deux principaux polluants de notre société industrialisée européenne apparaissant lors d'événements de pollution due à la photochimie.

Puis, nous parlerons des normes et seuils de la qualité de l'air en Europe, ainsi que des organismes en France chargés de l'application de ces normes et de la surveillance de la QA. Également, nous présenterons le projet Copernicus, dédié à l'observation de la Terre et à la surveillance des risques environnementaux, notamment la mauvaise qualité de l'air.

Enfin, nous décrirons les moyens de mesures permettant de réaliser les mesures de la QA, et en particulier de l'ozone. Nous distinguerons les moyens de mesures in situ, à savoir les stations sol et les mesures à partir de ballons ou d'avions, et les moyens de mesures par télédétection, dont font partie les mesures faites par satellites. Nous détaillerons les mesures par satellites et donnerons un état de l'art des satellites actuels mesurant l'ozone troposphérique, ainsi que les missions en préparation dédié à la mesure de la QA grâce à des satellites géostationnaires.

## 1.2 L'atmosphère terrestre

L'atmosphère terrestre est l'enveloppe gazeuse entourant la Terre dite « solide ». L'air sec se compose de 78,08 % de diazote, 20,95 % de dioxygène, 0,93 % d'argon, 0,0395 % de dioxyde de carbone et des traces d'autres gaz comme l'ozone par exemple. C'est grâce à la présence de l'atmosphère que la vie a été rendue possible sur la surface de la Terre. En effet l'atmosphère absorbe le rayonnement solaire ultraviolet (UV) le plus énergétique (inférieur à 315 nm) qui est aussi le plus délétère pour la vie puisqu'il brise les brins d'ADN. Également, par absorption du rayonnement infrarouge émis par la surface, l'atmosphère contribue à la rétention de chaleur (effet de serre) et les phénomènes dynamiques de transport qui ont lieu dans l'atmosphère permettent ainsi de réduire les écarts de température entre le jour et la nuit, assurant ainsi en moyenne sur le globe une température de surface de +15 °C propice au développement de la vie. Enfin, l'atmosphère rend possible les échanges gazeux nécessaires à la respiration, que ce soit pour les plantes, les animaux ou même les hommes.

On se représente souvent l'atmosphère comme une fine couche (d'environ 100 km d'épaisseur) déposée sur la surface de la Terre (le rayon de la Terre étant d'environ 6300 km). En réalité il n'existe pas de frontière définie entre l'atmosphère et l'espace. En effet avec l'altitude la pression diminue, l'air se raréfie, l'atmosphère devient de plus en plus ténue et s'évanouit peu à peu dans l'espace. La plus grande partie de la masse atmosphérique se trouve donc proche de la surface; et il est couramment admis que la frontière entre l'atmosphère et l'espace se trouve entre 100–120 km d'altitude, là où les effets atmosphériques deviennent notables durant la rentrée atmosphérique d'un engin spatial.

### 1.2.1 Structure verticale de l'atmosphère

L'atmosphère est divisée en plusieurs couches d'importances variables, leurs limites ayant été fixées selon les discontinuités dans les variations de la température en fonction de l'altitude. De haut en bas on distinguera donc l'exosphère, la thermosphère, la mésosphère, la stratosphère, la troposphère et la couche limite atmosphérique (cf. Fig. 1.1).

#### 1.2.1.1 L'exosphère

L'exosphère est une couche allant de 350–800 à 50 000 km d'altitude. Cette couche se définit comme la région de l'atmosphère où les collisions entre particules sont rares et considérées comme négligeables. En effet la densité de particules y est extrêmement faible, celle-ci est de l'ordre de  $10^6$  par centimètre cube à environ 700 km d'altitude, et à 5 000 km d'altitude celle-ci n'est plus que de l'ordre de 100 par centimètre cube, densité équivalente à celle du milieu interplanétaire. Les atomes s'y comportent donc librement, certains s'échappent même dans l'espace, c'est pourquoi la zone située à cette altitude est également appelée le niveau d'échappement. Un des grands intérêts de l'exosphère réside dans l'exceptionnelle capacité de durée de vie des satellites placés dans ses couches les plus hautes. En effet, en ne considérant que les frottements dus à l'atmosphère, les satellites dans l'exosphère pourraient rester en orbite des centaines, voire des milliers d'années, alors que les satellites qui évoluent à une altitude moindre, de l'ordre de 300 kilomètres (thermosphère),

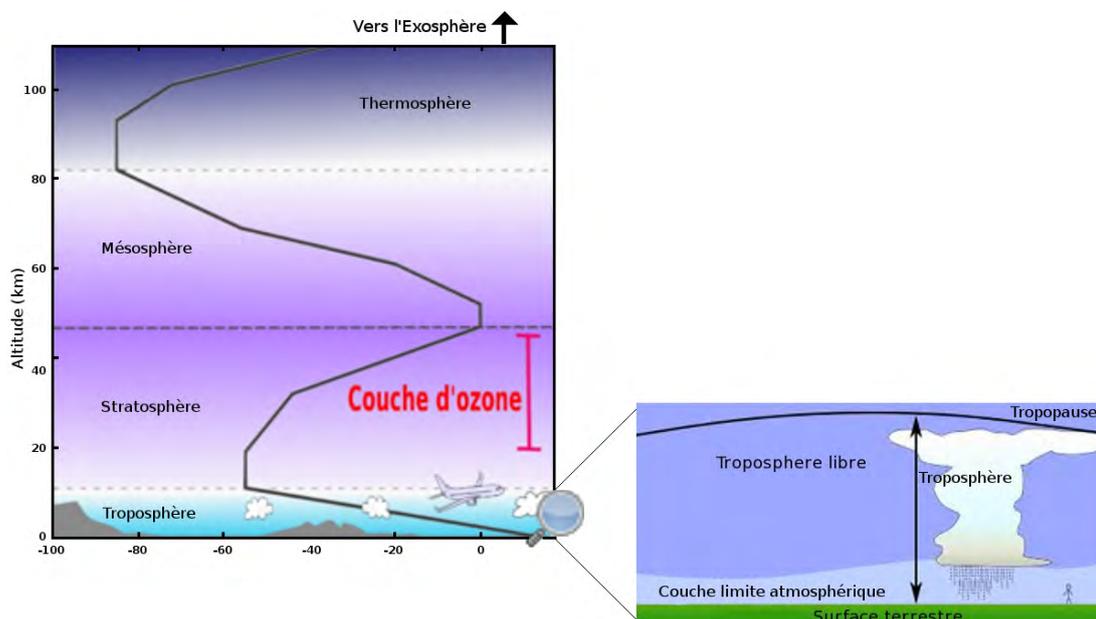


FIGURE 1.1 – Schéma représentant la structure de l’atmosphère terrestre, divisée en couche en fonction du gradient de température.

subissent un freinage permanent non négligeable. C’est dans l’exosphère que l’on trouve les satellites en orbite géostationnaire (36 000 km d’altitude, cf. section 1.5.2.2).

### 1.2.1.2 La thermosphère

La thermosphère, juste au-dessous de l’exosphère, est une couche où la température croît avec l’altitude (de 80 à 350–800 km d’altitude). Dans cette couche (et dans l’exosphère), contrairement aux couches inférieures, la composition de l’air n’est plus uniforme, le brassage de l’air n’étant plus suffisant pour maintenir la distribution de mélange.

Entre 100 et 150 kilomètres d’altitude, le dioxygène moléculaire absorbe l’ultraviolet solaire de très courtes longueurs d’onde (entre 100 et 200 nm). En résulte une augmentation de température avec l’altitude qui oscille entre 300 °C et 1 600 °C selon l’activité solaire. Après absorption du rayon ultraviolet, la molécule de dioxygène se disloque en deux atomes d’oxygène, ce qui explique que l’oxygène atomique devienne le constituant principal de la thermosphère. C’est dans cette couche que volent les satellites en orbites basses (cf. section 1.5.2.2) qui, pour pouvoir réaliser des mesures des constituants chimiques proches de la surface, doivent sonder à travers toutes les couches atmosphériques inférieures, détaillées ci-après.

### 1.2.1.3 La mésosphère

Au-dessous de la thermosphère se trouve la mésosphère, dans cette couche la température décroît avec l'altitude (de 50 à 80 km d'altitude) jusqu'à  $-80\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Elle est considérée comme étant une zone de transition entre la Terre et l'espace. En y pénétrant, pour descendre sur Terre, les météorites, satellites, etc s'échauffent contre les quelques particules d'air qu'ils rencontrent et sont détruits avant d'atteindre le sol, sauf pour les plus grosses pièces. Les vaisseaux habités, navettes spatiales, capsules Soyouz, doivent être protégés pour pouvoir passer cette couche qui va les freiner pour atteindre le sol en douceur.

### 1.2.1.4 La stratosphère

La stratosphère est la couche située au-dessous de la mésosphère. Dans cette couche la température, cette fois-ci, croît avec l'altitude jusqu'à  $0^{\circ}\text{C}$ . La stratosphère s'étend de 8–15 km d'altitude jusqu'à environ 50 km d'altitude et contient à peu près 90 % de la couche d'ozone.

L'ozone ( $\text{O}_3$ ) de la stratosphère terrestre est créé par les rayons ultraviolets frappant les molécules de dioxygène ( $\text{O}_2$ ), séparant ainsi ces dernières en deux atomes distincts. Les atomes d'oxygène ainsi produits se combinent ensuite avec une molécule de dioxygène pour produire l'ozone. L'ozone est instable (bien que, dans la stratosphère, sa durée de vie soit plus longue), ainsi lorsqu'un rayon ultraviolet frappe une molécule d'ozone cette dernière est séparée à nouveau en dioxygène et en oxygène atomique. Ce processus continu s'appelle le cycle ozone-oxygène, et est le processus principalement à l'origine de l'augmentation de la température dans la stratosphère. Les concentrations d'ozone sont les plus élevées entre 20 et 40 km d'altitude, où elles atteignent des valeurs allant de 2 à 8 ppmv (partie par million par unité de volume, c'est à dire que pour 1 million de molécules d'air on a 2 à 8 molécules d'ozone). Dans la stratosphère, contrairement à l'ozone troposphérique qui est formé à partir d'un mécanisme différent (cf. section 1.3.3), l'ozone est loin d'être considéré comme un polluant puisqu'il joue un rôle essentiel dans la protection de la vie sur Terre en servant de bouclier contre le rayonnement UV. En effet le rayonnement UV peut être classé en 3 catégories :

- Les UV-A, de 315 à 400 nm, ce rayonnement est peu filtré par la couche d'ozone et 95 à 98 % des rayons vont atteindre la surface. Ces rayons sont responsables du bronzage immédiat et du vieillissement de la peau, ils peuvent également avoir un effet cancérigène.
- Les UV-B, de 280 à 315 nm, ce rayonnement est largement filtré par la couche d'ozone et seul 2 à 5 % de ces rayons vont atteindre la surface. Ces rayons sont responsables du bronzage à retardement et des coups de soleil, ils favorisent également le vieillissement de la peau et l'apparition de cancers de la peau.
- Les UV-C, de 200 à 280 nm, ce rayonnement est intégralement filtré par la couche d'ozone, ce qui est heureux puisqu'il a la propriété de casser les brins d'ADN.

### 1.2.1.5 La troposphère

La troposphère est la couche partant de la surface jusqu'à environ 7–16 km d'altitude, sachant que le sommet de cette couche varie entre 13 et 16 km à l'équateur, mais entre 7 et 8 km aux pôles, avec des variations dues aux conditions climatiques. Elle est définie par son gradient de température qui décroît avec l'altitude. Également, la troposphère contient 80 à 90 % de la masse totale de l'air et la quasi-totalité de la vapeur d'eau. C'est dans cette couche que se produisent les phénomènes météorologiques tels que les nuages, la pluie, etc et les mouvements atmosphériques horizontaux et verticaux induits par la convection thermique et les vents.

Le mélange vertical de la troposphère est assuré par le réchauffement solaire. Ce réchauffement couplé à l'évaporation rend l'air moins dense, ce qui le fait remonter. Quand l'air monte, la pression au-dessus de lui décroît, par conséquent il s'étend, s'opposant à la pression de l'air environnant. Or, pour s'étendre, de l'énergie est nécessaire, donc la température et la masse de l'air décroissent. Comme la température diminue, la vapeur d'eau dans la masse d'air peut se condenser ou se solidifier, relâchant la chaleur latente permettant une nouvelle élévation de la masse d'air. Ce processus détermine le gradient maximal de baisse de la température avec l'altitude, appelé gradient thermique adiabatique.

### 1.2.1.6 La couche limite atmosphérique

En s'intéressant à nouveau à la troposphère, on peut diviser cette dernière en deux couches distinctes (cf. Fig. 1.2) :

- La couche limite atmosphérique, c'est à dire la zone de l'atmosphère où le frottement produit par la surface (terre ou mer) ralentit le déplacement de l'air.
- La troposphère libre qui est a contrario la zone dans laquelle le frottement produit par la surface devient négligeable.

L'épaisseur de la couche limite atmosphérique est très variable selon la stabilité de l'air et la rugosité de la surface, avec une forte influence du cycle diurne et le réchauffement associé. De jour, elle est généralement convective et favorise le mélange des constituants chimiques présents, son épaisseur varie de 1 à 2 km, en fonction de l'ensoleillement, de la saison et de la latitude. Elle est plus basse en hiver qu'en été. Exceptionnellement elle peut atteindre 4 à 5 km d'épaisseur par exemple au-dessus du Sahara. De nuit, elle n'est plus convective et varie entre 100 et 300 m d'épaisseur, en fonction du vent et du refroidissement en surface. Au-dessus de l'océan, elle est plus régulière, sans cycle diurne prononcé, en général épaisse de 500 et 1000 m, en fonction de la position des premiers nuages.

De part la présence de la surface sous-jacente (continent ou océan), le vent y est plus ou moins freiné et l'atmosphère est turbulente. Le rayonnement solaire arrivant en surface le jour chauffe celle-ci et réchauffe donc l'air de la couche limite atmosphérique. La nuit au contraire, il y fait plus froid. C'est bien sûr ce que l'on ressent tous les jours, mais il faut noter que plus haut dans l'atmosphère, au-dessus de la couche limite, ce cycle diurne n'est plus vraiment sensible. L'évaporation de la mer ou de l'eau du sol par les plantes humidifie

l'air dans la couche limite atmosphérique, puis celui-ci est brassé par la turbulence, ce qui conduit souvent à y observer des nuages à son sommet.

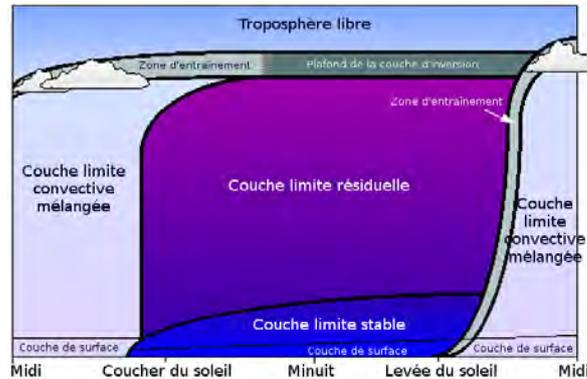


FIGURE 1.2 – Schéma représentant la variation de l'épaisseur de la couche limite atmosphérique durant le cycle diurne. Adaptation d'après Stull (1988).

La couche limite atmosphérique est la couche dans laquelle nous vivons, dans laquelle nous respirons, par conséquent l'étude et la compréhension des phénomènes se déroulant dans cette couche sont de première importance, notamment pour l'étude de la qualité de l'air. Les polluants primaires émis à la surface et les polluants secondaires qui se forment dans cette couche, comme par exemple l'ozone, sont fortement mélangés par le transport turbulent. Ainsi la couche limite atmosphérique est une couche homogène.

Dans le cadre de l'étude de la qualité de l'air et de sa mesure, nous nous intéressons ainsi tout particulièrement aux concentrations de polluants dans la couche limite atmosphérique (approximée comme étant la couche entre 0 et 1 km d'altitude).

## 1.2.2 Les processus influençant la qualité de l'air

L'évolution de la qualité de l'air est influencée par des processus de transport et de chimie se déroulant dans la troposphère, et en particulier dans la couche limite atmosphérique, zone d'interface entre la surface et la troposphère libre (cf. Fig. 1.3).

On peut décomposer l'évolution de la qualité de l'air au travers de 4 processus : les émissions, les réactions chimiques, le transport et le dépôt. L'étude de la qualité de l'air, c'est à dire l'étude des concentrations de polluants dans la couche limite atmosphérique, passe par la compréhension de chacun de ces processus.

### 1.2.2.1 Émissions

Les émissions constituent le processus de rejet de polluants (cf. section 1.3) dans l'atmosphère. On distingue différentes sources d'émissions :

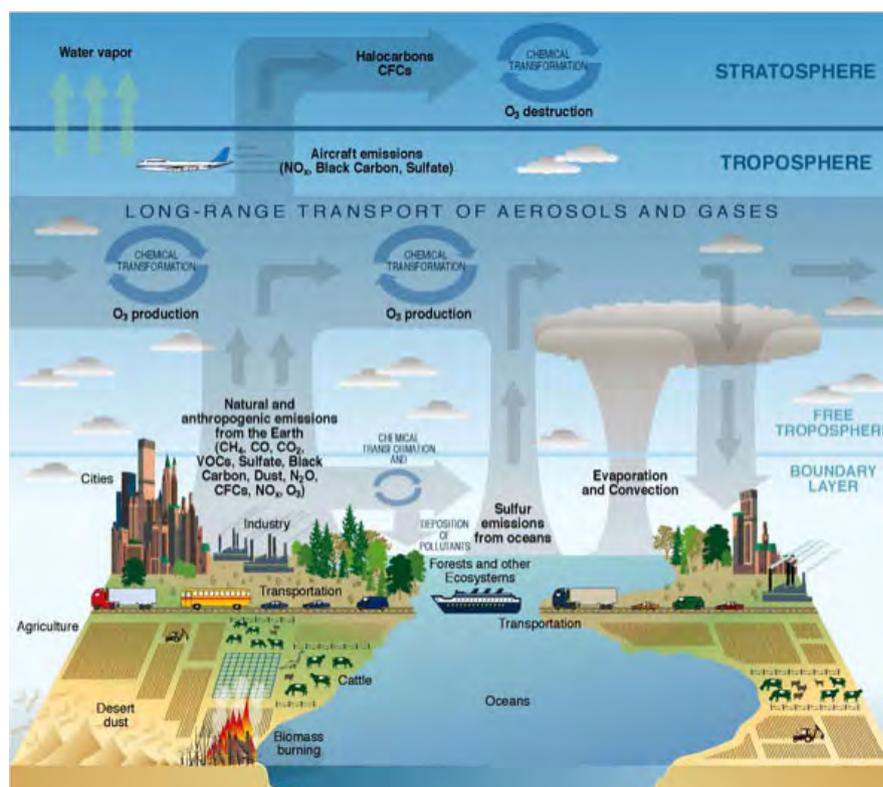


FIGURE 1.3 – Schéma représentant les processus dynamiques ayant lieu dans l'atmosphère et affectant la qualité de l'air. D'après P. Rekacewicz, July 2003.

- Les émissions anthropiques, c'est à dire les émissions produites par l'activité humaine, comme par exemple la combustion de ressources fossiles, l'emploi de pesticides pour l'agriculture, etc.
- Les émissions biogéniques, c'est à dire les émissions produites par des fonctions naturelles d'organismes biologiques, tels que la décomposition microbienne des matières organiques.
- Les émissions inorganiques, c'est à dire produites par des sources non-vivantes, tels les éruptions volcaniques ou encore les tempêtes de poussières désertiques.

Ce sont les cycles biogéochimiques qui déterminent les concentrations des éléments en traces, dont les polluants, dans l'atmosphère terrestre naturelle. Les cycles les plus importants étant ceux de l'eau ( $H_2O$ ), du carbone, de l'azote et du soufre, puisque ce sont ceux liés au vivant. La présence de ces constituants dans l'atmosphère est conditionnée par les processus d'émission (vue précédemment) et d'élimination (cf. section 1.2.2.2 et section 1.2.2.4) du réservoir atmosphérique. Actuellement les activités humaines perturbent de manière sensible l'ensemble de ces cycles biogéochimiques. L'étude des émissions renseigne donc sur l'état des cycles biogéochimiques et sur les impacts qu'ont les activités humaines sur ces cycles. Des bilans globaux des différentes sources d'émission de composés

du carbone, de l'azote, du soufre et des aérosols, sont réalisés à partir de diverses méthodologies qui permettent de réaliser les cadastres d'émission nationaux, indispensables à notre compréhension du système atmosphérique et à tout exercice de modélisation de la chimie atmosphérique ou de la qualité de l'air.

### 1.2.2.2 Réactions chimiques

Une réaction chimique représente la transformation de la matière : les espèces chimiques (réactifs) constituant la matière sont transformées en de nouvelles espèces chimiques (appelées produits de la réaction). La plupart des espèces émises dans l'atmosphère sont éliminées par des transformations chimiques. L'atmosphère est un milieu oxydant et ces transformations conduisent donc, pour l'essentiel, à une oxydation progressive des éléments (par exemple, du carbone en  $\text{CO}_2$ , de l'hydrogène en  $\text{H}_2\text{O}$ , de l'azote en  $\text{HNO}_3$ , du soufre en  $\text{H}_2\text{SO}_4$ ). L'oxydant majeur de l'atmosphère est le dioxygène  $\text{O}_2$ . Du point de vue des mécanismes réactionnels, cette oxydation atmosphérique suit des chemins complexes, passant par de nombreuses étapes, notamment de catalyse, et impliquant une multitude d'espèces. Une description complète de l'ensemble de ces étapes est une tâche considérable. Les processus impliqués sont en effet de natures très diverses : oxydation radicalaire en phase gazeuse initiée par le rayonnement solaire, oxydation en phase aqueuse au sein des gouttelettes nuageuses, chimie hétérogène à la surface des aérosols (particules en suspension dans l'atmosphère). De plus, ces transformations impliquent des échelles de temps (donc d'espace) extrêmement variables, de quelques fractions de seconde pour les espèces les plus réactives à plusieurs années pour les moins réactives.

La compréhension de l'évolution de la composition chimique de l'atmosphère est donc loin d'être aisée, cependant elle reste une étape indispensable dans l'étude de la qualité de l'air. En effet le temps de résidence dans l'atmosphère des gaz ou polluants émis à la surface, naturellement ou par l'activité humaine comme les oxydes d'azote, les composés halogénés ou les composés carbonés, dépend en premier lieu de la réactivité chimique de la troposphère. Ces composés peuvent alors réagir pour former des polluants dits secondaires (cf. section 1.3.2), par exemple l'ozone (cf. section 1.3.3), qui vont directement jouer un rôle sur la qualité de l'air, ou alors ils peuvent également, après avoir été transporté, jouer un rôle notable dans la chimie stratosphérique et déterminer en partie le climat de la planète en contribuant à son bilan radiatif.

### 1.2.2.3 Transport

Un autre processus jouant un rôle considérable dans la chimie atmosphérique, et la qualité de l'air, est le transport de polluants ou de leurs précurseurs. En effet, l'atmosphère est en mouvement permanent, gouvernée par trois forces principales : la gravité, la force de gradient de pression et la force de Coriolis. Ces mouvements sont capables de transporter des propriétés physiques ou chimiques d'un point à l'autre du globe, ces propriétés régissant l'évolution chimique de l'atmosphère. Ainsi, le transport pilote les réactions des espèces chimiques atmosphériques : en absence de transport, la composition chimique de l'atmosphère tendrait vers un équilibre photochimique, où production et destruction locales

des espèces s'équilibreraient.

De plus, le transport et l'évolution chimique dans l'atmosphère forment une boucle rétroactive. En effet, les temps de réactions chimiques sont, en partie, déterminés par la pression et la température, elles-mêmes soumises au transport. La distribution des espèces chimiques est donc fortement conditionnée par les processus de transport, et en retour, la distribution de ces espèces chimiques atmosphériques et leurs caractéristiques radiatives vont impacter à leur tour les processus de transport.

Le transport s'effectuant dans la couche limite convective atmosphérique est turbulent le jour, et va fortement brasser l'air à petites échelles, contribuant à la dilution des polluants. Les espèces chimiques transportées dans la troposphère libre, voire même dans la stratosphère, vont pouvoir être transportées sur des grandes échelles. C'est grâce, ou à cause, de ce transport à grande échelle que des polluants peuvent être retrouvés loin de leurs sources d'émission, si bien que les émissions dans une région peuvent provoquer des impacts environnementaux dans une autre région plus éloignée. Le transport à longue distance rend complexe les efforts réalisés pour contrôler la pollution dans l'air, car il est parfois hasardeux de distinguer les effets causés par des sources locales de ceux causés par des sources lointaines, rendant donc difficile de déterminer qui doit supporter les coûts de réduction des émissions. Du fait du transport à longue distance, la qualité de l'air est l'affaire de tous.

#### 1.2.2.4 Dépôt

Enfin, le dernier processus participant à la dynamique de l'évolution chimique de l'atmosphère est le dépôt. Le dépôt, comme son nom l'indique, regroupe les processus permettant à la matière en suspension dans l'air et de certaines espèces chimiques gazeuses de former un dépôt, et de se retrouver ainsi sur la surface. Ces dépôts participent alors à l'enrichissement ou à la pollution de l'éco-système en intégrant par exemple la chaîne alimentaire.

Le dépôt peut se produire soit par absorption ou captation directe à partir de réaction biochimique, comme la photosynthèse, soit également lors de phénomènes de condensation (dit processus de lessivage), tels que la pluie, la rosée, ou le givre. Les dépôts d'origine aérienne ou pluviale ainsi constitués, s'ils sont souvent discrets, peuvent localement lorsqu'ils sont chroniques (près de certaines industries polluantes, ports, mines, sources importantes de pollution routière, ou de zone d'agriculture intensive) être parfois une source majeure de pollution. Les quantités ainsi déposées par l'atmosphère participent significativement à la contamination des sols ou de l'eau, et donc de la biosphère. Les dépôts secs peuvent également, par ré-envol, se retrouver à nouveau dans l'atmosphère.

### 1.2.3 Le lien entre la qualité de l'air et les conditions climatiques

Pour terminer cette section, nous expliciterons le lien étroit qui existe entre la qualité de l'air et le climat, et le rôle de l'homme. En effet, l'apparition d'un épisode de mauvaise qualité de l'air, c'est à dire d'un air fortement chargé en polluants, est soumise à l'existence de conditions climatiques spécifiques, généralement amplifié par des forçages anthropiques

exacerbés.

En effet, si par exemple on s'intéresse aux épisodes de pollution à l'ozone (cf. section 1.3.3), ces derniers auront lieu principalement pour l'Europe en été au-dessus des villes. La période estivale est favorable aux réactions photochimiques sur les précurseurs de l'ozone, nécessaires à la production d'ozone, et les conditions anticycloniques assurent la stabilité de la masse d'air permettant le développement de la pollution à l'ozone. Si cette pollution se produit au-dessus des grandes villes, c'est parce que les précurseurs de l'ozone sont majoritairement émis par les activités humaines.

Un autre exemple, les épisodes de pollutions aux particules fines. En Europe, ces épisodes ont lieu généralement l'hiver au-dessus des grandes villes, lorsque les émissions d'origines anthropiques (combustion pour le chauffage et la production d'énergie, trafic routier, etc) sont maximales, et lorsque l'on a une inversion de température, c'est à dire lorsque de l'air très froid est pris au piège sous un « couvercle » d'air chaud, assurant ainsi la stabilité de la masse d'air et permettant aux particules fines de s'amasser.

Enfin, un dernier exemple, à nouveau des épisodes de pollution aux particules, mais cette fois-ci de type poussières désertiques. Ces épisodes sont souvent impressionnants, comme par exemple l'épisode qui a sévi sur Riyad en Mars 2009 (cf. Fig. 1.4). Bien que leurs origines soient naturelles, formées à partir des tempêtes de sables, l'homme y joue également un rôle important : une mauvaise gestion des sols et des ressources hydriques conduisent à la désertification. Ceci associé à l'urbanisation galopante conduit à augmenter l'occurrence et amplifier les tempêtes de sable s'abattant sur les grandes villes.



FIGURE 1.4 – Photo de l'épisode de poussières désertiques s'étant abattu sur la ville de Riyad en Mars 2009. Photo de Boyd Jones ([http://boydjones.blogspot.fr/2009/03/massive-sand-storm-hits-riyadh-saudi\\_1414.html](http://boydjones.blogspot.fr/2009/03/massive-sand-storm-hits-riyadh-saudi_1414.html)).

---

Au final, la qualité de l'air, du fait des processus atmosphériques, entretient une relation étroite et complexe avec les conditions climatiques. L'homme est assurément capable de modifier l'état de cette relation, et donc la qualité de l'air qu'il respire directement, ou encore du climat qui supporte la biosphère. La compréhension des processus régissant la qualité de l'air et le climat est donc une priorité pour l'homme, pour le développement de notre civilisation en synergie avec notre planète.

## 1.3 Les polluants atmosphériques

Comme nous l'avons vu précédemment, l'étude de la qualité de l'air implique la connaissance des concentrations de polluants présents dans la couche limite atmosphérique. Cette section est donc dédiée aux différentes classes de polluants, permettant d'identifier les principaux polluants, leurs origines et leurs sources. Il existe trois différentes classes de polluants : les polluants de sources primaires, les polluants de sources secondaires, et les particules fines (c'est à dire les aérosols de sources primaires ou secondaires). Nous détaillerons le polluant sur lequel se base ce travail de thèse : l'ozone.

### 1.3.1 Les polluants issus de sources primaires

Les polluants atmosphériques primaires sont la classe de polluants émis directement dans l'air à partir des sources. Ils ont des effets directs sur la qualité de l'air, mais ils peuvent également servir de précurseurs pour les polluants atmosphériques secondaires (cf. section 1.3.2). Les quatre principaux polluants issus de sources primaires sont le dioxyde de soufre  $\text{SO}_2$ , les oxydes d'azote  $\text{NO}_x$ , le monoxyde de carbone  $\text{CO}$ , et les composés organiques volatiles (COV).

#### 1.3.1.1 Le dioxyde de soufre

Le dioxyde de soufre ( $\text{SO}_2$ ) est un gaz formé lorsque le soufre est exposé à l'oxygène à des températures élevées, comme par exemple lors de la combustion des combustibles fossiles, le raffinage du pétrole, ou encore la fonte des métaux. Le  $\text{SO}_2$  est toxique pour l'homme à des concentrations élevées (cf. annexe C), mais ses principaux effets sur la pollution de l'air sont associés à la formation des pluies et des aérosols acides. En effet, le  $\text{SO}_2$  se dissout dans les gouttelettes d'eau formant les nuages et s'oxyde pour former de l'acide sulfurique ( $\text{H}_2\text{SO}_4$ ), qui peut alors retomber sur Terre sous forme de pluies acides ou de neige, ou encore former des particules d'aérosols sulfatés dans l'atmosphère. Les impacts associés à ces précipitations acides sont présentés dans l'annexe C.3.1, et plus de détails sur les particules d'aérosols sulfatés sont présents dans la section 1.3.4 traitant des particules fines.

#### 1.3.1.2 Les oxydes d'azote

Les oxydes d'azote  $\text{NO}_x$ , c'est à dire le monoxyde d'azote ( $\text{NO}$ ) et le dioxyde d'azote ( $\text{NO}_2$ ), sont des gaz hautement réactifs formés lorsque l'oxygène et l'azote réagissent à des températures élevées, comme par exemple durant des processus de combustion ou encore durant les orages lorsque la foudre tombe. Dans l'hémisphère Nord, aux moyennes latitudes, les émissions sont dominées par la combustion de combustibles fossiles, et notamment lors de la combustion de carburant dans les moteurs thermiques : l'azote présent dans le carburant s'oxyde et forme des oxydes d'azote. Au niveau des régions tropicales, les émissions sont cette fois-ci dominées par la combustion de biomasse.

Dans l'atmosphère, les oxydes d'azote réagissent avec les composés organiques volatils (COV) pour produire de l'ozone au niveau du sol à travers un mécanisme de réaction en

chaîne complexe (cf. section 1.3.3). Il peut alors être finalement oxydé en acide nitrique ( $\text{HNO}_3$ ), qui comme dans le cas de l'acide sulfurique, va contribuer aux dépôts acides via les pluies acides et la formation d'aérosols acides. Les oxydes d'azote ont également un impact direct sur la santé humaine (cf. annexe C).

### 1.3.1.3 Le monoxyde de carbone

Le monoxyde de carbone (CO) est un gaz inodore et incolore formé par la combustion incomplète du carbone dans les combustibles et le carburant. Les sources principales de monoxyde de carbone sont les véhicules automobiles, les procédés industriels et la combustion de la biomasse. Le monoxyde de carbone se lie à l'hémoglobine dans les globules rouges, ce qui réduit la capacité de ces globules à transporter et libérer de l'oxygène dans le corps. Une faible exposition au monoxyde de carbone peut aggraver les maladies cardiaques, tandis qu'une exposition élevée provoque des atteintes du système nerveux central allant jusqu'à entraîner la mort (cf. annexe C). De plus, le monoxyde de carbone, en tant que précurseur de l'ozone, joue également un rôle dans la production d'ozone (cf. section 1.3.3).

### 1.3.1.4 Les composés organiques volatils

Les composés organiques volatils (COVs), comme les hydrocarbures ( $\text{C}_x\text{H}_y$ ), ainsi que d'autres produits chimiques organiques, sont émis à partir d'un très large éventail de sources. On peut citer à nouveau comme sources principales la combustion de combustibles fossiles, les activités industrielles, la combustion de la biomasse durant les incendies, et les émissions naturelles de la végétation. Certains COVs anthropiques, tels que le benzène, sont des cancérigènes connus (cf. annexe C).

Les COVs sont des précurseurs chimiques de l'ozone et des aérosols au niveau du sol (cf. section 1.3.3). L'importance des COVs en tant que précurseurs dépend de leur structure chimique et de leur durée de vie dans l'atmosphère, qui peut varier considérablement d'un composé à un autre. Les COVs ayant les chaînes moléculaires les plus grandes s'oxydent dans l'atmosphère pour produire des produits chimiques non volatils qui se condensent pour former des aérosols. Les COVs à courte durée de vie interagissent avec les oxydes d'azote pour produire de l'ozone au niveau du sol, l'ozone ainsi produit peut atteindre des valeurs importantes dans des environnements fortement pollués. Le méthane ( $\text{CH}_4$ ) est le COV le plus simple et avec la plus longue durée de vie dans l'atmosphère (environ 12 ans). Il est d'une importance capitale car c'est à la fois un gaz à effet de serre qui a un pouvoir de réchauffement 25 fois supérieur au dioxyde de carbone, et parce qu'il est la principale source de fond de l'ozone troposphérique. Le méthane d'origine anthropique a pour sources la production et l'utilisation de gaz naturel, l'exploitation du charbon, l'élevage intensif, et les rizières.

## 1.3.2 Les polluants issus de sources secondaires

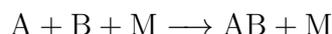
Maintenant que l'on a vu les principaux polluants de sources primaires, nous allons nous intéresser au polluants dits secondaires, c'est à dire les polluants qui se forment suite aux

réactions chimiques des polluants primaires dans l'atmosphère. On peut distinguer 4 types de réactions chimiques :

- Les réactions bi-moléculaires, où 2 réactifs réagissent ensemble pour former 2 produits de réaction :



- Les réactions à trois corps, où cette fois 2 réactifs réagissent pour former un unique produit de réaction, et où une troisième molécule (M), inerte, va stabiliser la réaction en enlevant l'énergie en excès :



- Les réactions de photolyse, où le rayonnement solaire va briser une liaison chimique dans une molécule :



- La décomposition thermique, où une molécule se décompose après avoir heurter une molécule inerte (M) :



La plupart des réactions atmosphériques se produisant à des taux élevées impliquent au moins un radical, c'est à dire une molécule avec un nombre impair d'électrons et donc un électron non apparié dans son enveloppe extérieure. L'électron non apparié rend le radical instable et hautement réactif avec les autres molécules. Ces radicaux se forment lorsque des molécules stables sont coupés en deux, un processus qui requiert de grandes quantités d'énergie, et qui peut avoir lieu dans les chambres de combustion en raison des températures élevées, ou encore dans l'atmosphère par photolyse :



La formation de radicaux initie les réactions en chaîne dans l'atmosphère. Ces réactions continuent jusqu'à ce que les radicaux se combinent avec d'autres radicaux pour produire des non-radicaux (c'est à dire des molécules avec un nombre pair d'électrons). Ces réactions en chaîne qui ont lieu dans l'atmosphère et qui impliquent l'utilisation de radical sont souvent appelés réactions photochimiques car la lumière du soleil joue un rôle prépondérant dans leur lancement en créant les radicaux.

L'un des radicaux les plus importants dans la chimie atmosphérique est le radical hydroxyl (OH), parfois appelé « le nettoyeur atmosphérique ». OH est principalement produit par les réactions de photolyse qui brisent l'ozone troposphérique, et a une durée de vie très courte. En effet, le radical OH a une durée de vie de l'ordre de la seconde, il est détruit en réagissant très rapidement avec les gaz traces, plus exactement en les oxydant. Les gaz traces avec lesquels OH réagit sont par exemple le monoxyde de carbone, le méthane, et les COVs non méthanique (COVNM). Certaines de ces réactions peuvent éventuellement régénérer OH en cycle continu, tandis que d'autres vont le détruire.

Du fait de la courte durée de vie atmosphérique de OH, sa concentration peut varier largement. Certaines émissions anthropiques, tels que le monoxyde de carbone et les COVs, détruisent OH, tandis que d'autres tels que les NO<sub>x</sub> vont augmenter la concentration en OH. La mesure du radical OH dans l'atmosphère est difficile parce qu'il est présent en concentration très faible, et les tendances sur l'évolution à long terme des concentrations de OH sont incertaines, bien qu'il soit admis qu'au cours des dernières décennies la situation soit restée stable du fait de la compensation des influences du monoxyde de carbone et des COVs d'une part et des NO<sub>x</sub> d'autre part. Le principal polluant secondaire formé dans la troposphère grâce au radical OH est l'ozone (Brasseur et al., 2003).

### 1.3.3 L'ozone

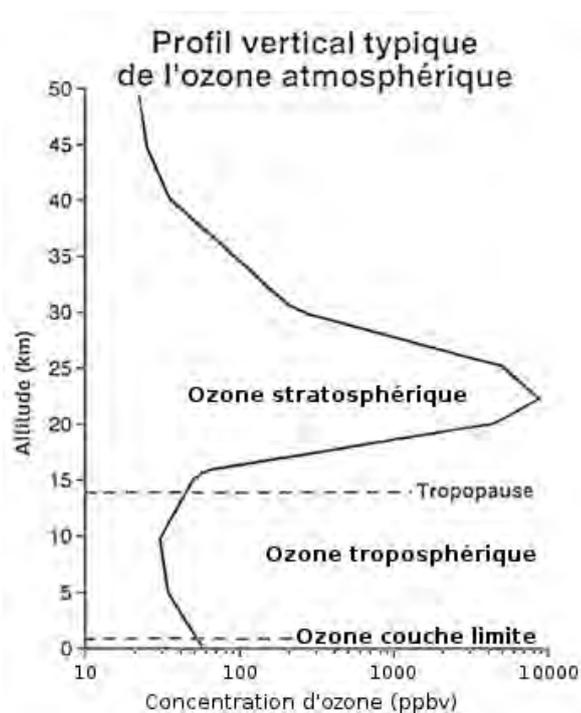


FIGURE 1.5 – Profil d'ozone moyen, en ppbv (partie par milliard par unité de volume), dans l'atmosphère, d'après <http://education.meteofrance.fr>.

L'ozone (O<sub>3</sub>) est un constituant chimique de l'atmosphère dont le rôle est particulier. En effet, du fait des dégâts qu'il peut engendrer sur la santé humaine et l'environnement (cf. annexe C), il est considéré comme un des polluants majeurs dans la couche limite atmosphérique. Cependant, c'est dans la stratosphère que se situe la majeure partie (environ 90 %) de la couche d'ozone (cf. section 1.2.1.4), et cette dernière joue un rôle crucial pour le développement de la vie sur Terre, en filtrant les rayons UV les plus énergétiques.

La structure verticale moyenne de l'ozone (on parle de profil d'ozone) est représentée

sur la figure 1.5. Nous distinguerons dans la suite l'étude de l'ozone stratosphérique, de l'ozone troposphérique et de l'ozone dans la couche limite atmosphérique.

### 1.3.3.1 L'ozone stratosphérique

Comme nous l'avons vu dans la section 1.2.1.4, l'ozone stratosphérique représente environ 90 % de la couche d'ozone et est bénéfique pour la vie sur Terre. L'ozone y est produit et détruit en permanence, via le cycle ozone-oxygène et la photodissociation par le rayonnement ultraviolet, et présente une forte stratification verticale avec un maximum autour de 8 ppmv à 25 km d'altitude.

L'ozone est principalement produit dans les régions équatoriales où le rayonnement solaire est suffisamment intense pour photolyser constamment l'oxygène moléculaire. Or, paradoxalement, la colonne totale d'ozone est maximale près des pôles. De plus, la colonne totale des hautes et moyennes latitudes n'est pas corrélée à la quantité de lumière disponible, puisqu'elle atteint son maximum pendant l'hiver et le printemps au lieu de l'été, et son minimum en automne au lieu de l'hiver. Ainsi la distribution spatiale et temporelle de l'ozone dans la stratosphère n'est pas simplement déterminée par l'équilibre photochimique entre sa production et sa destruction. Les mouvements dynamiques associés aux vents et à la circulation générale jouent en effet un rôle fondamental en redistribuant l'ozone à travers l'ensemble de la stratosphère.

L'ozone stratosphérique est depuis longtemps mesuré par des satellites utilisant des bandes dans l'ultraviolet ou dans l'infrarouge thermique et ayant une visée aux limbes (cf. section 1.5.2.2).

### 1.3.3.2 L'ozone troposphérique

L'ozone troposphérique voit son origine à partir d'inclusions d'air stratosphérique (environ 20 %) et de réactions photochimiques (environ 80 %). En effet, il est possible parfois que des masses d'air provenant de la stratosphère, riche en ozone, descendent et se diluent dans la troposphère, enrichissant ainsi cette dernière en ozone (El Amraoui et al., 2010; Zoogman et al., 2014). Les réactions photochimiques proviennent quant à elles principalement des basses couches de la troposphère, et notamment de la couche limite atmosphérique, dans lesquelles on retrouve l'essentiel des précurseurs de l'ozone.

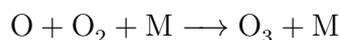
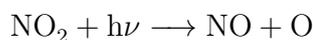
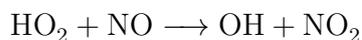
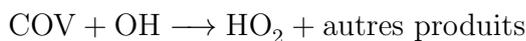
Dans la troposphère, on peut distinguer la formation de l'ozone à l'échelle locale, qui est due principalement à l'oxydation des COVs (dans les panaches de pollution des villes par exemple) et reste principalement confinée à la couche limite (cf. section 1.3.3.3). Et la formation de l'ozone à grande échelle plutôt causée par l'oxydation du méthane et du monoxyde de carbone qui va se dérouler dans toute la troposphère. En effet, ceci est lié au fait que les vitesses d'oxydation et donc les durées de vie des COVs dans l'atmosphère sont de quelques heures à quelques jours, beaucoup plus faibles que celle du monoxyde de carbone (2 mois) ou du méthane (10 ans). Le transport à longue distance ayant lieu dans la troposphère libre va ainsi contribuer à disséminer le méthane et le monoxyde de carbone

sur de grandes échelles (voir sur tout le globe), et ainsi contribuer à la formation d'ozone sur tout le globe. On parle alors de niveau de fond d'ozone, c'est à dire la concentration d'ozone en l'absence d'émissions de précurseurs provenant de sources locales.

Depuis quelques années, la mesure de l'ozone troposphérique est devenue possible à l'aide de satellites utilisant des bandes dans l'infrarouge thermique et ayant une visée au nadir (cf. section 1.5.2.2 et section 1.5.3). Cependant, ce type de visée implique également le sondage de la stratosphère, il faut donc associer à la mesure des algorithmes performants permettant de séparer la contribution majeure de l'ozone stratosphérique et la contribution mineure de l'ozone troposphérique.

### 1.3.3.3 L'ozone dans la couche limite atmosphérique

L'ozone dans la couche limite atmosphérique est un polluant secondaire particulièrement nuisible. À la fois toxique pour les humains et la végétation (cf. annexe C), il se forme principalement par oxydation des composés organiques volatiles en présence de  $\text{NO}_x$ , des précurseurs de l'ozone dont l'origine est principalement anthropogénique. Le mécanisme est complexe, impliquant des centaines d'espèces chimiques interagissant entre elles pour décrire les processus dégradant les COVs. On peut cependant considérer le schéma simpliste suivant :



Un aspect important de ce mécanisme est que les  $\text{NO}_x$  et OH agissent comme des catalyseurs, c'est à dire qu'ils accélèrent la vitesse de génération d'ozone sans être eux-mêmes détruits par la réaction. Au lieu de cela, ils font un cycle rapidement entre NO et  $\text{NO}_2$ , et entre OH et  $\text{HO}_2$ .

La formation de l'ozone dans la couche limite, en plus d'impliquer ses précurseurs COVs et  $\text{NO}_x$ , nécessite la présence de photons pour la réaction de photodissociation sur le dioxyde d'azote produisant l'oxygène moléculaire. Au final, l'ozone suit donc un cycle diurne (cf. Fig. 1.6) avec une augmentation rapide le matin (grâce aux émissions, liés aux activités humaines, des précurseurs de l'ozone, et à la présence de photons), l'ozone atteint un maximum l'après-midi, et diminue après le coucher du soleil. Les vitesses de réactions entre la formation des précurseurs et la production d'ozone rendent ce cycle diurne fortement variable spatialement et temporellement, et peuvent conduire dans certains cas à la formation excessive d'ozone, on parle alors de « pic d'ozone ».

On constate un intérêt croissant pour la mesure de l'ozone dans la couche limite, afin de surveiller la qualité de l'air, à partir de satellites géostationnaires (cf. section 1.5.3), afin de permettre d'avoir un suivi satisfaisant de l'évolution spatio-temporelle de l'ozone dans la couche limite. Cependant, réaliser une telle mesure représente un véritable défi.

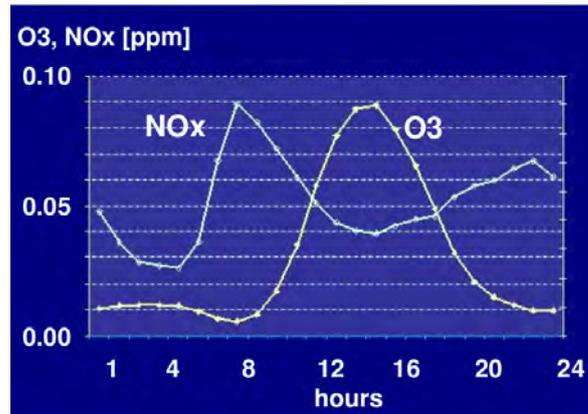


FIGURE 1.6 – Exemple du cycle diurne de l’ozone ( $O_3$ ) dans la couche limite atmosphérique et des oxydes d’azote ( $NO_x$ ) lors d’une journée au-dessus de Mexico City. D’après le cours « Atmosphère et climat » donné par le LPAS-EPFL.

En effet, la mesure de l’ozone dans la couche limite depuis un satellite géostationnaire implique d’être capable de mesurer une infime variation d’ozone au plus près du sol, à travers la totalité de la couche d’ozone. Seul le couplage de plusieurs bandes spectrales d’instruments de mesures particulièrement précis, associé à des algorithmes d’inversion de données extrêmement performants, peut permettre de dissocier les contributions de l’ozone dans la couche limite des autres contributions dans le signal mesuré. C’est dans ce contexte que s’inscrit ce travail de thèse, en proposant d’évaluer les capacités d’un instrument à bord d’un satellite géostationnaire couplant une bande dans l’infrarouge thermique et une bande dans le visible, dans le but de mesurer l’ozone dans la couche limite.

### 1.3.4 Les particules fines

Il n’y a pas que les gaz présents dans l’atmosphère qui peuvent être considérés comme des polluants. L’atmosphère contient également des particules solides ou liquides en suspension dans l’air. Ces particules sont appelées aérosols ou particules fines (en anglais, Particulate Matter -PM-). Les aérosols dans l’atmosphère mesurent généralement entre 0,01 et 10 micromètres de diamètre, soit une fraction de la largeur d’un cheveu humain. La plupart des aérosols se trouve dans la basse troposphère, où ils ont un temps de séjour de quelques jours. Ils disparaissent de l’atmosphère par lessivage, lorsque la pluie ou la neige les transportent jusqu’au sol, ou encore, les plus grosses particules peuvent se déposer d’elles-mêmes à la surface, contraintes par la gravité.

Les particules ou aérosols de grandes tailles (généralement de 1 à 10 micromètres de diamètre) sont produits par les vents, qui en soufflant propulsent le sel de mer, la poussière et autres débris dans l’atmosphère. En ce qui concerne les particules ou aérosols plus fins, c’est à dire d’un diamètre inférieur à 1 micromètre, ces derniers sont principalement produits lorsque des gaz précurseurs se condensent dans l’atmosphère. Les principaux composants

de ces aérosols fins sont le sulfate, le nitrate, le carbone organique et le carbone élémentaire. Le sulfate, le nitrate, et les particules de carbone organique sont produits par l'oxydation atmosphérique du  $\text{SO}_2$ , des  $\text{NO}_x$ , et des COVs. Les particules de carbone élémentaire sont émises par la combustion, qui est également une source majeure de particules de carbone organique. Les particules de carbone émises par la combustion et qui sont capables d'absorber la lumière sont appelées particules de carbone noir ou encore particules de suie. Ces particules jouent un rôle prépondérant dans le changement climatique et sont également soupçonnées d'être particulièrement dangereuses pour la santé humaine.

Les particules fines présentes dans l'atmosphère interagissent fortement avec le rayonnement, notamment en diffusant la lumière, c'est à dire en modifiant la direction de propagation du rayonnement sans pour autant l'absorber. C'est ce mécanisme de diffusion par les particules fines qui est la cause principale de la limitation de la visibilité dans l'atmosphère. En effet, alors que les molécules d'air sont inefficaces pour diffuser la lumière visible (cf. section 2.3), puisque leurs tailles sont des ordres de grandeur plus petites que les longueurs d'onde du visible, compris entre 0,4 et 0,8 micromètres, les particules fines sont quant à elles des diffuseurs efficaces. De plus, lorsque l'humidité relative est élevée, les aérosols absorbent l'eau provoquant ainsi leur gonflement et augmentant leur section efficace de diffusion, c'est ainsi qu'est créé la brume ou le brouillard. Sans pollution par les aérosols, notre portée visuelle serait typiquement de 300 km, mais dans le cas de brouillard, la visibilité est réduite de manière significative puisqu'elle peut devenir bien inférieure au kilomètre.

Actuellement, un des défis importants pour la recherche concerne l'étude des aérosols organiques, qui représentent entre un tiers et la moitié de la masse totale des aérosols. Notre connaissance concernant l'importance relative des différentes sources d'émission de ces aérosols est encore très incertaine. Ces aérosols organiques sont émis directement dans l'atmosphère lors de processus de combustion, notamment les automobiles, les poêles à bois, les feux agricoles et feux de forêt. De plus, l'oxydation atmosphérique des COVs, anthropiques ou biogéniques, est également une source importante d'émission d'aérosols organiques en été. Les aérosols organiques regroupent une variété de composés carbonés ayant diverses propriétés physiques, chimiques, et pouvant avoir des impacts environnementaux tout aussi variés. La limitation de nos connaissances à leurs sujets réduit notre capacité à évaluer l'influence anthropique dans les émissions de ces particules, et à élaborer des stratégies permettant de réduire leurs concentrations.

Pour conclure cette section, l'ozone et les aérosols sont les deux principaux dangers pour la santé (cf. annexe C) lors d'épisodes de pollution due à la photochimie. Des cas récents d'épisodes de pollution aux particules fines, ont eu lieu sur la ville de Paris en Mars 2014 et sur la ville de Pékin durant l'hiver 2013, comme en témoigne les photos de Paris, prises en Mars 2010 et en Mars 2014, et celles de Pékin prises durant l'hiver 2013 (cf. Fig. 1.7).



FIGURE 1.7 – Illustration de la pollution aux particules fines. En haut, photo de Paris, à gauche journée en Mars 2010 sans épisode de pollution, à droite journée en Mars 2014 correspondant à un épisode de pollution. En bas, photos de Pékin durant l’hiver 2013. Photos tirées du site [www.lemonde.fr](http://www.lemonde.fr).

## 1.4 Normes et seuils de la qualité de l'air en Europe

Du fait de la prise de conscience des populations sur les enjeux de la qualité de l'air, notamment depuis les 30 dernières années, les gouvernements ont été amenés à légiférer sur le sujet. Un exemple, avec la France, est la loi LAURE (Loi sur l'Air et l'Utilisation Rationnelle de l'Energie) du 30 décembre 1996, qui stipule que « tout citoyen doit pouvoir être en mesure de respirer un air qui ne nuise pas à sa santé ». Cette loi implique la mise en place de systèmes de mesure, de surveillance et de prévision de la qualité de l'air, ainsi que la définition de seuil de concentration acceptable pour chaque polluant atmosphérique, et de moyens de prévention, de lutte, contre une mauvaise qualité de l'air. Nous allons voir dans cette section, plus en détail, à quels niveaux les politiques sont impliqués dans la lutte contre la pollution atmosphérique.

### 1.4.1 Les normes européennes

L'implication première des gouvernements consiste à mettre en place au niveau international et national ce que l'on appelle des normes pour la qualité de l'air. C'est à dire des seuils de concentration journalière, horaire, annuelle, à respecter pour assurer une qualité de l'air la moins préjudiciable possible.

Pour l'Europe, il existe des directives, notamment la 2004/107/CE du 15 décembre 2004 et la 2008/50/CE du 21 avril 2008, chargées de spécifier les normes concernant les principaux polluants atmosphériques, à respecter dans tous les pays membres sous peine de sanction économique. Le tableau 1.1 présente la valeurs des normes actuelles.

TABLE 1.1 – Tableau récapitulatif des normes européennes de la qualité de l'air.

| Polluants       | Normes Européennes  |
|-----------------|---|
| O <sub>3</sub>  | Moyenne sur 8 heures : 120 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .<br>Seuil d'information : 180 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne horaire.<br>Seuil d'alerte : 240 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne horaire.  |
| PM10            | Moyenne annuelle : 40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .<br>Moyenne journalière : 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ à ne pas dépasser plus de 35 jours par an.  |
| PM2.5           | Moyenne annuelle : 20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .  |
| CO              | Moyenne sur 8 heures : 10 000 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .  |
| SO <sub>2</sub> | Moyenne journalière : 125 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ à ne pas dépasser plus de 3 jours par an.<br>Moyenne horaire : 350 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ à ne pas dépasser plus de 24 heures par an.<br>Seuil d'alerte : 500 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne horaire sur 3 heures consécutives. |
| NO <sub>2</sub> | Moyenne annuelle : 40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .<br>Moyenne horaire : 200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ à ne pas dépasser plus de 18 heures par an.<br>Seuil d'alerte : 400 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne horaire sur 3 heures consécutives.   |

Ces normes sont révisées périodiquement afin de tenir compte des dernières connaissances scientifiques, et sont établies à partir des recommandations de l'OMS (cf. annexe

C.2.3) et d'autres expertises scientifiques indépendantes.

Les normes européennes représentent le premier niveau d'imbrication, et par conséquent, sont également les normes les moins contraignantes que chacun des pays membres est contraint de respecter. Ensuite, au niveau national et même local, il existe d'autres normes qui peuvent prendre le pas sur les normes européennes. Dans l'étude réalisée au chapitre 3, nous tenons compte du seuil européen pour l'ozone moyenné sur 8 heures fixé à  $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .

La stratégie de l'Europe vis à vis de la qualité de l'air, en se basant sur ces normes, vise à :

- Éviter, prévenir, ou réduire les effets nocifs pour la santé humaine et pour l'environnement dans son ensemble.
- Mettre en place une base de méthodes et de critères communs pour évaluer la qualité de l'air en Europe.
- Collecter les informations sur la qualité de l'air susceptibles d'aider à lutter contre la pollution de l'air et les nuisances, et de surveiller les tendances à long terme et les améliorations obtenues grâce aux mesures nationales et communautaires.
- Permettre la diffusion et la mise à disposition du public des informations sur la qualité de l'air.
- Préserver la qualité de l'air lorsqu'elle est bonne, et l'améliorer dans les autres cas.

Implicitement, la mise en place de ces normes sous-entend l'existence d'une capacité de mesure au sein de chaque pays membre, mais également d'organismes chargés de la régulation et du contrôle du bon respect de ces normes.

### 1.4.2 Les organismes de régulation

Au sein des pays membres de l'union européenne, la surveillance de la qualité de l'air, et du bon respect des normes, est généralement effectuée par des services spécialisés des organismes d'états (ministère de l'environnement ou équivalent). En France, la surveillance de la qualité de l'air est confiée aux Associations Agréées de la Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA).

Les AASQA sont des organismes français, mesurant et étudiant la pollution atmosphérique au niveau de l'air ambiant, préalablement agréées par le ministère de l'écologie et du développement durable, pour communiquer officiellement leurs résultats. Par décret ministériel, elles ont obligatoirement le statut d'association à but non lucratif, et il doit y avoir au moins une AASQA par région administrative française. Toutes les AASQA sont regroupées au sein de la Fédération Atmo France.

Les AASQA assurent la surveillance de la qualité de l'air, en utilisant les dispositifs fixes de mesures de façon journalière, mais également en réalisant des campagnes de mesures et des cadastres d'émission, ou encore en modélisant la pollution de l'air au-dessus d'une région donnée. Toutes ces données permettent de fournir des représentations cartographiques

de la pollution. En plus de ce travail, les AASQA doivent diffuser un indicateur global de la qualité de l’air (appelé indice ATMO), mis à la disposition de la population, pour les agglomérations de plus de 100 000 habitants. Dans le cas des villes de moins de 100 000 habitants, les AASQA doivent réaliser ce que l’on appelle l’Indice de la Qualité de l’Air simplifié (IQAs), calculé à partir des stations « urbaines » et « péri-urbaines » représentatives des zones de pollution homogène. Ces indicateurs prennent en compte les mesures de quatre polluants (les particules fines, le dioxyde de soufre, le dioxyde d’azote, et l’ozone), qui en fonction de leurs concentrations sont classés sur une échelle allant de 1 pour très bon, à 10 pour très mauvais. Le plus élevé de ces quatre sous-indices donne l’indice ATMO de la journée. Des données cartographiques en temps réel peuvent compléter la diffusion de cet indice, à ce titre, la plateforme PREV’AIR ([www.prevair.org](http://www.prevair.org)) s’occupe de réaliser au niveau national des cartographies journalières de la pollution de l’air, et également de produire des prévisions grâce à des modèles numériques.

Dans leur travail, les AASQA sont épaulées par le Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l’Air (LCSQA) qui intervient en tant qu’appui scientifique et technique. Le LCSQA est formé de l’Ecole des Mines de Douai (EMD), de l’Institut National de l’Environnement Industriel et des RISques (INERIS), et du Laboratoire National d’Essais (LNE). Le LCSQA contribue à améliorer la qualité des mesures des AASQA et à assurer la liaison entre la recherche et les applications sur le terrain.

### 1.4.3 Projet européen pour la qualité de l’air : Copernicus

Pour terminer cette section, nous allons nous intéresser au grand projet européen de surveillance de la Terre afin de lutter contre les risques environnementaux : Copernicus. Connu anciennement sous le nom de GMES (Global Monitoring for Environment and Security), ce projet est une initiative conjointe de l’Agence Spatiale Européenne (ESA) et de l’Union Européenne, qui vise à doter l’Europe d’une capacité opérationnelle et autonome d’observation de la Terre. En effet, l’objectif de Copernicus est de rationaliser l’utilisation de données relatives à l’environnement et à la sécurité issues de sources multiples, et de les rassembler, afin de disposer d’informations et de services fiables chaque fois que cela est nécessaire. En d’autres termes, Copernicus permettra in fine de regrouper l’ensemble des données obtenues à partir de satellites environnementaux et d’instruments de mesure sur site, afin de produire une vue globale et complète de l’état de notre planète.

Bien entendu, ce sont les décideurs politiques qui seront les principaux utilisateurs du programme Copernicus, en leur permettant de préparer les législations nationales, européennes et internationales relatives à l’environnement (y compris celles sur le changement climatique) et de vérifier la bonne application de ces législations.

Copernicus s’appuie sur quatre « piliers » :

- La composante spatiale (constituée de satellites d’observation du sol, des océans et de l’atmosphère).
- La composante in-situ (constituée d’instruments de mesure au sol ou aériens mesurant des paramètres relatifs à l’état des océans, du sol et de l’atmosphère).

- La composante normalisation et harmonisation des données.
- La composante des services à l'utilisateur.

L'ensemble des services d'information offert par le programme Copernicus concerne six thématiques principales : le sol, les océans, le traitement de l'urgence, l'atmosphère, la sécurité et le changement climatique. Les services relatifs au sol, aux océans et au traitement de l'urgence et ceux relatifs à l'atmosphère et à la sécurité (aussi appelés « services pilotes ») ont été officiellement lancés à l'occasion du Forum Copernicus qui s'est déroulé à Lille en septembre 2008, et deviendront pleinement opérationnels à l'horizon 2015.

Finalement, en Juillet 2013, le parlement européen a approuvé le cadre financier pluriannuel pour la période 2014-2020, allouant environ 4 milliards d'euros au projet Copernicus. Cette enveloppe couvrira principalement les frais d'exploitation des trois premiers satellites Sentinel, avec Sentinel-1A lancé avec succès le 3 Avril 2014, et les prochains lancements de Sentinel-2A et Sentinel-3A, prévus en 2015. C'est grâce à ce genre d'initiative, que l'on peut espérer voir notre connaissance et notre capacité de prévision de la qualité de l'air se développer suffisamment, pour permettre de prendre les meilleures décisions possibles pour assurer la sauvegarde de la population et de l'environnement à long terme.

## 1.5 La mesure de la qualité de l’air et en particulier de l’ozone

Au final, la surveillance de la qualité de l’air implique d’être capable de mesurer les concentrations des principaux polluants atmosphériques à une résolution spatio-temporelle proche voire meilleure que la variabilité de ces concentrations. Des études ont déjà montré que pour mesurer, étudier, et comprendre, l’évolution de la qualité de l’air, il faut mesurer les concentrations de polluants atmosphériques avec une résolution temporelle autour de l’heure, et une résolution spatiale proche de la dizaine de kilomètres (Fishman et al., 2008; Martin, 2008; Lahoz et al., 2012). Bien entendu, cette surveillance doit se faire à l’échelle globale, partout où les hommes sont présents, en insistant en particulier sur les grandes métropoles. À ces fins, on peut distinguer deux types de moyens de mesures, les mesures in-situ, et les mesures par télédétection.

### 1.5.1 Les mesures in-situ

Le premier grand type de mesure sont les mesures dites in-situ. Comme le nom l’indique, ce sont les mesures réalisées sur place, c’est à dire que le capteur ne va analyser que la masse d’air dans laquelle il se trouve directement au contact.

#### 1.5.1.1 Les différents capteurs

Il existe différents types de capteurs pour mesurer la pollution atmosphérique, et notamment l’ozone :

- Analyseur par colorimétrie : c’est la méthode la plus simple et la moins coûteuse. L’échantillon d’air à analyser passe dans un tube contenant un réactif dont la couleur va changer en fonction de la concentration de l’espèce chimique à analyser. La lecture de la concentration se fait ensuite, grâce à une échelle colorimétrique, par comparaison de couleur entre l’échelle et le contenu du tube. Les problèmes majeurs de cette technique sont le manque de précision et le temps nécessaire (plusieurs minutes) pour réaliser une seule mesure.
- Sonde électrochimique : cette méthode porte également sur l’analyse d’un échantillon d’air passant dans un tube contenant un réactif. Cependant cette fois-ci la réaction chimique se déroulant entre l’espèce chimique à analyser et le réactif va entraîner la création d’un léger courant électrique, dont l’intensité va varier en fonction de la concentration de l’espèce à analyser. La mesure du courant électrique nous donne alors l’information de la concentration. La mesure peut se dérouler en continu tant que le tube contient du réactif, assurant ainsi un suivi temporel de l’évolution de la concentration. Les inconvénients de cette méthode sont le coût qui en fonction de la performance de l’appareillage et de sa durée de vie peut devenir important, la sensibilité à d’autres gaz qui va venir entacher la précision de la mesure, et la nécessité de remplacer le réactif périodiquement.
- Capteur à semi-conducteurs : ces capteurs utilisent une pièce de matériau semi-conducteur dont les caractéristiques électriques varient en fonction de la concentration

de l'espèce chimique à analyser dans l'air. Les capteurs actuels sont munis de couches protectrices sélectives qui diminuent leurs sensibilités aux autres gaz, et ont des temps de réponses rapides (quelques dizaines de secondes), permettant d'assurer ainsi des mesures précises dans le temps. Plusieurs technologies de capteurs à semi-conducteurs existent, jouant sur la solidité et la fiabilité des détecteurs, leurs précisions, et leurs consommation d'énergie et durée de vie.

- Analyseur par absorption spectrale : ces capteurs sont de loin les plus coûteux, mais ont l'avantage d'être extrêmement précis et rapides (mesure en moins d'une seconde). Pour se faire ils utilisent la loi de Beer-Lambert, l'intensité du rayonnement diminue exponentiellement en fonction de la distance parcourue et de la concentration des espèces absorbantes.

Au final, l'utilisation d'un capteur plutôt qu'un autre est un compromis à faire entre la qualité des mesures et leurs précisions, la vitesse d'acquisition de la mesure, et le coût de l'instrument et de la mise en opération.

Ces différents capteurs opèrent généralement au sol, dans ce qu'on appelle les stations sol (cf. section 1.5.1.2), pour mesurer les constituants chimiques pour la qualité de l'air dans la masse d'air directement en contact avec la population. Également, ces capteurs sont parfois embarqués à bord de ballons ou d'avions, pour réaliser des mesures dites aéroportées (cf. section 1.5.1.3), qui servent alors à étudier les propriétés de la masse d'air sur une étendue spatiale (verticale comme horizontale) beaucoup plus importante. Les mesures aéroportées veulent répondre directement au besoin de connaître la stratification des masses d'air et leurs évolutions, que la mesure trop locale des stations sols ne peut hélas donner. Cette connaissance de la stratification et de la dynamique des masses d'air est un pré-requis pour espérer améliorer sensiblement les modèles de qualité de l'air.

### 1.5.1.2 Les stations sols

En France, plus de 670 stations sol sont chargées de mesurer en continu, ou de manière périodique, les concentrations en polluants atmosphériques de l'air extérieur ambiant. La figure 1.8 représente la répartition de ces stations en Europe, et un zoom est fait autour de la région Midi-Pyrénées. On constate qu'un effort est fait pour implanter ces stations sol sur les zones les plus à risques comme les grandes métropoles et les zones industrielles. Cependant malgré le nombre important de stations en Europe, la couverture spatiale est loin d'être suffisante, et certaines régions entières d'Europe ne sont pas couvertes, principalement les agglomérations étendues, et les zones rurales.

### 1.5.1.3 Les mesures aéroportées (ballons, avions)

Les mesures aéroportées sont les mesures effectuées lorsque les capteurs sont embarqués sur des ballons ou des avions. Ces mesures, à l'instar des stations sol, permettent de fournir une information précise sur les masses d'air traversées. On peut ainsi obtenir une représen-

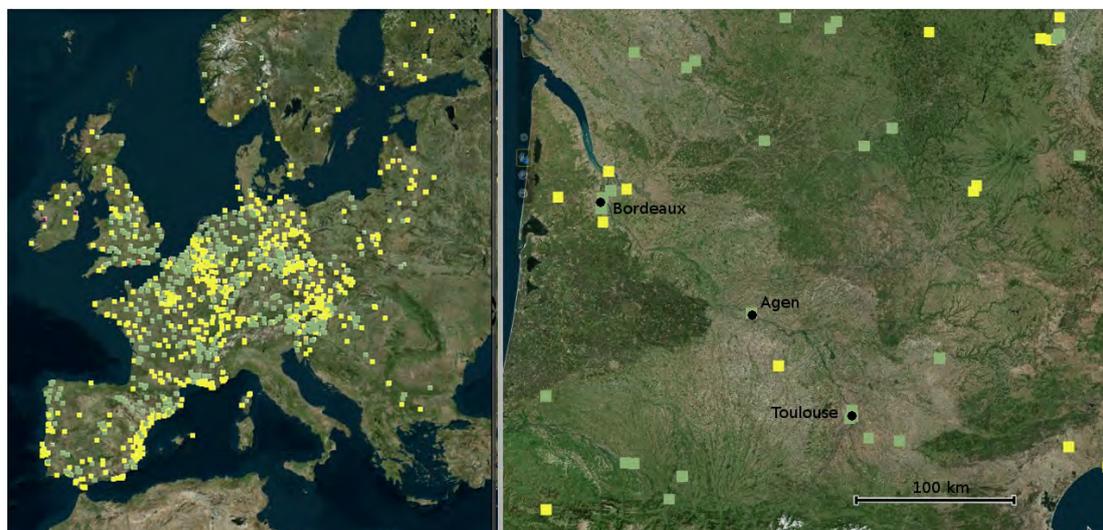


FIGURE 1.8 – Répartition des stations sol mesurant la qualité de l'air. (À gauche) En Europe. (À droite) Zoom autour de la région Midi-Pyrénées. Les couleurs n'ont pas de significations particulières. D'après <http://www.eea.europa.eu/themes/air/air-quality/map/real-time-map>.

tation de la stratification d'une masse d'air ou de son étendue spatiale.

Dans le cas des mesures ballons, les capteurs embarqués sont généralement des capteurs électro-chimiques à courte durée de vie, car ils sont peu chers. En France, il n'y a que peu de sites proposant un lâcher de ballon régulier (hebdomadaire), dans le but de mesurer les paramètres thermodynamiques et les concentrations des espèces chimiques atmosphériques, comme par exemple à l'Observatoire de Haute Provence (OHP). Pour l'essentiel de ces lâchers de ballons, on utilise des ballons en composés élastiques du type latex, néoprène ou polyéthylène. Le ballon est gonflé avec de l'hélium de façon à avoir une vitesse ascensionnelle d'environ 5 m/s, il est ensuite fermé et lâché. Le ballon va avec l'altitude, la pression diminuant, se distend, jusqu'à ce qu'il éclate aux alentours de 10 à 35 km d'altitude. Ces ballons permettent ainsi de réaliser un profil vertical atmosphérique en quelques dizaines de minutes. Il existe d'autres types de ballons pour des usages plus spécifiques, comme par exemple les ballons plafonnants dans la couche limite qui sont dotés d'une enveloppe rigide et évoluent à pression (donc altitude) constante, assurant ainsi le suivi de l'évolution d'une masse d'air pendant plusieurs semaines.

Dans le cas des mesures avions, ces dernières ont les avantages de pouvoir embarquer plus de matériel, généralement plus coûteux (du fait que les mesures peuvent être répétitives) et plus précis, et de pouvoir aller explorer les masses d'air à la convenance de l'opérateur. Cependant ce type de mesures est généralement rare, car elles sont essentiellement effectuées lors de campagnes scientifiques dédiées. Il est difficile d'obtenir des autorisations de vol, et elles coûtent très chers. On peut cependant noter que depuis 1993, le programme

MOZAIC (Measurement of OZone and water vapour by AIrbus in-service airCRAFT) mesure automatiquement l'ozone, la vapeur d'eau, le monoxyde de carbone, et les oxydes d'azote, à partir d'instruments à bord d'avions civils longs courriers. Cependant l'exploration de la masse d'air reste limitée au décollage, à l'atterrissage, et à l'altitude de croisière (entre 9 et 12 km) de l'avion.

Enfin, j'ai eu la chance durant mes travaux de thèse de participer à la campagne de mesure TRAQA (TRAnsport à longue distance et Qualité de l'Air ; pré-campagne ChArMEx), qui avait pour objectifs de caractériser des événements d'exports de pollution au-dessus du bassin méditerranéen, lors de conditions de mistral. Pour cela, la campagne de mesure s'est déroulée dans la région de Fos-sur-mer, à proximité d'un site à hautes émissions polluantes, sur alerte météorologique (lors de conditions de mistral), durant les mois de Juin et Juillet 2012. Une station sol éphémère a été aménagée afin de réaliser, en continu durant la campagne, les mesures au sol des paramètres météorologiques ainsi que des valeurs d'ozone. L'équipe bénéficiait d'une dizaine de ballons sondes classiques équipés de capteurs météorologiques et de capteurs d'ozone (sondes électrochimiques), ainsi que de 5 ballons plafonnants dans la couche limite (cf. Fig. 1.9). En plus des mesures ballons, la campagne TRAQA a bénéficié en simultanée de mesures avions, réalisées par l'ATR-42, afin d'échantillonner la même masse d'air que celle suivie par les ballons plafonnants.



FIGURE 1.9 – Photo prise lors de la campagne TRAQA réalisée en Juin et Juillet 2012, en fond on distingue un ballon plafonnant dans la couche limite s'apprêtant à être lancé.

L'apport des mesures obtenues avec les stations sol et les mesures aéroportées, pour

la qualité de l'air, est évident. Cependant, l'information locale qu'elles fournissent, et la rareté des mesures aéroportées, ne permettent pas à elles seules de cerner l'évolution globale de la pollution atmosphérique. De plus il n'est pas convenable de penser pouvoir couvrir l'ensemble de l'Europe avec ce type de mesures sans devoir payer un coût prohibitif. Il faut donc se tourner vers un autre moyen de mesure si l'on veut pouvoir un jour suivre la pollution atmosphérique dans sa globalité.

### 1.5.2 Les mesures par télédétection

Le deuxième type de mesures possibles sont les mesures par télédétection, ou encore mesures dites « à distance ». La télédétection atmosphérique est l'étude à distance de l'atmosphère à partir des caractéristiques du rayonnement qui s'y propage. En effet, le rayonnement interagit avec les espèces chimiques présentes dans l'atmosphère (par absorption, diffusion, émission, cf. section 2.3). Ainsi en mesurant le rayonnement, on obtient une information indirecte sur les concentrations des espèces chimiques présentes dans l'atmosphère. Pour pouvoir exploiter cette information, et remonter à la distribution de la concentration de l'espèce chimique à analyser on doit passer par la modélisation du transfert radiatif (cf. section 2.3) et des algorithmes d'inversion de données (cf. section 2.5). Les domaines spectraux utilisés pour les mesures par télédétection atmosphérique vont de l'ultraviolet aux ondes radio. De plus, il existe deux types de techniques de télédétection : la télédétection passive dans laquelle on utilise une source de rayonnement externe au système d'observation (généralement le soleil), et la télédétection active, dans laquelle on est maître de la source de rayonnement qui est générée par le système.

Les mesures de télédétection passive sont réalisées via des spectromètres. Les spectromètres sont des instruments capables de décomposer la lumière incidente en raies spectrales, mesurant ensuite la quantité de rayonnement présente dans chacune de ces raies. On distingue plusieurs types de spectromètres (ceux à prisme, ceux à réseaux, ou ceux utilisant les deux -les grismes-, les spectromètres à transformée de Fourier, etc) faisant intervenir des techniques de mesure soit par dispersion, soit par transformée de Fourier. Plus de détails sont donnés dans la section 1.5.2.1. Dans tous les cas, l'objectif in fine est le même, mesurer aussi précisément que possible la quantité de photons appartenant à une raie spectrale donnée, aussi fine que possible. Ensuite, c'est un traitement complexe réalisé par les algorithmes d'inversion de données qui va permettre d'extraire de l'information spectrale les valeurs des concentrations des espèces chimiques à analyser et leurs distributions.

Les mesures de télédétection active sont réalisées par des LiDARs (Light Detection And Ranging) ou RADAR (RADIO Detection And Ranging, pour le rayonnement dans les longueurs d'onde radio). Le principe du LiDAR est basé sur l'émission active de photons dans l'atmosphère au moyen d'un laser pulsé, et de la mesure des photons rétrodiffusés par l'atmosphère résultant de la diffusion atmosphérique élastique et inélastique. C'est un système composé de un ou plusieurs télescopes paraboliques et de photo-multiplicateurs qui est chargé de mesurer ces photons rétro-diffusés. Ensuite l'analyse des caractéristiques de l'émission, et des photons rétro-diffusés reçus permet de calculer les valeurs de différents composés ou paramètres atmosphériques. Les divers systèmes LiDARs existants permettent

la mesure des aérosols, de la température, de la vapeur d'eau et de l'ozone troposphérique, de l'ozone stratosphérique, du  $\text{CO}_2$ , etc. L'avantage d'un tel système est qu'il permet d'obtenir des profils verticaux des polluants atmosphériques avec une résolution verticale allant de la dizaine de mètre au kilomètre.

### 1.5.2.1 Les spectromètres

Comme évoqué précédemment, pour réaliser la mesure du spectre de lumière, on peut distinguer deux grandes types de spectromètres : Les spectromètres dispersifs et les spectromètres à transformée de Fourier.

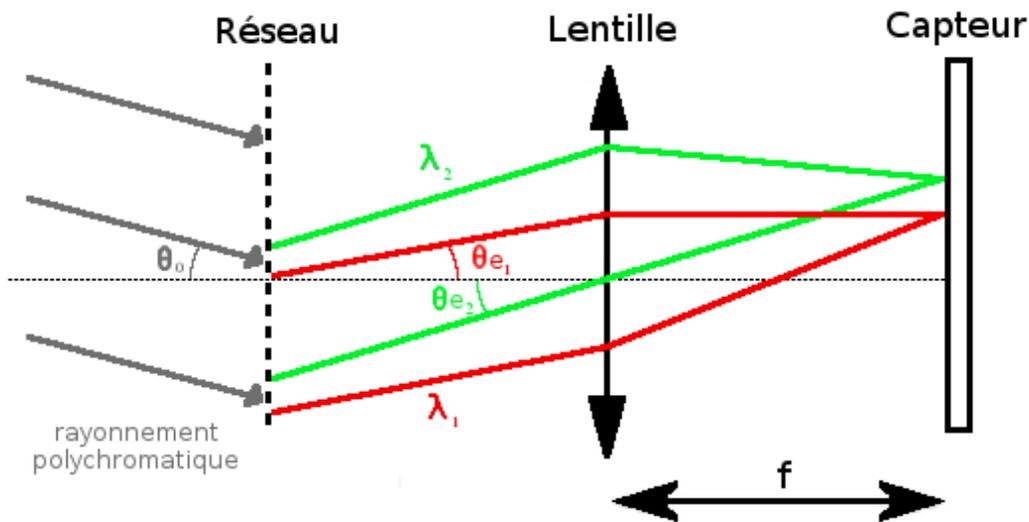


FIGURE 1.10 – Schéma optique d'un spectromètre à réseau. Un rayonnement polychromatique (composé de deux longueurs d'onde  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$ ) traverse le réseau avec un angle d'incidence  $\theta_0$ . L'angle du rayonnement sortant du réseau  $\theta_e$  est alors dépendant de la longueur d'onde, on a ainsi un angle  $\theta_{e1}$  pour les rayons de longueur d'onde  $\lambda_1$ , et un angle  $\theta_{e2}$  pour les rayons de longueur d'onde  $\lambda_2$ . Le rayonnement est alors collecté par une lentille et mesuré par un capteur placé à la distance focale  $f$  de la lentille.

**Spectromètres dispersifs :** ce sont les moyens de mesures les plus intuitifs pour mesurer l'information spectrale contenue dans le rayonnement. En effet, avec ces instruments, le rayonnement va être séparé en différents rayons monochromatiques, puis chaque rayon monochromatique va être mesuré séparément, donnant ainsi accès à l'information spectrale. Il existe différents types de systèmes dispersifs comme le prisme, le réseau par transmission, le réseau blazé, le grisme.

Si l'on se place par exemple dans le cas d'un réseau (par transmission), ses caractéristiques de disperser lui sont données par ses nombreuses fentes qui vont permettre aux

ondes lumineuses diffractées par chaque fente d'interférer entre elles. Les caractéristiques d'un tel réseau sont :

- sa période (ou son pas)  $p$  et le nombre de fentes par unité de longueur  $F = \frac{1}{p}$ ,
- la largeur  $a$  de la fente,
- et la largeur  $L$  de la portion du réseau éclairé par le faisceau incident.

La lumière est diffractée par chaque fente et interfère à la sortie du réseau. Un capteur, placé dans le plan focal d'une lentille à la sortie du réseau, permet alors de mesurer les différentes composantes spectrales.

Pour un rayonnement arrivant sur le réseau avec un angle  $\theta_0$  par rapport à la normale au réseau, et sortant avec un angle  $\theta_e$ , la différence de marche  $\delta$  s'écrit :

$$\delta = p(\sin\theta_e - \sin\theta_0) = k\lambda \quad (1.1)$$

où  $\lambda$  est la longueur d'onde et  $k$  représente l'ordre d'interférence.

L'une des caractéristiques les plus importantes d'un spectromètre à réseau et son pouvoir de résolution,  $PR$ , qui définit l'écart spectral minimal,  $\Delta\lambda$ , qu'est capable de résoudre l'instrument :

$$PR = \frac{\lambda}{\Delta\lambda} = mk \quad (1.2)$$

le pouvoir de résolution dépend ainsi de l'ordre de l'interférence et du nombre de fentes du réseau éclairées,  $m$ .

La figure 1.10 représente le schéma optique d'un spectromètre à réseau.

**Spectromètre à transformée de Fourier :** la spectrométrie par transformée de Fourier repose sur le phénomène d'interférences à deux ondes et l'utilisation de l'interféromètre de Michelson (cf. Fig. 1.11). Le rayonnement à mesurer va traverser une lame séparatrice divisant le faisceau en parts égales. L'un des faisceaux est dévié vers un miroir fixe et l'autre vers un miroir mobile, ce qui introduit une différence de chemin optique (ou différence de marche),  $\delta$ . Après réflexion sur les deux miroirs, les faisceaux interfèrent. Le détecteur va ainsi mesurer l'intensité,  $I$ , en fonction de la différence de marche ( $\delta$ ), que l'on appelle interférogramme,  $I(\delta)$  :

$$I(\delta) = \int_0^\infty B(\nu)[1 + \cos(2\pi\nu\delta)] d\nu \quad (1.3)$$

où  $B$  est la densité spectrale d'énergie caractérisant le rayonnement et  $\nu$  est le nombre d'onde. L'équation (1.3) est alors composée d'un terme constant et d'un terme pair modulé  $I_2$  :

$$I_2 = \int_0^\infty B(\nu)[\cos(2\pi\nu\delta)] d\nu \quad (1.4)$$

Ce terme correspond à la transformée de Fourier en cosinus du spectre  $B(\nu)$ . La transformation :

$$B(\nu) = \int_{-\infty}^\infty I_2(\delta)[\cos(2\pi\nu\delta)] d\delta \quad (1.5)$$

permet ainsi de restituer le spectre.

La spectrométrie à transformée de Fourier procède donc en deux temps : l'interférogramme est d'abord enregistré en fonction de  $\delta$ , puis sa transformée de Fourier restitue le spectre en fonction de  $\nu$ .

En pratique, le déplacement du miroir mobile est limité,  $\delta$  est ainsi limité à une valeur maximale  $\delta_{max}$ . On ne mesure ainsi pas l'interférogramme complet, mais seulement ses valeurs pour  $\delta$  allant de  $-\delta_{max}$  à  $\delta_{max}$ . Cela revient ainsi à mesurer le spectre du rayonnement convolué par une fonction sinus cardinal (qui est la transformée de Fourier d'une fonction porte). Pour diminuer les maxima secondaires de la fonction sinus cardinal qui détériorent le signal, on convolue généralement l'interférogramme par une fonction appropriée. C'est ce qu'on appelle l'apodisation qui, en contrepartie, dégrade la résolution.

Avec l'apodisation, la résolution de l'instrument  $\Delta\nu$  est déterminée par le déplacement maximal du miroir mobile suivant :

$$\Delta\nu = \frac{1}{2\delta_{max}} \quad (1.6)$$

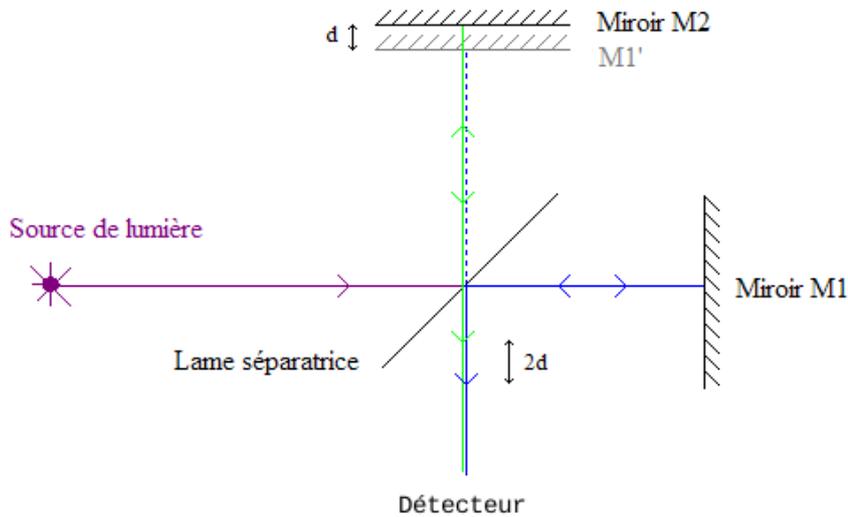


FIGURE 1.11 – Schéma optique d'un interféromètre de Michelson.

### 1.5.2.2 Télédétection à partir des satellites

Les mesures par télédétection ont connu un succès retentissants depuis l'avènement du premier satellite de télédétection de la surface terrestre, LANDSAT 1, lancé en 1972 par les États-Unis. Très vite de nombreuses nations ont saisi l'intérêt de pouvoir disposer de moyens d'observation embarqués à bord des satellites. En effet, la télédétection satellite, ou encore l'observation de la Terre depuis l'espace, permet de répondre à des enjeux à la fois scientifiques, économiques et stratégiques. La France est elle-même impliquée directement

dans des projets d'observation de la Terre depuis l'espace, notamment avec les satellites de surveillance Helios et SPOT, le satellite d'océanographie Jason-1, ou encore les satellites météorologiques METEOSAT.

L'engouement des nations pour la télédétection satellite a ainsi permis l'essor des satellites météorologiques et scientifiques, dédiés à l'étude de l'atmosphère. Pour étudier l'atmosphère, on peut distinguer deux types de visée du satellite :

- La visée au limbe, c'est à dire une visée tangente à l'atmosphère (cf. Fig. 1.12), elle permet d'avoir une bonne résolution verticale, mais une mauvaise résolution horizontale. De plus la visée au limbe ne permet pas les mesures dans les couches les plus basses de l'atmosphère. Pour ces raisons, on n'utilisera pas cette visée dans notre étude.
- La visée au nadir, c'est à dire lorsque le satellite vise la surface terrestre (cf. Fig. 1.12), elle permet d'avoir une bonne résolution horizontale, mais une mauvaise résolution verticale, dépendant des caractéristiques du capteur.

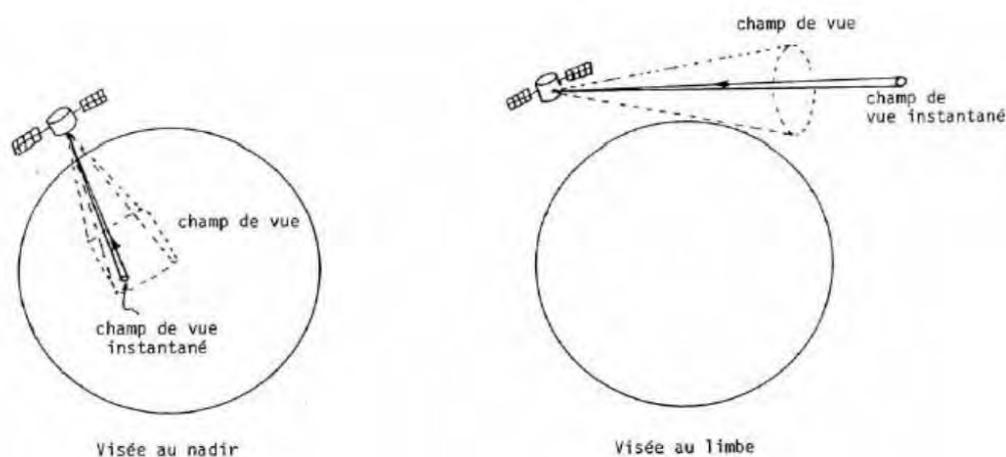


FIGURE 1.12 – Schéma décrivant les deux types de visée satellite. (À gauche) La visée au nadir. (À droite) La visée au limbe.

On peut également distinguer deux types d'orbites :

- L'orbite basse (qui est souvent dans le cadre de l'observation de la Terre également une orbite polaire héliosynchrone) est une orbite circulaire se situant entre 300 et 1 000 km d'altitude. On parle d'orbite polaire lorsque l'inclinaison de l'orbite est proche de  $90^\circ$ , ce qui la fait passer au-dessus ou près des pôles. Un satellite situé sur une orbite polaire passe régulièrement au-dessus de tous les points de la surface grâce à la rotation de la Terre. De plus, les orbites héliosynchrones permettent de passer toujours à la même heure solaire locale au-dessus d'un lieu donné, ce qui est utile pour comparer les mesures au-dessus d'un même lieu entre elles car on s'affranchit des effets

lumineux liés aux différentes positions du soleil. Cependant, comme le montre la figure 1.13, pour espérer pouvoir réaliser des mesures au-dessus de l'Europe, avec un temps de revisite moyen de 1 h (contrainte liée à la mesure des constituants chimiques pour la qualité de l'air), il faudrait lancer une quinzaine de satellite en orbites basses.

- L'orbite géostationnaire est une orbite circulaire située dans le plan de l'équateur à une altitude de 35 786 km. À cette altitude, la période de révolution du satellite correspond exactement à la période de rotation de la Terre, soit 23 heures, 56 minutes et 4 secondes. Vu de la Terre, un satellite géostationnaire semble immobile dans le ciel, cette orbite est donc particulièrement intéressante pour suivre l'évolution d'un processus au-dessus d'une zone fixe du globe. De plus, malgré la perte de flux avec la distance, qui est donc plus importante dans le cas des satellites géostationnaires que pour les satellites en orbites basses, le fait que le satellite géostationnaire ait une position apparente fixe permet de réaliser des mesures avec un temps d'intégration beaucoup plus long que celui des satellites en orbites basses. De plus, trois satellites géostationnaires suffisent pour couvrir l'ensemble de la surface du globe terrestre (en dehors des pôles). Cependant, la mise en orbite d'un satellite géostationnaire nécessite, du fait de l'altitude, un lanceur puissant, et est donc très cher ( $\sim 100$  millions d'euros).

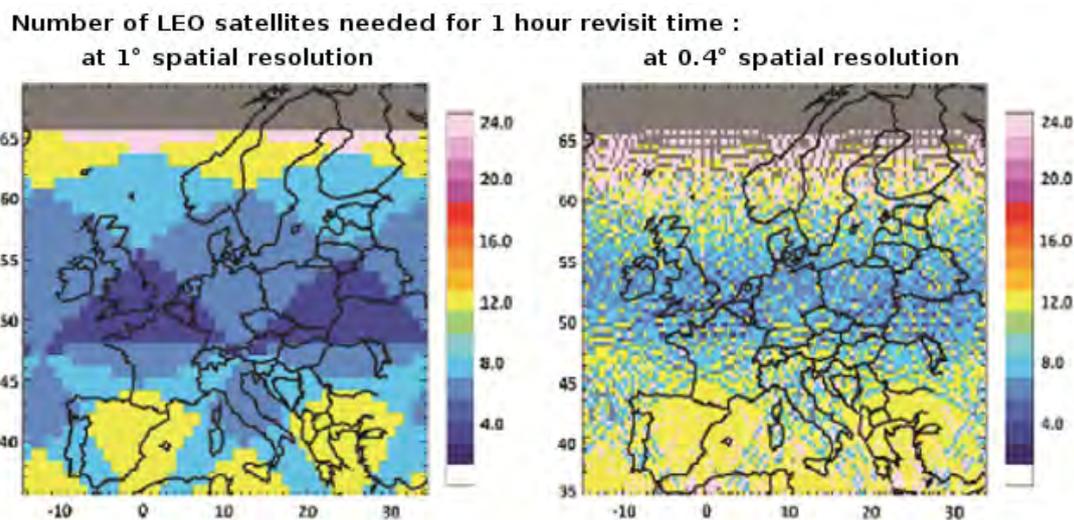


FIGURE 1.13 – Nombres de satellites en orbites basses nécessaires pour couvrir l'Europe. (À gauche) Pour une résolution spatiale de 1° (environ 100 km). (À droite) Pour une résolution spatiale de 0,4° (environ 40 km). D'après Lahoz et al. (2012).

### 1.5.3 État de l'art des satellites mesurant l'ozone troposphérique

Dans cette section nous allons décrire les principaux instruments satellites, actuellement en vol, capables de mesurer l'ozone troposphérique. Nous présenterons, à la suite, des ins-

truments en préparation qui devraient permettre de mesurer l'ozone troposphérique, puis nous discuterons de l'instrument MAGEAQ.

### 1.5.3.1 Les satellites en opération

**AIRS/AQUA :** AQUA est un satellite en orbite polaire héliosynchrone, situés à 705 km d'altitude, lancé en 2002. Il contient à son bord 6 instruments dont le spectromètre dispersif à réseaux mesurant dans l'infrarouge, AIRS (Atmospheric InfraRed Sounder). AIRS mesure le rayonnement infrarouge de 3,74 à 15,4  $\mu\text{m}$  avec un pouvoir de résolution de 1200, et possède également 4 canaux mesurant dans le visible et le proche infrarouge. De plus, couplé aux autres instruments, AIRS permet de fournir les profils de température et d'humidité avec une précision respectivement de 1 °K et de 20 % dans la troposphère. Il permet également de mesurer l'ozone troposphérique (Divakarla et al., 2008). AIRS réalise la couverture globale de la Terre deux fois par jour et avec des pixels de taille 13,5 x 13,5 km, au nadir.

**TES/AURA :** AURA est un satellite scientifique de la NASA, lancé en 2004, sur une orbite polaire héliosynchrone. Il embarque 4 instruments, dont le spectromètre à transformée de Fourier TES (Tropospheric Emission Spectrometer). TES possède à la fois une visée au nadir et une visée au limbe. Il mesure dans l'infrarouge de 3,2 à 15,4  $\mu\text{m}$  avec un échantillonnage spectral de 0,0592  $\text{cm}^{-1}$  au nadir. TES réalise une couverture globale de la Terre en 26 heures avec des pixels de taille 5,3 x 8,3 km, au nadir. TES mesure différentes espèces chimiques dans l'atmosphère, dont l'ozone troposphérique (Worden et al., 2007a).

**OMI/AURA :** OMI (Ozone Monitoring Instrument) est un instrument, développé par l'Institut Météorologique finlandais et l'agence spatiale néerlandaise, également à bord du satellite AURA. C'est un spectromètre dispersif mesurant le rayonnement ultraviolet et visible réfléchi par la Terre, entre 270 et 500 nm, avec une résolution spectrale allant de 0,4 à 0,6 nm. OMI permet de réaliser la mesure de profil d'ozone (Kroon et al., 2011), avec des pixels de taille 13 x 48 km. De plus, il est également utilisé en synergie avec l'instrument TES pour améliorer la sensibilité de la mesure de l'ozone à la surface (Fu et al., 2013).

**IASI/MetOp :** MetOp est une famille de trois satellites météorologiques développés conjointement par l'ESA et EUMETSAT (EUropean organisation for the exploitation of METeorological SATellites). Les satellites MetOp sont fabriqués par la société Airbus Defence and Space (ex EADS Astrium), le premier satellite MetOp-A a été lancé en 2006, et le dernier satellite MetOp-C devrait être lancé en 2017, permettant ainsi de fournir des mesures continues jusqu'en 2020. Les satellites MetOp sont placés sur une orbite polaire héliosynchrone à 800 km d'altitude, et donnent une couverture globale de la Terre deux fois par jour. Ils embarquent onze instruments de mesure dont le capteur IASI élaboré par le CNES (Centre National d'Études Spatiales) et réalisé par Thales Alenia Space.

IASI (Interféromètre Atmosphérique de Sondage dans l'Infrarouge) est un spectromètre à transformée de Fourier, décomposant la lumière infrarouge de l'atmosphère allant de 3,2 à 15,4  $\mu\text{m}$ , avec un échantillonnage spectral de 0,25  $\text{cm}^{-1}$ . IASI fournit des profils de températures avec une précision de 1 °C et d'humidité avec une précision de 10 % pour une

couche de 1 km d'épaisseur, qui sont utilisés par les centres de prévisions météorologiques et pour l'étude climatologiques. Il permet également de mesurer plusieurs espèces chimiques absorbant dans l'infrarouge, dont l'ozone troposphérique (Clerbaux et al., 2009). Les pixels des mesures de IASI ont une taille de 12 x 12 km au nadir.

**GOME-2/MetOp :** GOME-2 (Global Ozone Monitoring Experiment-2) est également un instrument à bord des satellites MetOp. C'est un spectromètre dispersif mesurant le rayonnement ultraviolet et visible réfléchi par la Terre. Il opère plus exactement dans une bande allant de 240 à 790 nm, avec une résolution spectrale allant de 0,2 à 0,4 nm. Les pixels de GOME-2 ont une taille de 80 x 40 km. GOME-2 permet de fournir principalement des colonnes totales d'ozone, et également de l'information sur la colonne d'ozone troposphérique. De plus, les mesures de GOME-2 ont été utilisées en synergie avec les mesures IASI afin d'augmenter la sensibilité de la mesure de l'ozone dans la très basse troposphère (Cuesta et al., 2013).

### 1.5.3.2 Les satellites géostationnaires en préparation pour la QA

L'essentiel des mesures de l'ozone troposphérique sont réalisées actuellement avec des satellites en orbites basses, nous donnant une mesure au dessus d'un même point une à deux fois par jour, ce qui est insuffisant pour réellement suivre l'évolution de la qualité de l'air. Pour pallier à ce défaut, les missions souhaitant mesurer la QA se tournent vers l'orbite géostationnaire. Dans la suite, on trouvera le détails des principales missions en préparation qui devraient permettre des avancées dans la mesure de l'ozone pour la QA. Toutes ces missions font appel à l'orbite géostationnaire.

**TEMPO :** TEMPO (Tropospheric Emissions : Monitoring of Pollution) est une mission satellite qui a été sélectionnée en Novembre 2012 lors d'un appel à projet de la NASA (Chance et al., 2013). Le but de TEMPO est de surveiller les événements majeurs de pollution au dessus de l'Amérique du Nord, en utilisant une orbite géostationnaire, permettant ainsi de réaliser des mesures horaires, il devrait être lancé en 2018. Pour atteindre ses objectifs, TEMPO utilisera un spectromètre ultraviolet et visible, allant de 290 à 690 nm, avec une résolution spectrale de 0,6 nm. Au centre du champ, la taille du pixel atteindra 2 x 4,5 km.

**GEO-KOMPSAT-2 :** GEO-KOMPSAT-2 (Geostationary KOrea Multi-Purpose SA-Tellite; Lee et al., 2010) est un programme de l'agence spatiale coréenne (Korea Aerospace Research Institute -KARI-), visant à développer et lancer d'ici 2018 deux satellites géostationnaires, au dessus de l'Asie. Le premier, GEO-KOMPSAT-2A, est dédié à la météorologie ; le second, GEO-KOMPSAT-2B est dédié à la couleur de l'eau, à l'environnement et la qualité de l'air. En effet, GEO-KOMPSAT-2B embarquera l'instrument GEMS (Geostationary Environment Monitoring Spectrometer), un spectromètre ultraviolet et visible allant de 300 à 500 nm avec une résolution spectrale de 0,6 nm. GEO-KOMPSAT-2 aura une couverture spatiale allant de 5° Sud à 55° Nord, et de 75° Est à 145° Est, et donnera une image du domaine toutes les heures avec un pixel mesurant 5 x 5 km au centre du champ.

**MTG** : MTG (Meteosat Third Generation) est la troisième génération de satellite du programme Météosat. MTG comprend deux satellites en orbites géostationnaires au dessus de l'Europe, le premier MTG-I servira à imager le système climatique, le second MTG-S utilisera des sondeurs afin d'analyser la composition atmosphérique. Ces satellites seront lancés en 2018.

MTG-S contiendra l'instrument IRS (InfraRed Sounder) qui permettra de réaliser des mesures précises des profils de température, d'humidité, et également de différents gaz traces (Munro, 2011). IRS est un spectromètre à transformée de Fourier analysant une bande dans l'infrarouge lointain allant 8,3 à 14,3  $\mu m$ , et une bande dans l'infrarouge moyen allant de 4,6 à 6,25  $\mu m$ , avec une résolution spectrale de 0,625  $cm^{-1}$ . Les mesures de IRS devraient être horaires, au dessus d'un même point.

Enfin, MTG-S contiendra également l'instrument UVN (Ultraviolet, Visible and Near-infrared sounding), qui a été proposé à l'ESA en 2007, en tant que mission Sentinel-4. L'instrument UVN est un spectromètre mesurant dans l'ultraviolet et le visible de 305 à 500 nm, et dans le proche infrarouge de 755 à 775 nm. Il permettra de couvrir la zone allant de 30° Nord à 65° Nord et de 30° Ouest à 45° Est, avec un pixel mesurant 10 x 10 km au centre du champ.

### 1.5.3.3 MAGEAQ

MAGEAQ (Monitoring the Atmosphere from Geostationary orbit for European Air Quality) est une proposition d'instrument dédié à la mesure d'espèces chimiques pour la qualité de l'air, et plus exactement à la mesure de l'ozone et du monoxyde de carbone troposphérique (Peuch et al., 2010). Après la réalisation d'une étude de phase 0 par Airbus Defence and Space, MAGEAQ a été soumis à l'ESA lors de l'appel d'offre « Earth Explorer Opportunity Mission EE-8 », en 2010. Dans le but de caractériser au mieux les variations, spatiales et temporelles, des polluants, dans la moyenne et basse troposphère, MAGEAQ est un instrument géostationnaire couplant un spectromètre à réseaux visible (de 450 à 690 nm) et un spectromètre à réseaux infrarouge thermique (de 1040 à 1080  $cm^{-1}$ ). Concernant la mesure de l'ozone troposphérique, l'objectif de MAGEAQ en couplant les deux bandes spectrales, visible et infrarouge thermique, est d'arriver à une mesure précise (environ 10 % d'erreur) pour la colonne 0–6 km, et un maximum de sensibilité proche de la surface. L'instrument couvrira la zone allant de 35° Nord à 65° Nord, et de 15° Ouest à 35° Est, avec un pixel de taille 10 x 10 km au centre du champ, et une fréquence horaire. Le tableau 1.2 synthétise les caractéristiques de l'instrument MAGEAQ pour la mesure de l'ozone, et la figure 1.14 représente le design de ce dernier.

TABLE 1.2 – Tableau récapitulatif des caractéristiques de l'instrument MAGEAQ, pour la mesure de l'ozone, proposé lors de EE-8.

| Requirement                                | Threshold   | Goal                | Comment   |
|--|---|---------------------|---|
| Lifetime                                   | 5 years   |                     |   |
| Field of regard                            | (15°W-35°E, 35°N-65°N)                                  |                     | Can be extended along the East-West direction.                          |
| Repeat cycle                               | 2 h   | 1 h                 |   |
| Availability                               | > 90%   |                     |   |
| Spatial sampling                           | 15 km   | 10 km               | at 45° (Europe).  |
| Spatial resolution                         | 22 km   | 15 km               | Spatial resolution defined as 85% of integrated energy.                 |
| Spatial registration within channel        | 1,5 km  | 1,0 km              | 10% of sampling distance.   |
| Temporal registration                      | 38 s  | 24 s                | 10% of the sampling distance for a wind speed of 20 m.s <sup>-1</sup> . |
| <b>Channel 1 : IR O<sub>3</sub></b>        | <b>Threshold</b>  | <b>Goal</b>         |   |
| Tropospheric DOFs                          | > 1,4   |                     |   |
| Spectral band                              | [1040 cm <sup>-1</sup> ; 1080 cm <sup>-1</sup> ]        |                     |   |
| Spectral sampling                          | To be optimized   |                     |   |
| Spectral resolution (FWHM)                 | > 2 x sampling  |                     | Norton-Beer strong apodization.   |
| Signal to Noise Ratio                      | To be optimized   |                     | Over uniform scene at T = 280 K.  |
| Dynamic range                              | 4 K; 300 K  |                     |   |
| Absolute radiometric accuracy              | < 0,5 K   |                     | At reference radiance level.  |
| <b>Channels 2 to 9 : VIS O<sub>3</sub></b> | <b>Threshold</b>  | <b>Goal</b>         |   |
| Central wavelengths (μm)                   | 0,45; 0,48;<br>0,52; 0,55;<br>0,59; 0,62;<br>0,66; 0,69 | Continuous sampling |   |
| Spectral resolution (FWHM)                 | 15 nm   | 6 nm                |   |
| Spectral sampling                          | 3,0 nm  | 1,5 nm              |   |
| Signal to noise ratio                      | 1500  | 2500                | Albedo $\rho = 0,12$ to 0,03. Local zenith angle $\theta = 45^\circ$ .  |
| Dynamic range                              | Albedo $\rho = 1,0$                                     |                     |   |
| Absolute radiometric accuracy              | < 2%  |                     | At reference radiance level.  |
| Polarization ratio                         | < 1%  |                     |   |

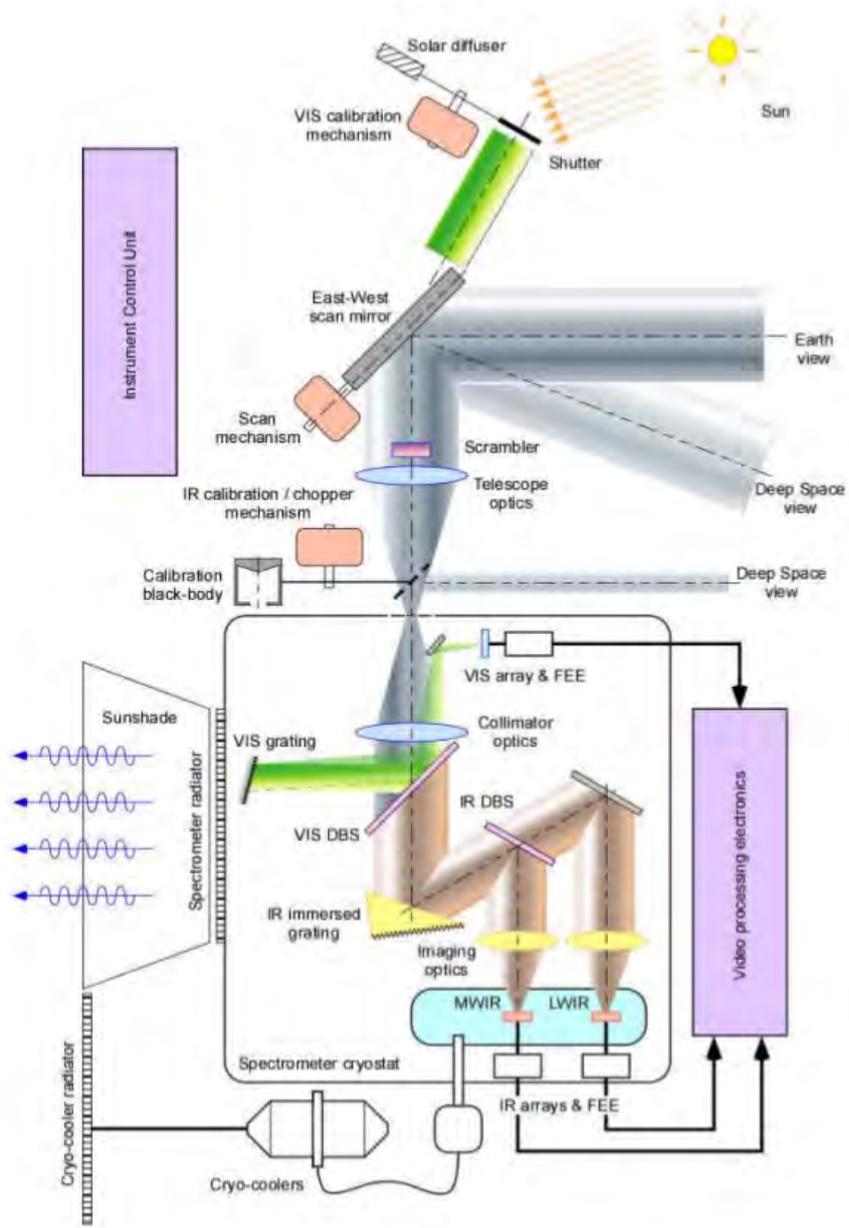


FIGURE 1.14 – Design de l'instrument MAGEAQ proposé lors de EE-8.

## 1.6 Conclusions du chapitre

À travers ce chapitre nous avons pu nous familiariser avec les concepts clés de la thématique de la qualité de l'air. Nous avons vu son origine, ainsi que les principales causes engendrant un épisode de mauvaise qualité de l'air, essentiellement un couplage entre émissions anthropiques et conditions météorologiques particulières. Nous avons également présenté les principaux polluants atmosphériques. En particulier, l'ozone et les particules fines, qui de part la gravité de leurs effets sur la santé et l'environnement, et de part la probabilité d'occurrence d'un dépassement de seuil, représentent les deux polluants majeurs de notre société industrialisée européenne. Ensuite nous avons évoqué la législation en vigueur en Europe, qui prend conscience de l'ampleur des dégâts, notamment en terme économique, que représente la mauvaise gestion de la qualité de l'air (cf. annexe C.4). Actuellement, en Europe, il y a une vraie réaction des gouvernements pour tenter d'enrayer les déficits financiers induits par la pollution atmosphérique, et la volonté de réduire les émissions anthropiques associées à cette pollution. La stratégie de l'Europe passe alors par la définition de normes de régulation, par la mesure des niveaux de qualité de l'air, et par l'information du public. L'objet de la dernière section était à ce titre de présenter une vue globale des moyens à notre disposition pour mesurer les espèces chimiques pour la qualité de l'air. Le satellite géostationnaire grâce à une résolution spatio-temporelle et une couverture spatiale particulièrement bien adaptées pour suivre l'évolution à l'échelle globale de la qualité de l'air nous semble être le candidat parfait pour compléter le système actuel de mesure de la qualité de l'air.

Dans la suite de ce travail de thèse, nous allons donc nous consacrer à l'étude de la mesure de l'ozone dans la basse troposphère, et en particulier dans la couche limite, pour la qualité de l'air. En effet, le partenaire industriel de cette thèse, Airbus Defence and Space (anciennement Astrium), a élaboré les plans d'un instrument dédié à la mesure de l'ozone à bord d'un satellite géostationnaire. Cet instrument, baptisé MAGEAQ (Monitoring the Atmosphere from Geostationary orbit for European Air Quality), a été candidat à l'appel d'offre « Earth Explorer Opportunity Mission EE-8 », en 2010, et avait obtenu une très bonne évaluation par la commission examinatrice (Peuch et al., 2010). MAGEAQ est donc un instrument à bord d'un satellite géostationnaire qui se propose de coupler une bande dans l'infrarouge thermique et dans le visible dans le but de mesurer l'ozone dans la couche limite atmosphérique. Le choix de ces bandes, les caractéristiques instrumentales, ainsi que la résolution spatio-temporelle des mesures de MAGEAQ, ont été définis par Airbus Defence and Space en réalisant un compromis entre la faisabilité technique, le coût de l'instrument, et la sensibilité de l'instrument à mesurer l'ozone de surface. Les travaux réalisés dans l'équipe (Claeyman et al., 2011b,a) ont d'ores et déjà montré, via la modélisation, qu'en utilisant seulement la bande infrarouge thermique de MAGEAQ on pouvait obtenir de l'information sur la colonne d'ozone entre 0-3 km. Dans la continuité de ces travaux, l'objectif de ma thèse est donc maintenant de modéliser l'instrument MAGEAQ dans son ensemble. C'est à dire avec la bande infrarouge thermique et la bande visible, et d'étudier ainsi l'apport de la bande de Chappuis, dans le visible, pour la mesure de l'ozone, notamment dans la couche limite (0-1 km), et la valeur ajoutée d'une telle mesure dans le système d'observation global par le biais d'OSSEs, dans le cadre de la surveillance de la

qualité de l'air.

Ces travaux de modélisation sont d'une importance cruciale car ils représentent la seule source de données capable d'estimer la viabilité de ce type de missions pour un coût négligeable comparé au prix d'une mission spatiale.



# Chapitre 2

## Simulateur d'observations synthétiques

### Sommaire

---

|            |   |            |
|------------|---|------------|
| <b>2.1</b> | <b>Introduction</b>   | <b>72</b>  |
| 2.1.1      | Description du simulateur d'observations synthétiques                                   | 74         |
| <b>2.2</b> | <b>Simulation de l'atmosphère</b>   | <b>75</b>  |
| 2.2.1      | Généralités sur les modèles de chimie transport   | 75         |
| 2.2.2      | Le modèle MOCAGE  | 76         |
| 2.2.3      | Simulation de l'atmosphère avec MOCAGE  | 77         |
| <b>2.3</b> | <b>Simulation du rayonnement</b>  | <b>80</b>  |
| 2.3.1      | Généralités sur les modèles de transfert radiatif                                       | 80         |
| 2.3.2      | Le modèle de transfert radiatif KOPRA   | 83         |
| 2.3.3      | Le modèle de transfert radiatif VLIDORT   | 84         |
| 2.3.4      | Modélisation de l'albédo spectral dans VLIDORT  | 84         |
| 2.3.5      | Simulation du rayonnement en sortie de l'atmosphère avec KOPRA et VLIDORT               | 86         |
| <b>2.4</b> | <b>Le modèle instrumental</b>   | <b>89</b>  |
| 2.4.1      | Caractéristiques du spectromètre infrarouge thermique                                   | 91         |
| 2.4.2      | Caractéristiques du spectromètre visible  | 93         |
| <b>2.5</b> | <b>L'inversion de données</b>   | <b>94</b>  |
| 2.5.1      | Généralités sur l'inversion de données  | 94         |
| 2.5.2      | Mise en place de l'algorithme d'inversion de données                                    | 97         |
| 2.5.3      | Vecteur d'état et information a priori  | 98         |
| 2.5.4      | La chaîne d'inversion de données  | 101        |
| <b>2.6</b> | <b>Étude de l'impact de la polarisation sur les résultats de l'inversion de données</b> | <b>103</b> |
| <b>2.7</b> | <b>Conclusions du chapitre</b>  | <b>107</b> |

---

## 2.1 Introduction

La modélisation numérique est par définition la représentation d'un système à partir d'un ensemble de fonctions mathématiques qui peuvent être résolues notamment par des moyens informatiques. La modélisation en vue de simuler un phénomène physique complexe sert à étudier le fonctionnement et les propriétés de ce dernier, ainsi qu'à prédire son évolution. De nos jours, les moyens informatiques sont tellement répandus et performants que la modélisation est présente partout. En effet, à mesure que nos connaissances sur les phénomènes physiques évoluent, en parallèle des capacités informatiques, les modèles deviennent de plus en plus précis, de plus en plus fiables. Or, alors que la mise en œuvre de démonstrateurs physiques est souvent délicate et très chère, l'utilisation de la modélisation est, quant à elle, souvent une méthode permettant d'avoir une réponse rapide, une méthode flexible et peu chère. Cependant il ne faut pas faire l'amalgame entre les résultats de la modélisation et le réel, car les modèles ne sont que des approximations plus ou moins bonnes de la réalité, et souvent, durant la modélisation, des hypothèses doivent être faites pour diminuer la complexité d'un système. Au final, la modélisation ne fait qu'approcher la réalité.

Si l'on revient à ce travail de thèse, ce dernier a pour but de déterminer la viabilité du concept instrumental MAGEAQ, et de déterminer si le couplage entre les deux bandes de l'instrument (visible et infrarouge thermique) est capable de fournir une information exploitable pour la mesure de l'ozone dans la couche limite atmosphérique. La modélisation, à travers un simulateur d'observations synthétiques, est un outil permettant d'apporter des éléments de réponse, en gardant le contrôle sur la physique et les hypothèses sous-jacentes. Cependant la simulation d'observations faites par un instrument à bord d'un satellite géostationnaire est un système complexe.

Des études simulant les observations faites par des instruments à bord, entre autres, de satellites géostationnaires, dans le but de mesurer des espèces chimiques pour la qualité de l'air, ont d'ores et déjà été réalisées. On peut citer par exemple :

Edwards et al. (2009) qui ont simulé les observations d'un satellite géostationnaire couplant une bande dans le proche infrarouge (en anglais, Near InfraRed -NIR-) et l'infrarouge thermique (en anglais, Thermal InfraRed -TIR-). Ils ont également simulé les observations de satellites défilants actuels utilisant le TIR. L'étude porte sur la mesure du monoxyde de carbone à la surface, aux États-Unis, lors du mois de Juillet 2004. Lors de cette période, d'importants incendies en Alaska et au Canada ont créé une pollution au monoxyde de carbone importantes pour les régions des États-Unis les plus proches. L'étude montre ainsi les capacités des différents instruments à mesurer le monoxyde de carbone, caractérisant ainsi cet événement de pollution.

Également, les études de Claeys et al. (2011b,a) ont simulées les observations de deux instruments différents, à bords de satellites géostationnaires. Le premier instrument simulé possède une configuration similaire à celle de MAGEAQ pour sa bande TIR seulement. Le second instrument simulé reprend la configuration de l'instrument MTG IRS, actuellement en préparation, pour sa bande TIR seule. Ces études comparent alors la capacité de ces deux instruments à mesurer l'ozone et le monoxyde de carbone dans les couches les plus

basses de l'atmosphère, en particulier entre 0 et 3 km, pour la période allant de Juillet à Août 2009, au dessus de l'Europe.

L'étude de Sellitto et al. (2014) présente également les observations de l'instrument MAGEAQ dans sa bande TIR, pour la période allant du 5 au 28 Août 2009, au dessus de l'Europe. L'étude se concentre sur la mesure de l'ozone dans les couches les plus basses de l'atmosphère, entre 0 et 3 km, et entre 0 et 6 km, et conclut que l'instrument MAGEAQ TIR permet d'obtenir des performances sans précédent pour la mesure de l'ozone dans la basse troposphère. Cependant, l'information apportée n'est pas suffisante pour reproduire la variabilité et le cycle temporel de l'ozone dans la couche entre la surface et 1 km d'altitude.

Plus récemment, l'étude de Zoogman et al. (2014) a simulé les observations d'un instrument à bord d'un satellite géostationnaire, proche de l'instrument actuellement en préparation pour la mission TEMPO. L'instrument a pour but de mesurer la qualité de l'air, au dessus des États-Unis, en couplant des mesures dans l'ultraviolet (UV) et le visible (VIS). L'étude porte en particulier sur les observations de l'ozone de surface faite par cet instrument spatial, et les compare à des observations simulées de stations sol et des observations simulées, dans l'infrarouge, d'un satellite défilant, pour la période allant d'Avril à Juin 2010, pour la partie Ouest des États-Unis. L'étude conclut que les mesures du satellite défilant apporte seulement un peu d'information, alors que les données de TEMPO améliorent considérablement les capacités de surveillance de l'ozone de surface.

Enfin, on peut citer l'étude de Yumimoto (2013) qui a simulé les observations d'un instrument mesurant dans le TIR à bord d'un satellite défilant, d'un instrument mesurant dans le TIR à bord d'un satellite géostationnaire, et d'un instrument mesurant dans le NIR et le TIR à bord d'un satellite géostationnaire. L'étude porte ainsi sur la comparaison de ces différents instruments pour mesurer le monoxyde de carbone à la surface, au dessus de l'Asie de l'Est, pour le mois de Mai 2006. L'étude conclut que l'utilisation des observations d'un satellite géostationnaire mesurant dans le TIR, et des observations d'un satellite géostationnaire mesurant dans le TIR et le NIR, améliorent la surveillance du monoxyde de carbone de respectivement 30 % et 120 %, comparés aux mesures dans le TIR du satellite défilant.

Mon travail de thèse se place dans la continuité des études faites par Claeys et al. (2011b,a), et veut étudier l'apport de la bande visible de l'instrument MAGEAQ par rapport à sa bande TIR seule. La simulation des observations synthétiques de MAGEAQ a fait appel à plusieurs catégories de modèles (cf. 2.1.1) connectés les uns à la suite des autres. Dans la suite de ce chapitre, nous étudierons en détail la chaîne de modélisation mise au point pour simuler les observations synthétiques. Ensuite, le rôle de chaque modèle sera expliqué, à savoir le modèle de chimie-transport MOCAGE (Modèle de Chimie Atmosphérique à Grande Échelle), et les modèles de transfert radiatif KOPRA (Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm) et VLIDORT (Vector LInearized Discrete Ordinate Radiative Transfer). Également on décrira le modèle instrumental utilisé pour simuler les radiances mesurées par l'instrument, puis on détaillera l'algorithme d'inversion de données utilisé. Enfin, on présentera les résultats d'une étude faite sur l'impact de la polarisation dans l'inversion de données de l'ozone, entre 0 et 1 km, dans la bande visible de l'instrument simulé.

### 2.1.1 Description du simulateur d'observations synthétiques

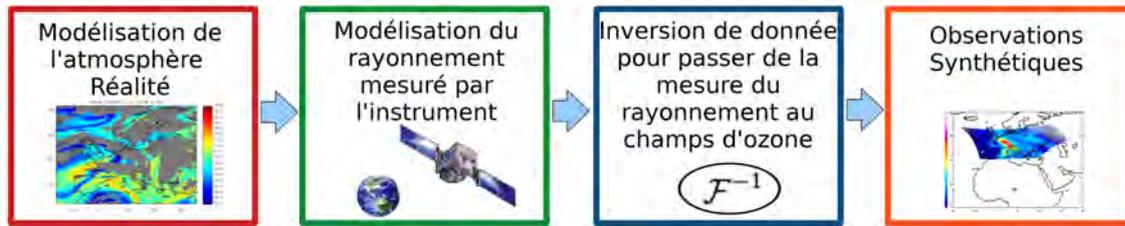


FIGURE 2.1 – Illustration de la chaîne de modélisation utilisée permettant de simuler les observations synthétiques d'un instrument à bord d'un satellite géostationnaire.

La mise au point d'un simulateur d'observations synthétiques pour un instrument à bord d'un satellite géostationnaire a dû faire appel à différents modèles.

En effet, il faut tout d'abord modéliser l'atmosphère « vraie », la plus proche possible de la réalité, pour assurer une reproduction fidèle du champ à mesurer (dans notre cas, nous nous intéressons au champ d'ozone). Pour cela, nous avons utilisé le modèle de chimie transport MOCAGE dans sa configuration la plus optimale.

Il faut ensuite utiliser un modèle de transfert radiatif pour calculer, à partir de l'atmosphère obtenue précédemment, les radiances sortant de l'atmosphère et parvenant jusqu'à l'instrument à bord du satellite (dans notre travail, le satellite est en orbite géostationnaire). Comme notre instrument mesure les radiances dans deux bandes de longueur d'onde différentes, nous avons utilisé deux modèles de transfert radiatif différents, KOPRA pour la bande TIR et VLIDORT pour la bande VIS. Ces radiances « brutes », correspondant aux valeurs atmosphériques, sont alors conditionnées par un modèle instrumental pour correspondre aux radiances mesurées par l'instrument, à bord du satellite géostationnaire.

Enfin, on peut transmettre ces radiances mesurées à un algorithme d'inversion de données, qui va ainsi résoudre le problème inverse, pour obtenir la mesure du profil d'ozone. On obtient ainsi les observations synthétiques du profil d'ozone mesurées par l'instrument.

La réalisation de notre simulateur d'observations synthétiques fait ainsi appel à une chaîne de modélisation représentée sur la figure 2.1.

Ce travail de thèse aura donc porté sur la réalisation de cette chaîne de modélisation. Chaque modèle faisant appel à leurs propres hypothèses afin de diminuer le degré de complexité de la simulation. Dans la suite de ce chapitre, nous allons ainsi détailler chacun de ces modèles et de leurs utilisations.

## 2.2 Simulation de l'atmosphère

Afin de modéliser l'atmosphère et les concentrations de ses constituants chimiques, nous avons utilisé un modèle de chimie-transport. Les modèles de chimie-transport sont des modèles décrivant l'évolution chimique de l'atmosphère, ils sont plus connus sous leur nom anglais Chemistry Transport Model (CTM). Les premiers CTMs tridimensionnels sont apparus il y a une vingtaine d'années, et sont souvent étroitement reliés aux modèles de circulation globale (General Circulation Model -GCM-). En effet, les GCMs ont pour but de décrire le comportement dynamique et thermodynamique du fluide atmosphérique et ses flux de température, alors que le CTM lui se concentre sur le calcul des champs d'espèces chimiques en prenant en compte les paramètres thermodynamiques adéquats des GCMs (vent, température, pression, humidité). Les CTMs ont ainsi besoin des sorties des GCMs pour fonctionner. Également, les CTMs utilisent des paramétrisations pour modéliser certains processus, comme par exemple les sources d'émissions qui sont issues des cadastres nationaux.

Lorsque l'on fait fonctionner un CTM en lui fournissant en entrée des forçages météorologique, issus de GCMs, préalablement calculés, on parle de CTM « offline » puisque l'on fait tourner le GCM et le CTM de façon décorrélés. Cependant, du fait de l'évolution de la technologie toujours plus performante, on tend vers la création de modèles GCMs incorporant directement des CTMs, permettant ainsi de prendre en compte le couplage existant entre chimie et thermodynamique.

### 2.2.1 Généralités sur les modèles de chimie transport

Le principe général de fonctionnement d'un CTM repose sur la résolution d'une équation différentielle décrivant l'évolution dans l'espace et le temps de la concentration chimique. Si l'on reprend la section 1.2.2, on peut décomposer l'évolution de la concentration d'une espèce chimique selon 4 processus majeurs que les CTMs vont devoir modéliser, à savoir le transport, les émissions, le dépôt, et la chimie.

Dans l'annexe E, on détaille la modélisation de chacun de ces processus pour former l'équation générale que doit résoudre les modèles de chimie-transport, l'équation dite du transport réactif :

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = -\nabla \cdot (c_i \mathbf{u}) + \nabla \cdot (\rho K \nabla \frac{c_i}{\rho}) + \chi_i(c) + E_i - S_i \quad (2.1)$$

On retrouve dans les termes  $-\nabla \cdot (c_i \mathbf{u})$  et  $\nabla \cdot (\rho K \nabla \frac{c_i}{\rho})$  le processus de transport (advection et diffusion turbulente), et les termes  $\chi_i(c)$ ,  $E_i$  et  $-S_i$  représentent respectivement la chimie, les émissions et le dépôt. Pour résoudre cette équation on emploie des méthodes numériques donnant une solution approchée en utilisant une représentation discrète de l'espace et du temps. On peut distinguer deux approches différentes pour la résolution numérique :

- L'approche Lagrangienne qui consiste à étudier le mouvement du fluide à partir d'un référentiel mobile suivant une parcelle de ce fluide.

- L'approche Eulérienne qui se place dans un référentiel fixe dans l'espace, et étudie le fluide qui passe à travers le domaine d'étude.

En règle générale, les modèles de prévision numérique du temps (GCMs) ou de chimie-transport (CTMs) utilisent une approche intermédiaire, dite semi-Lagrangienne, pour résoudre les équations du transport atmosphérique. En effet, l'approche semi-Lagrangienne consiste à se placer dans le cadre de l'approche Eulérienne en réalisant l'étude du fluide à partir d'un référentiel fixe, mais en utilisant les équations discrètes issues de l'approche Lagrangienne, permettant ainsi de suivre chaque point du fluide.

## 2.2.2 Le modèle MOCAGE

Ces travaux de thèse ont fait appel au modèle de chimie-transport MOCAGE (Modèle de Chimie Atmosphérique à Grande Échelle), modèle tridimensionnel, multi-échelles, stratosphérique et troposphérique, développé par Météo-France. Son développement, initié en 1999, fait suite à celui du modèle REPROBUS, développé en collaboration avec le NCAR (National Center for Atmospheric Research, États-Unis), et utilisé au CNRM (Centre National de Recherches Météorologiques, Météo-France) depuis 1991 pour étudier la chimie de la stratosphère et son interaction avec le climat (Lefevre et al., 1994).

MOCAGE couvre une large gamme d'objectifs scientifiques, depuis l'étude des interactions entre la chimie et le climat, jusqu'à la modélisation de la chimie troposphérique à l'échelle régionale. Pour cela, MOCAGE peut considérer plusieurs (jusqu'à 4) niveaux de domaines imbriqués à double sens, c'est à dire que l'on peut par exemple, dans une même simulation, étudier l'évolution sur le globe avec une résolution spatiale de  $2^\circ$  (soit environ 200 km), sur l'Europe avec une résolution spatiale de  $0,5^\circ$  (soit environ 50 km), et encore plus précisément sur la France avec une résolution spatiale de  $0,025^\circ$  (soit 2 km). Les calculs effectués sur le domaine global vont permettre de contraindre les calculs sur l'Europe, qui vont permettre de contraindre la France, et le résultat des calculs sur la France va pouvoir être propagé sur l'Europe, puis sur le domaine global. La définition de ces différents domaines est flexible, et peut aller d'une résolution de  $2^\circ$  à  $0,025^\circ$ . Il existe à ce jour une dizaine de configurations différentes. De plus, MOCAGE utilise comme coordonnée verticale une coordonnée hybride sigma-pression, de telle sorte que la couche la plus proche de la surface épouse le relief, et possède en tout 47 niveaux verticaux depuis la surface jusqu'à 5 hPa. Environ 7 niveaux représentent la couche limite atmosphérique.

MOCAGE est un modèle de chimie-transport « offline », c'est à dire qu'il utilise les champs météorologiques archivés issus de modèles de prévision du temps, ou GCMs. Les champs de vents horizontaux, de température, de pression, et d'humidité proviennent ainsi des modèles de prévision numérique du temps de Météo-France ou du Centre Européen de Prévisions Météorologiques à Moyen Terme (CEPMMT). La résolution temporelle des champs issus d'analyses est de 6 ou 12 heures, selon les modèles, et de 3 heures pour les champs issus de la prévision.

MOCAGE peut considérer différents schémas chimiques selon l'application étudiée, par exemple dans notre cas le schéma RACMOBUS, qui regroupe les schémas RACM (Regional

Atmospheric Chemistry Mechanism; Stockwell et al., 1997) pour la troposphère, et RE-PROBUS pour la stratosphère (Lefevre et al., 1994). RACMOBUS comprend 119 espèces chimiques et traite 372 réactions chimiques. En ce qui concerne le transport, MOCAGE résoud explicitement le terme d'advection suivant un schéma semi-lagrangien (Williamson and Rasch, 1989), alors que la convection et la diffusion turbulente sont résolues par des schémas implicites, notamment Bechtold et al. (2001) pour la convection et Louis (1979) pour la diffusion turbulente. Ces différents schémas pour le transport ont été évalués dans Josse et al. (2004), et Pisso et al. (2008). Enfin, pour les processus d'échanges avec la surface, les émissions et le dépôt, ces derniers sont pris en compte et traités de manière externalisée (Michou and Peuch, 2002). Le dépôt sec en surface est basé essentiellement sur le schéma de Wesely (1989), décrit dans Michou et al. (2004), tandis que le dépôt humide (ou lessivage) est paramétré pour les nuages stratiformes et convectifs (Giorgi and Chameides, 1986; Mari et al., 2000).

Plus de détails sur le modèle MOCAGE peuvent être trouvés dans Cathala (2004), Josse et al. (2004), Michou (2005).

### 2.2.3 Simulation de l'atmosphère avec MOCAGE

L'atmosphère a ainsi été simulée à partir des résultats du modèle MOCAGE. Plus exactement, nous avons récupéré de MOCAGE les champs de température, pression, altitude, et les champs des principales espèces chimiques qui vont influencer dans la modélisation des observations synthétiques, à savoir :

- $O_3$ ,  $H_2O$ ,  $CO_2$ ,  $N_2O$ ,  $CH_4$  qui influent dans la bande infrarouge thermique de l'instrument simulé (plus de détails section 2.3.5)
- $O_3$ ,  $H_2O$ ,  $NO_2$  qui influent dans la bande visible de l'instrument simulé (plus de détails section 2.3.5)

Ces champs MOCAGE sont composés de 47 niveaux en altitude, allant du sol jusqu'à 5 hPa dans la stratosphère, où les concentrations d'ozone sont maximales. C'est donc un inconvénient pour notre représentation de l'atmosphère, en particulier du profil d'ozone, d'avoir le niveau le plus haut s'arrêtant là où l'ozone est maximum, nous avons donc rajouté 3 niveaux à ces profils pour atteindre une pression de 0.1 hPa et ainsi représenter la couche d'ozone dans son ensemble. Nous interpolons ensuite tous ces profils sur la grille en altitude de l'inversion de données (cf. section 2.5), c'est à dire sur une grille de 60 niveaux d'altitude allant de la surface à environ 60 km (environ 0.1 hPa). On obtient ainsi notre atmosphère dite « vraie », simulant la réalité. Dans le cas du profil d'ozone on peut trouver sa représentation moyenne sur la figure 2.2. La moyenne est réalisée sur tous les pixels du domaine qui représente l'Europe dans MOCAGE (32° Nord à 72° Nord de latitude, et 16° Ouest à 36° Est de longitude), pendant la période entre le 1<sup>er</sup> Juillet et le 31 Août 2008. Ce profil moyen est utilisé par la suite, lors de l'inversion de données, comme notre profil a priori d'ozone (cf. section 2.5), c'est à dire la connaissance minimale que l'on a du profil d'ozone lors de son inversion. Également, la variabilité du profil d'ozone, sur ce domaine et cette période, nous sert à construire la matrice de covariance d'erreur  $S_a$  utilisée lors de l'inversion de données (cf. section 2.5).

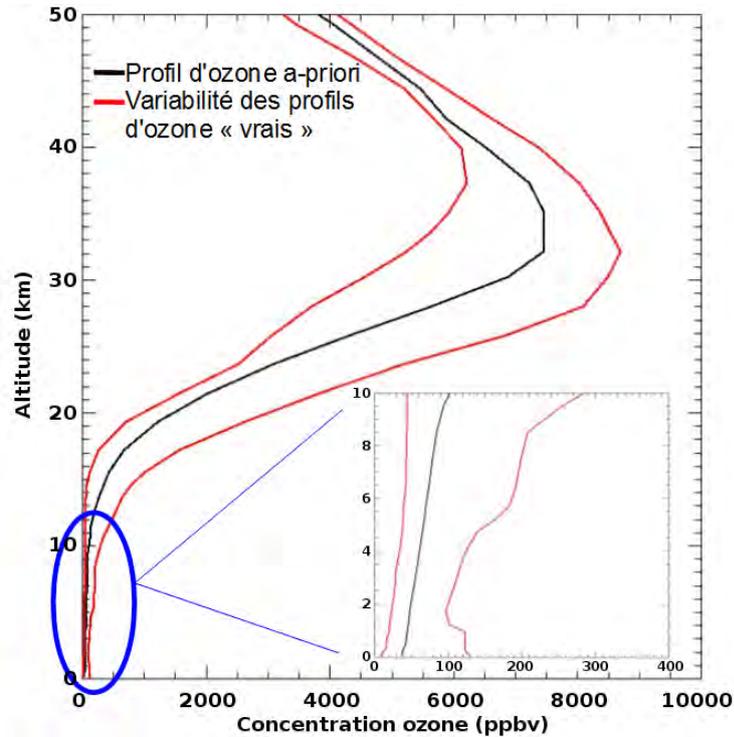


FIGURE 2.2 – Profil d’ozone en fonction de l’altitude obtenue à l’aide du modèle MOCAGE. La courbe noire représente la moyenne de tous les profils obtenus sur le domaine Europe sur la période allant du 1<sup>er</sup> Juillet au 31 Août 2008. Les courbes rouges représentent les valeurs extrêmes (minimum et maximum) obtenues pour chaque niveau du profil d’ozone, sur le même domaine et la même période de temps.

L’étendue du champs MOCAGE sur le domaine Europe, avec une résolution spatiale de  $0,5^\circ \times 0,5^\circ$  (c’est à dire 50 x 50 km environ), n’est pas apte à représenter la totalité de la couverture spatiale de l’instrument MAGEAQ à bord du satellite géostationnaire (cf. Fig. 2.3). En effet, MAGEAQ, en orbite géostationnaire au dessus du point  $0^\circ$  Nord de latitude et  $10^\circ$  Est de longitude, regarde l’Europe depuis une altitude de 36 000 km. La rotondité de la Terre va ainsi avoir pour effet de déformer le champ de vue, les pixels de l’image seront plus fortement déformés que l’on s’éloigne de l’équateur ( $0^\circ$  Nord de latitude) et de  $10^\circ$  Est de longitude. De plus, la résolution spatiale des pixels vue par l’instrument MAGEAQ est de  $10 \times 10$  km à  $45^\circ$  Nord de latitude, ce qui nous donne au final une image contenant environ 200 000 pixels, chacun de ces pixels devant être inversés. Comme nous le verrons dans la section 2.5.4, l’inversion d’un nombre si important de pixels est prohibitive en temps de calcul, nous avons donc choisi dans la suite, par simplification, de conserver l’image MOCAGE, avec une grille homogène de résolution spatiale  $0,5^\circ \times 0,5^\circ$ , pour représenter l’image de l’instrument MAGEAQ, ce qui nous donne au final une image de 8 000 pixels environ. De plus, dans les études du chapitre 3 et du chapitre 4, nous avons encore réduit la taille

du domaine, pour n'avoir plus que 2 000 pixels environ à inverser. La figure 2.3 représente ces différents domaines d'études.

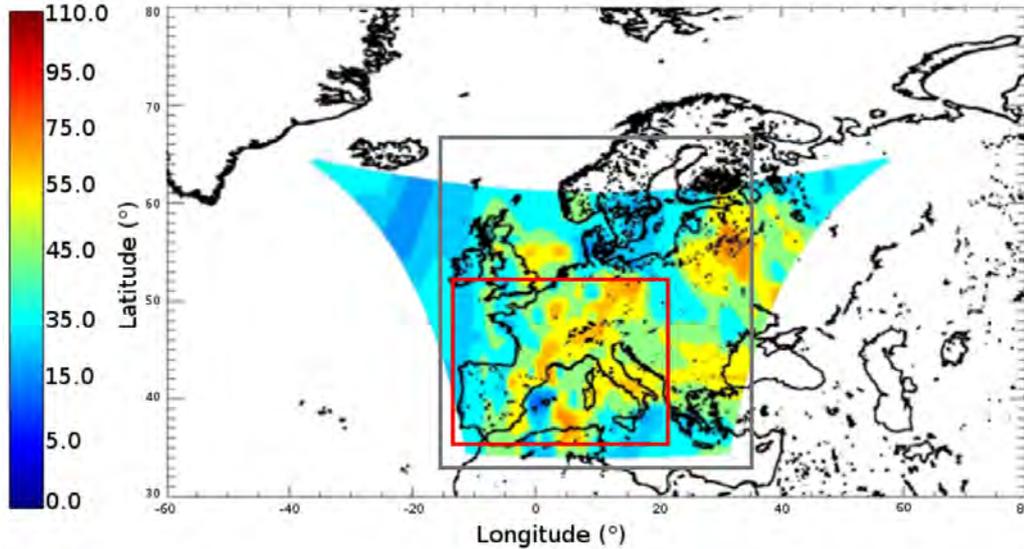


FIGURE 2.3 – Champ d'ozone tel qu'il pourrait être vu par l'instrument MAGEAQ, sur un satellite géostationnaire (36 000 km d'altitude) orbitant au dessus du point 0° Nord de latitude et 10° Est de longitude. La déformation du champ est due à la rotondité de la Terre. La barre de couleur représente les valeurs d'ozone en ppbv. Le rectangle gris représente le domaine Europe de MOCAGE (avec une résolution spatiale de 0,5° x 0,5°). Le rectangle rouge représente le domaine réduit utilisé dans les études du chapitre 3 et du chapitre 4 (avec une résolution spatiale de 0,5° x 0,5°).

Enfin, il faut noter que la simulation de l'atmosphère ne prend en compte ni les nuages ni les aérosols. L'hypothèse sur l'absence de nuages peut être valide puisque l'on s'intéresse en particulier à la détection de pics d'ozone lors de périodes estivales, c'est à dire lors de conditions généralement anti-cyclonique, donc sans nuages. De plus, ne pas prendre en compte de nuages nous permet de garder tous les pixels inversés de l'image dans les statistiques des résultats, et de conserver un échantillon statistique constant. En revanche, l'hypothèse sur les aérosols est une approximation forte, car la présence d'aérosols est souvent corrélée aux événements de pics d'ozone (épisode de pollution photochimique), et les aérosols influent sur le rayonnement, en particulier visible, et ainsi jouent un rôle sur la qualité de l'inversion du profil d'ozone (cf. section 2.5). Cependant, les aérosols sont complexes à modéliser, que ce soit de par la diversité de leurs sources et de leurs puits, mais également, la diversité des tailles, des formes et des propriétés de ces particules. Nous sommes donc restés sur une modélisation simple de l'atmosphère, sans aérosols, pour obtenir une première évaluation des capacités de l'instrument MAGEAQ à mesurer l'ozone dans la couche limite atmosphérique. Sachant que par la suite, pour améliorer la qualité des résultats, les aérosols devront faire partie de la simulation et de l'inversion à cause de leurs impacts sur le rayonnement.

## 2.3 Simulation du rayonnement

Une fois que la simulation de l'atmosphère est réalisée, on peut maintenant s'intéresser à la simulation de la quantité de rayonnement en sortie de cette atmosphère. En effet, la modélisation d'observations faites par un instrument géostationnaire, c'est à dire modélisation d'un système de mesure par télédétection (cf. section 1.5.2), passe par la modélisation de la quantité transportant l'information à mesurer : le rayonnement. La modélisation de ce rayonnement, sortant de l'atmosphère terrestre pour parvenir jusqu'au satellite, se fait à l'aide de modèles de transfert radiatif.

Cette section a pour but de présenter les principes généraux de fonctionnement des modèles de transfert radiatif, puis de présenter les deux modèles de transfert radiatif utilisés durant ces travaux de thèse : KOPRA (Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm) et VLIDORT (Vector Linearized Discrete Ordinate Radiative Transfer). On expliquera ensuite de quelle manière ces modèles ont été utilisés pour simuler le rayonnement en sortie de l'atmosphère.

### 2.3.1 Généralités sur les modèles de transfert radiatif

Nous savons, entre autres depuis les travaux d'Einstein et de Louis De Broglie, que le rayonnement électromagnétique a une nature à la fois ondulatoire et corpusculaire. Son vecteur est la particule baptisée photon. Chacune de ces particules transporte une énergie  $E$  telle que :  $E = \frac{h \times c}{\lambda}$ . Avec  $h$  la constante de Planck ( $h = 6,626.10^{-34}$  J.s),  $c$  la valeur de la célérité de la lumière dans le vide et  $\lambda$  la longueur d'onde du rayonnement électromagnétique. Ces photons sont capables d'interagir avec les autres particules du milieu traversé, notamment atomes et molécules, provoquant alors absorption et ré-émission de quanta d'énergie à nouveau sous la forme de photons. C'est en fonction de la physique sous-jacente que les photons, liés à une émission/absorption, ont une longueur d'onde (et par conséquent une énergie) plus ou moins élevée, en effet lors de l'interaction avec une molécule on peut distinguer trois cas de transition d'énergie :

- Les transitions de type électronique, c'est à dire liées au changement d'orbitale moléculaire ou atomique d'un électron. Ces transitions sont associées à des énergies élevées résultant en l'émission ou l'absorption de photons dans l'ultraviolet et le visible.
- Les transitions de type vibrationnelle, c'est à dire liées aux mouvements des atomes dans une molécule. Ces transitions sont associées à l'émission ou l'absorption de photons dans le domaine du visible et de l'infrarouge.
- Les transitions de type rotationnelle, c'est à dire liées aux mouvements d'une molécule autour d'un axe. Ces transitions sont associées à des énergies faibles résultant en l'émission ou l'absorption de photons dans l'infrarouge lointain et micro-ondes.

Chaque transition d'énergie émet/absorbe ainsi un photon à une longueur d'onde (ou encore le nombre d'onde  $\nu = \frac{1}{\lambda}$ ) donnée, ce qui correspond à ce que l'on appelle une raie spectrale. En réalité, à cause de différents processus d'élargissement, la raie spectrale va

s'étaler sur une gamme de longueur d'onde (ou nombre d'onde). On distingue 3 types d'élargissement :

- L'élargissement naturel des raies spectrales. En effet le principe d'Heisenberg en mécanique quantique stipule que tout état excité dont la durée de vie est limitée par  $\Delta t$  aura une incertitude sur son état d'énergie  $E$  telle que  $\Delta E = \frac{\hbar}{2\pi} \Delta t$ , ce qui conduit donc à une incertitude sur le nombre d'onde de la transition ( $\nu_0$ ) telle que  $\Delta\nu_0 = \frac{1}{2\pi c} \Delta t$ . Une transition donnée donnera donc un photon de nombre d'onde compris entre  $\nu_0 - \Delta\nu_0$  et  $\nu_0 + \Delta\nu_0$ .
- L'élargissement Doppler, apparaît lorsque la molécule émettrice (ou absorbante) a une vitesse dont la composante suivant la direction de propagation du rayonnement est  $u$  par rapport à l'observateur. Il y a alors un changement du nombre d'onde lié à l'effet Doppler tel que  $\Delta\nu = \nu_0 \frac{u}{c}$ . La distribution spectrale de l'intensité de la raie sur cette intervalle de nombre d'onde (on parle de « forme de la raie ») va également varier suivant une fonction gaussienne :

$$g_D(\nu - \nu_0) = \frac{1}{\alpha_D \sqrt{\pi}} \exp\left(-\frac{(\nu - \nu_0)^2}{\alpha_D^2}\right) \quad \text{avec} \quad \alpha_D = \frac{\nu_0}{c} \sqrt{\frac{2kT}{m}}$$

$m$  représentant la masse de la molécule.

- L'élargissement collisionnel. Ce dernier est prédominant dans la troposphère, et correspond au fait que lorsque deux molécules sont en interaction, les niveaux d'énergie d'une transition donnée vont être légèrement modifiés. La forme de la raie est alors modifiée selon une loi de Lorentz :

$$g_L(\nu - \nu_0) = \frac{\alpha_L}{\pi[(\nu - \nu_0)^2 + \alpha_L^2]} \quad \text{avec} \quad \alpha_L = \alpha_{L,0} \frac{p}{p_0} \left(\frac{T_0}{T}\right)^2$$

$\alpha_L$  représente la demi-largeur de raie à mi-hauteur, et est proportionnelle au nombre de collisions par unité de temps, ce qui explique sa dépendance en fonction de la pression et de la température.  $n$  est un indice compris entre 0,3 et 1 selon la molécule.

Le profil résultant de ces sources d'élargissement est appelé profil de Voigt, il correspond à la convolution d'une gaussienne et d'une lorentzienne.

En s'intéressant au devenir d'un photon lorsqu'il interagit avec la matière, on peut distinguer deux processus différents, l'absorption et la diffusion :

- L'absorption est le processus associé à la disparition du photon et à la transmission de son énergie à la matière sous forme d'énergie cinétique. Comme on l'a vu précédemment, l'absorption dépend directement de la transition énergétique, donc de la raie spectrale, à laquelle elle est associée. L'efficacité de l'absorption d'un photon à un nombre d'onde donnée et pour une transition énergétique donnée, va ainsi dépendre de l'intensité ( $S$ ) de la raie spectrale et de sa forme ( $g(\nu - \nu_0)$ ). On modélise ainsi souvent les processus d'absorption en passant par ce que l'on appelle la section efficace d'absorption ( $k^{abs}$ ) définie par :  $k^{abs}(\nu) = Sg(\nu - \nu_0)$ , et plus généralement, pour un milieu possédant un nombre  $p$  d'espèces absorbantes ayant chacune une concentration

$c$ , on utilise le coefficient d'absorption ( $\sigma^{abs}$ ) tel que :  $\sigma^{abs}(\nu) = \sum_{i=1}^p k_i^{abs}(\nu)c_i$ . Au final si l'on étudie la variation de la radiance ( $I$ ) par absorption lors de la traversée d'un milieu de longueur  $ds$ , on retrouve la loi de Beer-Lambert :

$$\frac{dI_\nu}{ds} = -\sigma_\nu^{abs}(s)I_\nu$$

- La diffusion (élastique) est le processus résultant de l'interaction entre un photon et la matière sans qu'il y ait modification de leurs énergies, seule la trajectoire du photon est modifiée. En fonction de la longueur d'onde du photon par rapport au diamètre ( $d$ ) de la particule sur laquelle le photon va être diffusé, on utilise différentes théories : la diffusion Rayleigh dans le cas où  $\lambda \ll d$  (diffusion moléculaire), l'optique géométrique dans le cas où  $\lambda \gg d$  (diffusion avec les gouttes d'eau), et dans le cas intermédiaire on utilise une théorie plus générale : la diffusion de Mie (diffusion des aérosols). Comme pour l'absorption, on peut exprimer la diffusion à partir d'une section efficace de diffusion ( $\sigma^{diff}$ ), cependant associée cette fois-ci à une fonction de phase ( $p(\theta)$ , avec  $\theta$  l'angle de diffusion) pour prendre en compte la directionnalité du rayonnement diffus. Ainsi par exemple dans le cas de la diffusion moléculaire dans l'air, la diffusion de Rayleigh nous donne :

$$\sigma^{diff}(\lambda) = \frac{24\pi^3 (m^2 - 1)^2}{N^2 \lambda^4 (m^2 + 1)^2} \quad \text{et} \quad p(\theta) = \frac{3}{4}(1 + \cos^2(\theta))$$

avec  $m$  l'indice de réfraction de l'air, et  $N$  la densité de molécules.

De plus, depuis les travaux de Planck en 1900, on sait que tout corps noir émet un rayonnement en fonction de sa température selon la loi de Planck :

$$B_\lambda(T) = \frac{2hc^2}{\lambda^5 [e^{\frac{hc}{\lambda T}} - 1]}$$

Sachant que l'on peut relier l'émission de tout corps à son émissivité  $\epsilon$  et la loi du corps noir avec :  $I_\lambda^{em}(T) = \epsilon_\lambda(T)B_\lambda(T)$ , et que la loi de Kirchhoff stipule qu'à l'équilibre thermodynamique local (ce qui est globalement valide dans l'atmosphère) on a :  $\epsilon = \sigma^{abs}$ , on peut en déduire la formulation générale de la variation de la radiance lors de la traversée d'un milieu de longueur  $ds$  en tenant compte seulement des processus d'émission et d'absorption :

$$\frac{dI_\lambda}{ds} = -\sigma_\lambda^{abs}(s)[I_\lambda - B_\lambda(T)]$$

Au final, en couplant tous ces processus, on obtient l'équation générale du transfert radiatif :

$$\frac{dI_\lambda}{ds} = -[\sigma_\lambda^{abs}(s) + \sigma_\lambda^{diff}(s)]I_\lambda + \sigma_\lambda^{abs}(s)B_\lambda(T) + \frac{\sigma_\lambda^{diff}(s)}{4\pi} \int P(\Omega, \Omega')I_\lambda(\Omega')d\Omega' \quad (2.2)$$

où  $P(\Omega, \Omega')$  représente la probabilité, décrite par la fonction de phase, qu'un photon vu à travers l'angle solide  $\Omega$  soit diffusé vers l'angle solide  $\Omega'$ . Ainsi on retrouve que le rayonnement, pour une ligne de visée donnée, traversant un milieu dépend du rayonnement en entrée, de l'absorption qu'il a subi durant sa traversée, et de la diffusion qu'il a subi et l'ayant amené en dehors de la ligne de visée. Auquel on ajoute le rayonnement émis le long de la ligne de visée à l'intérieur du milieu, et le rayonnement dans le milieu qui a subi une diffusion l'ayant amené sur la ligne de visée.

Les modèles de transfert radiatif résolvent l'équation générale du transfert radiatif (2.2), et ce pour toutes les longueurs d'onde d'intérêts. Souvent la modélisation diffère lors de l'étude d'une bande de longueur d'onde à une autre du fait que plusieurs approximations peuvent être faites, simplifiant l'équation. Par exemple lors de l'étude du transfert radiatif dans l'atmosphère, dans le cas de la bande du visible, le milieu traversé étant à une température avoisinant les 300 °K il ne pourra pas émettre via la loi de Planck de rayonnement visible, on peut donc négliger le terme d'émission  $B_\lambda(T)$ . Également, dans le cas du rayonnement infrarouge thermique, la diffusion moléculaire étant décroissante avec la longueur d'onde en  $\frac{1}{\lambda^4}$  elle peut être négligée. Enfin, nous ne nous sommes intéressés qu'à la modélisation de l'intensité du rayonnement, décrivant ainsi le flux de photons traversant le milieu d'étude, mais en réalité il faudrait également décrire la nature ondulatoire de la lumière en passant par exemple par le formalisme de Stokes qui décrit l'onde lumineuse comme un vecteur à 4 composantes :  $I, Q, U, V$  ; avec  $I$  l'intensité lumineuse,  $V$  l'intensité de polarisation circulaire, et  $L = Q + iU$  l'intensité de polarisation rectiligne. Bien que la lumière du soleil soit dite non-polarisée (car l'état de polarisation est orienté de façon aléatoire, ce qui en moyenne revient à une polarisation nulle), ce n'est plus vrai lors de sa traversée de l'atmosphère, en particulier à cause des processus de diffusion qui vont orienter l'état de polarisation vers une direction préférentielle. Une étude sur l'impact de la polarisation sur l'inversion de données est présentée en section 2.6.

### 2.3.2 Le modèle de transfert radiatif KOPRA



KOPRA (Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm) est un modèle de transfert radiatif (en anglais, radiative transfer model -RTM-) développé en 1998 par le Karlsruhe Institute of Technology (KIT). À l'origine développé pour l'instrument MIPAS à bord du satellite ENVISAT (Fischer et al., 2008; Carli et al., 2012), KOPRA modélise le transfert radiatif ayant lieu dans l'atmosphère pour des longueurs d'onde allant de l'infrarouge intermédiaire à l'infrarouge thermique. KOPRA est un modèle flexible pouvant s'adapter à tous les types de ligne de visée (limb, nadir) et altitudes de survol d'un instrument satellite donné.

KOPRA résoud l'équation du transfert radiatif, raie spectrale par raie spectrale, à partir des champs chimiques de l'atmosphère et de la géométrie de visée fournis en entrée du modèle par l'utilisateur. KOPRA utilise également la base de données spectroscopique HITRAN (Rothman et al., 2005, 2009) pour obtenir la valeur de certains paramètres liés aux molécules, comme par exemple les sections efficaces. La modélisation du transfert radiatif dans KOPRA prend en compte tous les processus physiques ayant lieu dans l'atmosphère, de la troposphère à la thermosphère, comme par exemple, l'élargissement et le mélange des raies spectrales, ou encore les phénomènes liés au non-équilibre thermodynamique local apparaissant dans les régions les plus élevées de l'atmosphère.

Plus de détails sur le modèle KOPRA peuvent être trouvés dans les articles Höpfner et al. (1998), et Stiller et al. (2002), ou encore sur le site web : <http://www.imk-asf.kit.edu/english/312.php>.

### 2.3.3 Le modèle de transfert radiatif VLIDORT



VLIDORT (Vector LInearized Discrete Ordinate Radiative Transfer) est un modèle développé par RT solutions en 2006, dans l'objectif de modéliser le rayonnement dans l'ultraviolet et le visible. VLIDORT modélise les 4 composantes du vecteur de Stokes pour le rayonnement ( $I, Q, U, V$ ), c'est à dire qu'il prend en compte la polarisation du rayonnement.

VLIDORT prend en compte la diffusion multiple de la lumière sur les particules, y compris la diffusion de la lumière polarisée, et utilise l'approximation pseudo-sphérique pour traiter de l'atténuation que subit le rayonnement solaire lors de sa traversée d'une atmosphère courbe. Afin de modéliser le processus de réflexion de la lumière sur la surface terrestre, VLIDORT utilise une base de données spectrales de réflectance obtenue grâce au satellite GOME (Global Ozone Monitoring Experiment), cf. Koelemeijer et al. (2003). Les sections efficaces proviennent également de la base de données HITRAN (Rothman et al., 2005, 2009), et d'une base de données concernant les gaz traces dans l'ultraviolet et le visible (Daumont et al., 1992; Brion et al., 1993, 1998; Malicet et al., 1995). Cette dernière a été utilisée pour la modélisation des observations simulées du satellite GEOCAPE (Natraj et al., 2011).

Plus de détails sur VLIDORT peuvent être trouvés dans Spurr (2006); Spurr et al. (2008).

### 2.3.4 Modélisation de l'albédo spectral dans VLIDORT

Précédemment, nous avons vu que VLIDORT utilise une base de données spectrales de réflectance obtenue grâce au satellite GOME afin de modéliser le processus de réflectance. Plus exactement, nous allons considérer dans VLIDORT les surfaces comme étant toutes lambertiennes, et prendre pour chaque surface une valeur d'albédo spectral de surface tirée

de la base de données spectrales. Cette base de données contient les valeurs minimales de l'albédo spectral de surface, mesuré par GOME, pour les longueurs d'onde 335, 380, 416, 440, 463, 494, 555, 610, 670, 758 et 772 nm. Les données GOME considérées pour créer la base de données vont du 27 Juin 1995 au 31 Décembre 2000, ces données sont ensuite échantillonnées mois par mois et sur une grille, couvrant le globe, de résolution spatiale  $1^\circ \times 1^\circ$ . On a donc une base de données d'albédo spectral de surface, mensuel, avec un maillage sur le globe de  $1^\circ$ , pour 11 longueurs d'onde différentes.

Afin d'affiner la représentation de l'albédo de surface en fonction de la longueur d'onde, nous avons choisi de représenter les valeurs de l'albédo de surface, en fonction de la longueur d'onde, par un polynôme d'ordre 3. Nous avons donc réalisé une interpolation polynomiale pour chaque point de la base de données (mensuel et de maille  $1^\circ$ ).

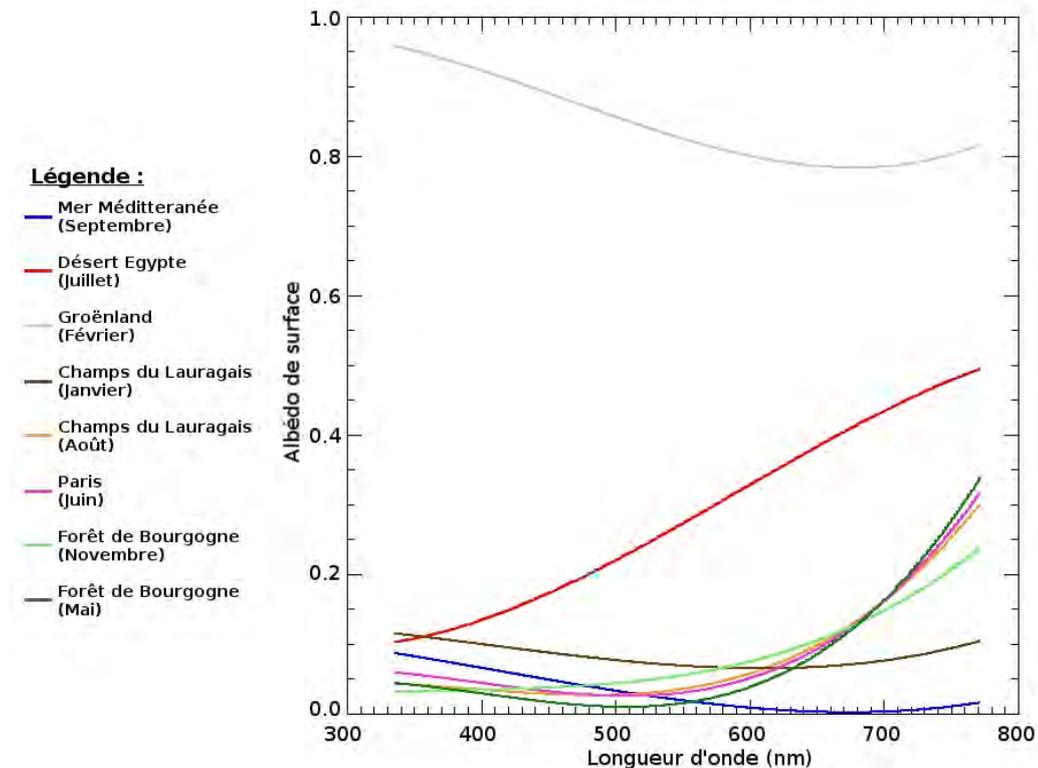


FIGURE 2.4 – Tracé de l'albédo de surface en fonction de la longueur d'onde. Les couleurs indiquent différents types de surface à des mois particuliers (cf. légende sur la figure).

Au final, ce sont ces polynômes d'ordre 3 de l'albédo de surface qui sont transmis à VLI-DORT pour calculer le rayonnement. La figure 2.4 présente l'albédo de surface en fonction de la longueur d'onde, pour différents types de surface, à différentes époques de l'année, donnée par les polynômes d'ordre 3. On notera que cette représentation simple de l'albédo de surface ne permet pas de prendre en compte les signatures spectrales liées à certains

types de surface, comme par exemple les surfaces végétales qui devraient présenter un pic entre 500 et 550 nm.

À nouveau, nous sommes restés sur une modélisation simple de la surface, en la considérant lambertienne et en représentant l'albédo spectral de surface par un polynôme d'ordre 3. La surface joue un rôle essentiel pour la réflectance du rayonnement, en particulier dans le visible, car la méconnaissance que l'on en a va influencer fortement sur la qualité de l'inversion des mesures de l'instrument. En réalité, il nous faudrait utiliser une modélisation beaucoup plus complexe afin de mieux représenter les propriétés des surfaces, par exemple, en tenant compte des signatures spectrales de la végétation (Richter et al., 2012), et de la direction privilégiée de diffusion de la surface, on parle alors de fonctions de distribution de la réflectance bidirectionnelle (en anglais, Bidirectional Reflectance Distribution Function -BRDF-; Noe, 1999).

### 2.3.5 Simulation du rayonnement en sortie de l'atmosphère avec KOPRA et VLIDORT

Au final, la simulation du rayonnement en sortie de l'atmosphère passe par l'utilisation simultanée des deux RTMs, KOPRA et VLIDORT, et par le couplage des résultats de ces derniers, afin d'obtenir des résultats dans les deux bandes d'intérêts de l'instrument MAGEAQ (cf. sections 1.5.3.3 et 2.4) : l'infrarouge thermique (TIR) et le visible (VIS).

Les deux RTMs nécessitent, pour fonctionner, des données géométriques liées au système d'observation, à savoir :

- la position de l'instrument par rapport à la surface terrestre, c'est à dire pour notre instrument géostationnaire,  $0^\circ$  de latitude,  $10^\circ$  de longitude, et 36 000 km d'altitude.
- la date et l'heure de l'observation.
- la position (latitude et longitude) de la cible.
- l'angle solaire zénithal (en anglais, Solar Zenith Angle -SZA-), qui représente l'angle que fait le soleil par rapport à la verticale locale à la position de la cible.
- l'angle d'observation par rapport au zénith (en anglais, View Zenith Angle -VZA-), qui représente l'angle que fait le système d'observation par rapport à la verticale locale à la position de la cible.
- l'azimuth, c'est à dire l'angle entre la direction d'observation de l'instrument et une direction de référence (ici on considère la direction entre la position de la cible et le Nord géographique).

En plus des données géométriques, il faut également fournir aux RTMs les paramètres thermodynamiques de l'atmosphère, c'est à dire la pression et la température à la surface, et les profils de pression, d'altitude et de température de l'atmosphère. Enfin, comme évoqué section 2.2.3, il nous faut aussi fournir les profils des constituants chimiques de l'atmosphère qui vont jouer un rôle sur le rayonnement, sachant que l'impact d'une espèce chimique varie en fonction de la longueur d'onde considérée.

Ainsi pour la bande dans le TIR on considère les espèces chimiques suivantes :  $O_3$ ,  $H_2O$ ,  $CO_2$ ,  $N_2O$ ,  $CH_4$ . En effet, en étudiant les raies spectrales d'absorption de l'atmosphère dans la bande TIR de l'instrument (entre  $1000$  et  $1070\text{ cm}^{-1}$ ), on retrouve ces principaux constituants (cf. Fig. 2.5).

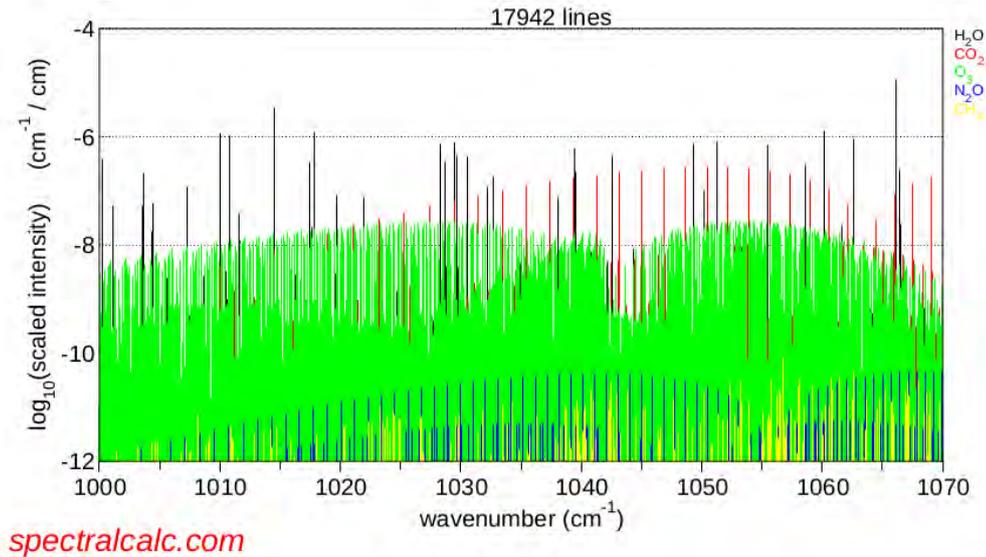


FIGURE 2.5 – Raies spectrales d'absorption atmosphérique dans la bande TIR allant de  $1000$  à  $1070\text{ cm}^{-1}$ , issues de la base de données HITRAN 2008. Dans cette bande,  $O_3$  est le principal absorbant, avec la contribution de  $H_2O$  et  $CO_2$ . De manière moins importante,  $N_2O$  et  $CH_4$  sont également présents. L'intensité des raies spectrales pour chaque constituant est fonction également de l'abondance du constituant, prise dans le cas d'une atmosphère standard, à la surface. Cette figure provient du site [www.spectralcalc.com](http://www.spectralcalc.com).

Dans la bande VIS on considère les espèces chimiques suivantes :  $O_3$ ,  $H_2O$ ,  $NO_2$ . En effet, la figure 2.6 nous donne la section efficace des constituants atmosphériques impactant le rayonnement visible entre  $520$  et  $650\text{ nm}$ , et on retrouve les 3 espèces chimiques précédentes. On trouve également l'espèce chimique  $O_2$ , mais elle n'impactera que dans une bande étroite entre  $627$  et  $634\text{ nm}$ , nous l'avons donc négligée.

Au final, les RTMs vont nous donner les radiances qui, pour une cible donnée à la surface de la Terre, vont parvenir jusqu'à l'instrument à bord du satellite, en tenant compte d'une atmosphère simplifiée (obtenue avec MOCAGE cf. section 2.2.3), où seules demeurent les principales espèces chimiques influant sur le rayonnement dans les bandes étudiées. Mais ce n'est pas tout, comme nous allons le voir section 2.5 pour pouvoir réaliser l'inversion de données nous avons besoin des jacobiens des paramètres que l'on désire inverser (pour le paramètre  $x$ , le jacobien  $K$  sera tel que :  $K = \frac{\partial I}{\partial x}$ , où  $I$  représente les radiances), ces jacobiens sont calculés également par les RTMs, KOPRA et VLIDORT.

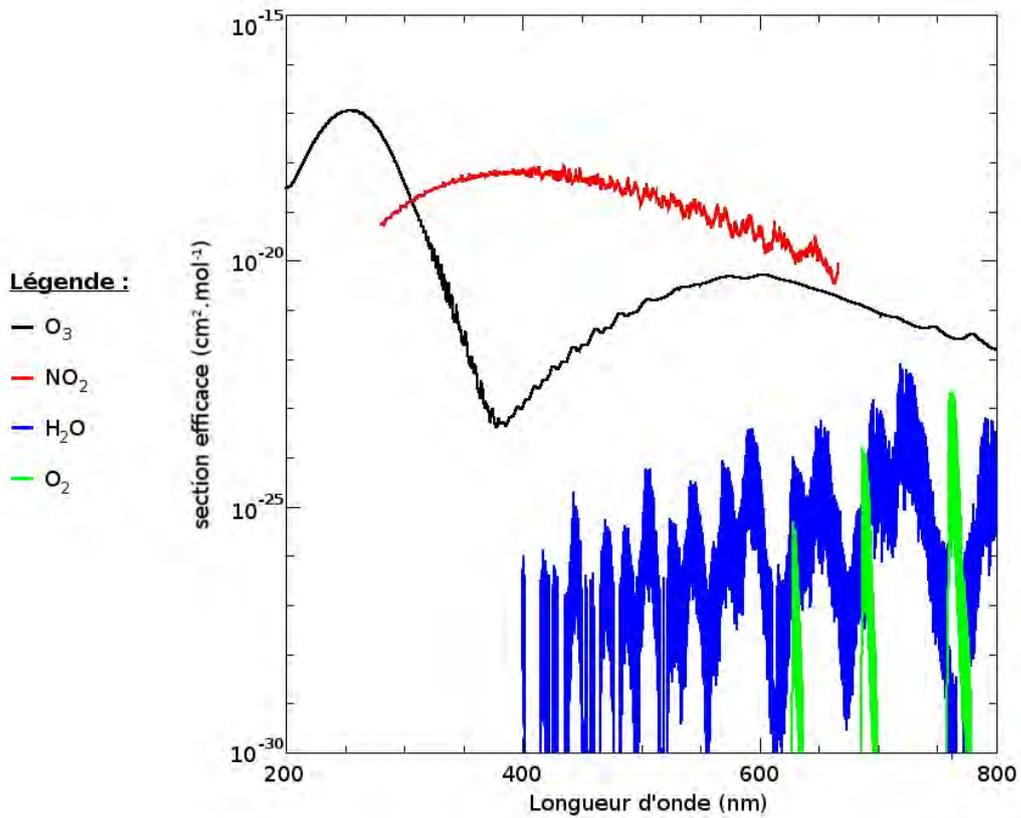


FIGURE 2.6 – Sections efficaces, tirées de VLIDORT, dans l’ultraviolet et le visible des principaux constituants chimiques impactant la bande visible entre 520 et 650 nm. Les différentes couleurs représentent différents constituants chimiques (cf. légende sur la figure).

## 2.4 Le modèle instrumental

Une fois que l'on a simulé les radiances parvenant jusqu'à l'instrument à bord du satellite, il faut leur appliquer ce qu'on appelle un modèle instrumental pour obtenir les radiances mesurées par l'instrument. En effet, les mesures réalisées par tout instrument sont empreintes d'une incertitude contrainte, entre autres, par la sensibilité et la résolution des capteurs. Le modèle instrumental permet de tenir compte de ces incertitudes, ou erreurs de mesures, et ainsi de passer des radiances issues de l'atmosphère aux radiances effectivement mesurées par l'instrument à bord du satellite géostationnaire.

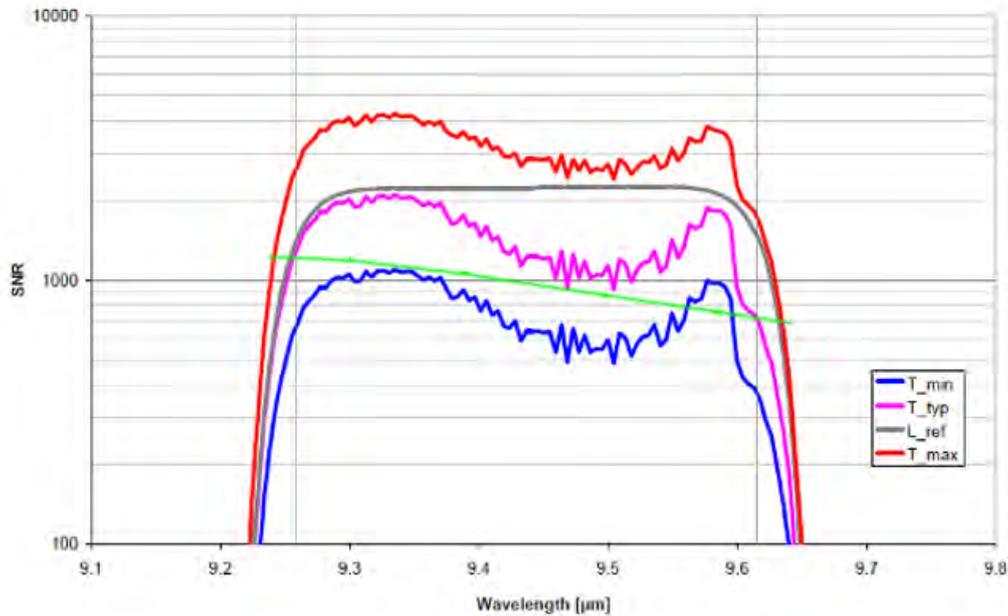


FIGURE 2.7 – Courbes de SNR pour l'instrument TIR du concept MAGEAQ. En magenta le SNR pour un cas de radiance issu d'un profil atmosphérique typique. En bleu un cas minimum, et en rouge un cas maximum. En gris le SNR pour un profil de radiance issu d'un corps noir à  $T = 280$  °K. En vert est représenté le SNR modélisé utilisé dans ce travail de thèse.

Dans ce travail de thèse, nous avons modélisé les radiances mesurées par l'instrument à partir des bandes spectrales de ce dernier, de la résolution spectrale de l'instrument dans chacune de ces bandes, et du bruit de mesure de l'instrument. Ainsi, les radiances en sortie des modèles de transfert radiatif sont convoluées par une fonction de lissage gaussienne (représentée par sa largeur à mi-hauteur -FWHM-) permettant de simuler la dispersion spectrale de l'instrument. Ensuite, ces radiances sont filtrées par des fonctions « porte » correspondant aux bandes spectrales de l'instrument dans l'infrarouge thermique et le visible. Enfin, on ajoute à ces radiances (appelées  $I_{mod}$ ) le bruit instrumental modélisé par une

variable aléatoire suivant une loi normale centrée réduite ( $\tilde{N}$ ) et le rapport signal sur bruit (en anglais, Signal to Noise Ratio -SNR-),  $\sigma_{SNR}$ , de l'instrument :

$$I_{meas} = I_{mod} + \left( \frac{I_{mod}}{\sigma_{SNR}} \times \tilde{N} \right) \quad (2.3)$$

Sachant que nous modélisons la variation du SNR en fonction de la longueur d'onde avec la formule :  $\sigma_{SNR} = a \times \lambda + b$ , où  $\lambda$  est la longueur d'onde exprimée en nm,  $a$  et  $b$  sont des coefficients obtenus à partir de l'étude détaillée du concept MAGEAQ réalisée par Airbus Defence and Space (cf. Fig. 2.7 et Fig. 3.1).

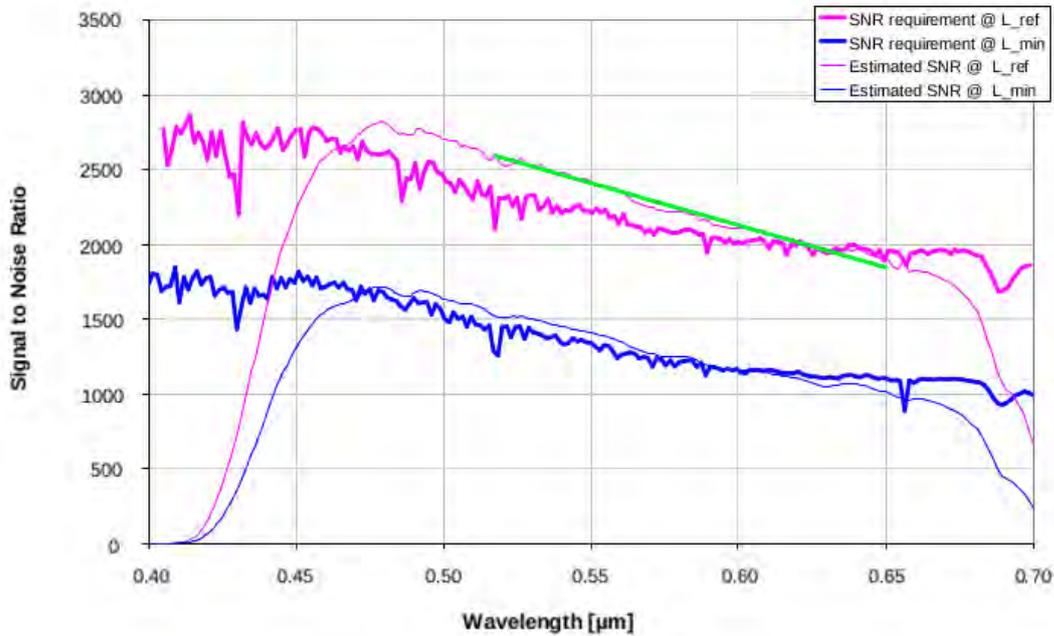


FIGURE 2.8 – Courbes de SNR pour l'instrument VIS du concept MAGEAQ. En magenta le SNR pour un cas de radiance typique, et en bleu pour un cas de radiance minimum. En gras sont représentées les courbes de SNR issues de l'exigence scientifique. En trait fin sont représentées les courbes de SNR estimés par Airbus Defence and Space pour l'instrument. En vert est représenté le SNR modélisé utilisé dans ce travail de thèse.

Le modèle de SNR réalisé par Airbus Defence and Space tient compte de diverses sources de bruit, comme le bruit quantique, le courant d'obscurité, le bruit de lecture, le bruit thermique, etc. Il prend également en compte les différents éléments optiques, les plans focaux, la géométrie et le temps d'intégration, des deux spectromètres à réseaux (infrarouge thermique et visible). Au final, on obtient, grâce à ce modèle de SNR, le bruit de mesure ( $\epsilon_\lambda$ ) de l'instrument dans chaque longueur d'onde ( $\lambda$ ) qui nous permet de calculer  $I_{meas}$ , mais également la matrice de covariance d'erreur liée à la mesure ( $S_\epsilon$ , cf. section 2.5). En effet, en considérant que pour une longueur d'onde donnée le bruit de mesure de l'instrument est indépendant des autres longueurs d'onde, on peut construire la matrice  $S_\epsilon$  ainsi :

$$S_\epsilon = \begin{pmatrix} \epsilon_{\lambda_{VIS},0}^2 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \ddots & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{\lambda_{VIS},n}^2 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \epsilon_{\lambda_{TIR},0}^2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \ddots & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \epsilon_{\lambda_{TIR},m}^2 \end{pmatrix}$$

où l'on tient compte du bruit instrumental dans la bande visible pour chaque longueur d'onde allant de 0 à  $n$ , et dans la bande infrarouge thermique pour chaque longueur d'onde allant de 0 à  $m$ . La matrice est diagonale et peut aisément être inversée pour ensuite être utilisée dans l'algorithme d'inversion de données.

Enfin un dernier point concernant l'instrument : ce dernier contient un « scrambler » en entrée. Un scrambler est un dispositif permettant d'annuler (ou du moins de réduire drastiquement) la polarisation du rayonnement, et permet ainsi de s'affranchir des perturbations associées. En effet, la lumière polarisée, en interagissant avec les surfaces optiques de l'instrument, va produire une lumière parasite, d'autant plus importante que la polarisation est forte. Dans la section 2.6 nous présentons les résultats d'une étude réalisée sur la polarisation, estimant l'effet parasite de cette dernière dans la mesure de l'ozone troposphérique, pour différents types de scrambler plus ou moins efficaces pour atténuer la polarisation. Dans les chapitres 3 et 4, nous avons considéré que le scrambler de l'instrument est parfait, et que l'effet de la polarisation est nul.

On peut s'intéresser maintenant plus en détails à la configuration des deux spectromètres modélisés, infrarouge thermique et visible, aux caractéristiques très proches de celles de MAGEAQ, que l'on a respectivement nommé GEO TIR et GEO VIS.

### 2.4.1 Caractéristiques du spectromètre infrarouge thermique

TABLE 2.1 – Configuration instrumentale du spectromètre infrarouge thermique.

|  |                              |
|--|------------------------------|
| Bande spectrale                        | 1000 – 1070 $\text{cm}^{-1}$ |
| Résolution d'échantillonnage spectrale | 0,1 $\text{cm}^{-1}$         |
| Résolution spectrale FWHM              | 0,2 $\text{cm}^{-1}$         |
| $\sigma_{SNR}$ : coefficient a         | -1,374 $\text{nm}^{-1}$      |
| $\sigma_{SNR}$ : coefficient b         | 13 940 (sans dimension)      |

Dans le tableau 2.1 sont répertoriées toutes les caractéristiques spectrales de l'instrument GEO TIR. La bande spectrale, allant de 1000 à 1070  $\text{cm}^{-1}$ , a été choisie dans le but de maximiser l'information en ozone lors de la mesure. En effet, dans cette bande l'absorption atmosphérique due à l'ozone est maximale (cf. Fig. 2.9), ainsi en déterminant l'écart entre l'émission de corps noir de la Terre et le spectre réellement mesuré dans cette bande on obtient de l'information sur la concentration d'ozone dans l'atmosphère. Cependant,

la présence dans cette bande d'autres absorbants que l'ozone, comme par exemple  $\text{H}_2\text{O}$ , va contaminer la mesure de l'ozone. Pour diminuer au maximum la contamination de la mesure par ces absorbants, on sélectionne dans la bande spectrale des micro-fenêtres. Les micro-fenêtres caractérisent les zones de la bande spectrale où la contamination par les autres absorbants est la plus faible. Au final, ce sont les radiances dans ces micro-fenêtres qui seront utilisées pour inverser le profil d'ozone. On utilise 21 micro-fenêtres, pour inverser l'ozone, dans la bande spectrale de GEO TIR (Claeyman et al., 2011b).

Les autres caractéristiques de l'instrument ont été choisies en accord avec Airbus Defence and Space dans le but de maximiser le SNR tout en gardant une contrainte sur la technologie utilisée et son coût.

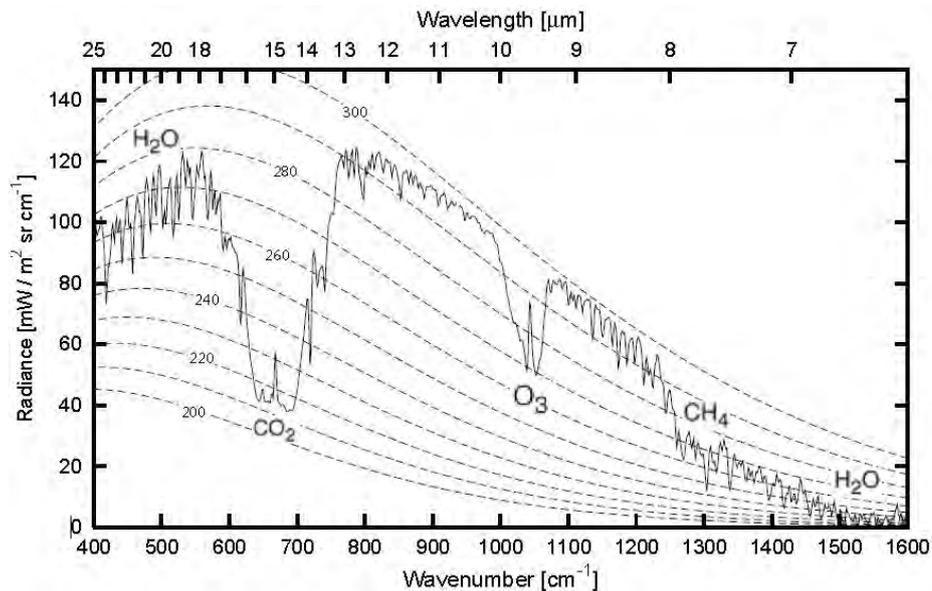


FIGURE 2.9 – Radiances dans l'infrarouge thermique mesurées en sortie de l'atmosphère, et comparaison avec les radiances prévues par la loi du corps noir pour diverses températures (courbes en pointillées). Les principaux absorbants d'une bande sont également donnés. D'après les données de l'instrument IRIS distribué par le Goddard EOS Distributed Active Archive Center (DAAC) et Hanel et al. (1971).

Le rayonnement infrarouge thermique, dans la bande spectrale de GEO TIR, est émis, suivant la loi de Planck, par la surface terrestre et l'atmosphère. Ce rayonnement traverse l'atmosphère en interagissant principalement avec l'ozone et atteint l'instrument à bord du satellite. L'avantage de la mesure du rayonnement, dans cette bande spectrale, est d'être très sensible aux concentrations d'ozone dans la basse troposphère jusque dans la stratosphère. De plus, l'émission thermique ayant lieu également la nuit nous permet ainsi de réaliser des mesures en continu, jour et nuit. Ces mesures sont cependant peu sensibles aux basses couches de l'atmosphère (cf. section 3.2.3.1), il est ainsi difficile de mesurer uniquement avec cette bande l'ozone proche de la surface (pour la qualité de l'air), même en bénéficiant

de conditions particulières, de très fort gradient thermique par exemple.

### 2.4.2 Caractéristiques du spectromètre visible

On trouvera dans le tableau 2.2 les caractéristiques spectrales de l'instrument GEO VIS. La bande spectrale a été choisie ici aussi de manière à maximiser l'information en ozone, en sélectionnant la bande dans le visible où la section efficace de l'ozone est maximum (cf. Fig. 2.6). Dans cette bande aussi la mesure est contaminée par la présence d'autres espèces chimiques, et ce d'autant plus que ces dernières forment un continuum dans la bande étudiée (par exemple,  $\text{H}_2\text{O}$  et  $\text{NO}_2$ ), on ne peut donc pas les filtrer en utilisant des micro-fenêtres. Il nous faudra ainsi connaître les concentrations de ces espèces chimiques contaminantes de manière la plus précise possible, afin de décontaminer la mesure et ainsi extraire, à partir du spectre mesuré, le maximum d'information sur le profil d'ozone (cf. section 2.5).

TABLE 2.2 – Configuration instrumentale du spectromètre visible.

|  |                        |
|--|------------------------|
| Bande spectrale                        | 520 – 650 nm           |
| Résolution d'échantillonnage spectrale | 0,3 nm                 |
| Résolution spectrale FWHM              | 1,2 nm                 |
| $\sigma_{SNR}$ : coefficient a         | -5,83 nm <sup>-1</sup> |
| $\sigma_{SNR}$ : coefficient b         | 5 616 (sans dimension) |

L'instrument GEO VIS utilise la bande visible dans le but d'obtenir, lors de la mesure, de l'information provenant de la surface. En effet, l'atmosphère (lorsqu'il n'y a pas de nuages) est transparente au rayonnement visible. Le soleil émet le rayonnement visible qui va traverser l'atmosphère, être réfléchi à la surface de la Terre, puis re-traverser l'atmosphère et atteindre l'instrument à bord du satellite. Tout au long de son parcours à travers l'atmosphère le rayonnement visible va interagir avec l'ozone (et avec les autres espèces chimiques contaminantes), ainsi ce rayonnement est en partie sensible aux concentrations d'ozone à la surface de la Terre (cf. section 3.2.3.1).

## 2.5 L'inversion de données

Jusqu'ici, nous avons vu comment modéliser les radiances mesurées par notre instrument virtuel regardant l'atmosphère depuis l'altitude d'un satellite géostationnaire. Pour pouvoir passer de la mesure des radiances en une mesure d'un profil des concentrations d'ozone, il faut passer par la résolution d'un problème inverse à l'aide d'une méthode d'inversion de données. Nous décrirons ainsi dans cette section le principe général de l'inversion de données, puis nous détaillerons l'algorithme d'inversion de données utilisé et la construction du vecteur d'état de l'inversion. Enfin nous décrirons l'utilisation, que l'on a faite, de la chaîne d'inversion de données.

### 2.5.1 Généralités sur l'inversion de données

Par définition, un problème inverse est une situation dans laquelle on tente de déterminer les paramètres conduisant à un phénomène observé à l'aide d'instruments. Pour pouvoir résoudre un problème inverse il faut d'abord modéliser le phénomène, dit modèle direct, permettant ainsi de relier les divers paramètres du modèle aux effets observables expérimentalement. Ensuite, la démarche consiste à approximer au mieux les différents paramètres du modèle de sorte que le résultat du modèle direct soit le plus proche possible des mesures, on parle alors de méthode d'inversion de données. La difficulté de l'inversion de données réside dans le fait que généralement les seules mesures ne suffisent pas à déterminer de manière unique tous les paramètres du modèle, on parle alors de problème mal posé, et aussi du fait que parfois les problèmes sont non linéaires, c'est à dire que le résultat du modèle direct peut s'approcher des mesures alors que les paramètres du modèle direct s'écartent des paramètres réels. Il faut alors ajouter des contraintes ou des a priori permettant de réduire l'espace des possibilités de façon à aboutir à une solution unique.

Une méthode d'inversion consistant à déduire la meilleure estimation statistique d'un état de l'atmosphère à partir des mesures spectrales, du modèle direct, et de la connaissance a priori de l'état de l'atmosphère, est décrite dans Rodgers (2000). Nous nous proposons dans la suite de décrire cette méthode, dite d'estimation optimale.

#### 2.5.1.1 Le modèle direct

On peut donc modéliser un état mesuré  $y$  à partir d'un modèle direct  $F$  dépendant de divers paramètres, et d'une erreur de mesure  $\epsilon$ . On distingue parmi tous les paramètres du modèle direct ceux que l'on va vouloir par la suite inverser, que l'on place alors dans le vecteur d'état  $x$ , des paramètres restants  $b$  :

$$y = F(x, b) + \epsilon \quad (2.4)$$

Cette description de la mesure est d'autant plus facile à comprendre que cela représente exactement ce que l'on a mis en place jusqu'à présent pour modéliser les observations de notre instrument virtuel.

En supposant que le modèle direct est linéaire autour d'une valeur a priori du vecteur d'état  $x_a$  et des paramètres  $\hat{b}$ , on peut linéariser l'équation (2.4) :

$$y = F(x_a, \hat{b}) + \frac{\partial F}{\partial x}(x - x_a) + \frac{\partial F}{\partial b}(b - \hat{b}) + \epsilon \quad (2.5)$$

On pose alors  $\frac{\partial F}{\partial x} = K_x$ , et  $\frac{\partial F}{\partial b} = K_b$ , respectivement les jacobiens du vecteur d'état et des paramètres du modèle.

### 2.5.1.2 Le modèle inverse

Le problème inverse consiste donc maintenant à retrouver une estimation du vecteur d'état  $\hat{x}$ , la plus proche possible de la solution réelle  $x$ , à partir de la connaissance d'un état mesuré  $y$  et d'une estimation des paramètres  $\hat{b}$  :

$$\hat{x} = R(y, \hat{b}) = R(F(x, b) + \epsilon, \hat{b}) \quad (2.6)$$

On peut alors à nouveau linéariser autour de l'état a priori  $x_a$  et des paramètres  $\hat{b}$  :

$$\hat{x} = R[F(x_a, \hat{b}) + K_x(x - x_a) + K_b(b - \hat{b}) + \epsilon, \hat{b}] \quad (2.7)$$

qui après linéarisation du modèle inverse par rapport à  $y$  donne :

$$\hat{x} = R[F(x_a, \hat{b})] + \frac{\partial R}{\partial y}[K_x(x - x_a) + K_b(b - \hat{b}) + \epsilon] \quad (2.8)$$

En posant  $\frac{\partial R}{\partial y} = G_y$  la matrice de gain du modèle inverse,  $G_y K_x = \frac{\partial \hat{x}}{\partial x} = A$  la matrice des fonctions de balayage (en anglais, averaging kernels -AVKs-) et  $K_b(b - \hat{b}) + \epsilon = \epsilon_y$  l'erreur totale de la mesure relative au modèle direct, on peut alors ré-écrire l'équation 2.8 ainsi :

$$\hat{x} = R[F(x_a, \hat{b})] + A(x - x_a) + G_y \epsilon_y \quad (2.9)$$

Sachant que si la méthode d'inversion est fiable  $R[F(x_a, \hat{b})] = x_a$ , on peut alors réécrire (2.9) :

$$\hat{x} = Ax + (I - A)x_a + G_y \epsilon_y \quad (2.10)$$

où  $I$  est la matrice identité.

L'équation (2.10) nous permet ainsi de mieux cerner le rôle de la matrice des AVKs,  $A$ . En effet, cette dernière représente la sensibilité de l'état estimé par rapport à l'état réel, et permet d'estimer la qualité de l'inversion en général. Ainsi dans le cas parfait,  $G_y \epsilon_y$  tend vers 0 et la matrice des AVKs est égale à la matrice identité. Toute l'information de l'inversion provient alors de la mesure et l'on obtient  $\hat{x} = x$ .

D'après Rodgers (2000) la résolution du problème inverse revient à minimiser l'écart entre les radiances mesurées  $y$  et les radiances calculées par le modèle direct  $F(x)$ , et l'écart

entre le vecteur d'état  $x$  et l'a priori  $x_a$ , tout en considérant les matrices de covariance d'erreur associées à la mesure et à l'a priori, respectivement  $S_\epsilon$  et  $S_a$  :

$$\|y - F(x)\|_{S_\epsilon^{-1}}^2 + \|x - x_a\|_{S_a^{-1}}^2 = (y - F(x))^T S_\epsilon^{-1} (y - F(x)) + (x - x_a)^T S_a^{-1} (x - x_a)$$

Cependant, à cause de la non-linéarité de  $F(x)$  il est nécessaire d'utiliser une minimisation itérative, par exemple de type Gauss-Newton, qui nous donne alors :

$$x_{i+1} = x_i + (K_i^T S_\epsilon^{-1} K_i + S_a^{-1})^{-1} [K_i^T S_\epsilon^{-1} (y - F(x_i)) - S_a^{-1} (x_i - x_a)] \quad (2.11)$$

avec  $i$  le numéro de l'itération et  $K_i$  le jacobien à l'itération  $i$ .

On peut alors écrire la matrice de gain du modèle inverse ainsi :

$$G_y = (K^T S_\epsilon^{-1} K + S_a^{-1})^{-1} K^T S_\epsilon^{-1} \quad (2.12)$$

ce qui donne pour la matrice des AVKs :

$$A = (K^T S_\epsilon^{-1} K + S_a^{-1})^{-1} K^T S_\epsilon^{-1} K \quad (2.13)$$

Enfin, il est également utile de définir les degrés de liberté de l'inversion (en anglais, Degrees of Freedom for Signal -DFS-) tel que :  $\text{DFS} = \text{tr}(A)$ , c'est à dire la trace de la matrice des AVKs. Les degrés de liberté représentent la quantité d'information indépendante à un niveau donné issu de l'inversion.

### 2.5.1.3 L'estimation des erreurs

L'avantage à utiliser cette méthode d'inversion est de pouvoir estimer les contributions des diverses sources d'erreurs possibles. En effet, si l'on reprend l'équation (2.10) et qu'on la réécrit en exprimant l'erreur sur l'inversion,  $\hat{x} - x$ , on obtient :

$$\hat{x} - x = (A - I)(x - x_a) + G_y K_b (b - \hat{b}) + G_y \epsilon$$

Ainsi le terme  $(A - I)(x - x_a)$  représente l'erreur de lissage que l'on peut réécrire en terme de matrice de covariance d'erreur  $S_s$  :

$$S_s = (A - I) S_\epsilon (A - I)^T$$

où  $S_\epsilon$  est la covariance d'un ensemble d'états réels par rapport à l'état moyen. L'erreur de lissage dénote l'erreur commise à partir de l'état a priori et du lissage du profil par les AVKs.

Le terme  $G_y K_b (b - \hat{b})$  représente l'erreur sur l'estimation des paramètres non-inversés du modèle. La matrice de covariance d'erreur s'écrit alors :

$$S_p = G_y K_b S_b K_b^T G_y^T$$

où  $S_b$  correspond à la matrice de covariance d'erreur des paramètres  $b$  du modèle direct, et  $K_b$  le jacobien correspondant. Elle dénote l'erreur commise par la connaissance imparfaite des paramètres du modèle.

Enfin le terme  $G_y \epsilon$  représente l'erreur de bruit de mesure. La matrice de covariance d'erreur associée est :

$$S_m = G_y S_\epsilon G_y^T$$

Cette erreur représente la propagation de l'erreur de mesure sur l'inversion.

Au final, on peut déduire à partir de ces erreurs la matrice de covariance d'erreur totale sur l'estimation  $S_{tot}$  :

$$S_{tot} = S_s + S_p + S_m$$

## 2.5.2 Mise en place de l'algorithme d'inversion de données

Dans ce travail de thèse, l'algorithme d'inversion utilisé pour créer les observations synthétiques provient d'un code d'inversion baptisé MOLIERE (Baron and De La Noe, 1999; Lautie, 2003; Urban et al., 2004) initialement développé pour l'inversion des mesures du satellite Odin. Cet algorithme reprend la minimisation itérative de Gauss-Newton (cf. équation (2.11), Rodgers, 2000), une méthode d'ordre 2 qui converge rapidement mais qui peut être instable, à laquelle on adjoint un schéma itératif de premier ordre proposé par Levenberg (1944) et Marquardt (1963) dans le but de justement stabiliser la méthode. On obtient ainsi :

$$x_{i+1} = x_a + (K_i^T S_\epsilon^{-1} K_i + (1 + \gamma) S_a^{-1})^{-1} [K_i^T S_\epsilon^{-1} (y - F(x_i)) + K_i [x_i - x_a] + \gamma S_a^{-1} (x_i - x_a)] \quad (2.14)$$

$\gamma$  est le paramètre de Levenberg-Marquardt, il contrôle la vitesse de convergence de la méthode. En effet si  $\gamma = 0$  le schéma itératif redevient égal au schéma de Gauss-Newton (équation 2.11). Dans le cas où  $\gamma$  est grand, la méthode devient un schéma de premier ordre, stabilisant le processus mais ralentissant la convergence. Également, plus  $\gamma$  est grand et plus le poids associé à l'information a priori est grand. Le but de l'algorithme est donc de faire varier  $\gamma$  durant les itérations de manière à assurer la stabilité de la méthode tout en convergent rapidement. De plus, on souhaite qu'idéalement  $\gamma$  tende vers zéro permettant ainsi à la méthode d'extraire le maximum d'information provenant de la mesure.

Afin de stabiliser la méthode et de vérifier que l'on évolue vers la convergence, la méthode évalue à chaque itération  $i$  le critère  $\chi^2$  :

$$\chi_i^2 = [(x_i - x_a)^T S_a^{-1} (x_i - x_a)] + [(y - F(x_i))^T S_\epsilon^{-1} (y - F(x_i))]$$

L'évolution de la méthode est alors conditionnée suivant que la valeur de ce critère  $\chi^2$  à l'itération  $i$  est inférieure ou bien supérieure à sa valeur à l'itération  $i - 1$  :

- Si à l'itération  $i$  :  $\chi_i^2 \geq \chi_{i-1}^2$ , alors la méthode ne s'est pas rapprochée de la convergence, par conséquent on augmente  $\gamma$  en le multipliant par un facteur  $w$ , et on recalcule la valeur  $x_i$  à l'aide de l'équation (2.14).

- Si à l'itération  $i$  :  $\chi_i^2 < \chi_{i-1}^2$ , alors la méthode s'est rapprochée de la convergence, dans ce cas on peut diminuer  $\gamma$  en le divisant par le facteur  $w$ , et on peut calculer l'itération suivante  $x_{i+1}$  à l'aide de l'équation (2.14).

Le choix de la valeur du facteur  $w$  est dépendant des différents cas dans lesquels est mis en œuvre la méthode de Levenberg-Marquardt.

### 2.5.3 Vecteur d'état et information a priori

Dans cette section nous allons maintenant plus amplement nous intéresser au vecteur d'état et à l'information a priori utilisés dans l'inversion de données. En effet, notre système de mesure simulé étant créé pour la mesure de l'ozone, il est évident que le vecteur d'état doit contenir le profil d'ozone. Cependant, comme on l'a vu section 2.5.1.3 l'erreur totale sur l'inversion de l'ozone dépend également d'une composante liée à la connaissance imparfaite des autres paramètres du modèle. En effet les bandes spectrales de l'instrument ne contiennent pas uniquement de l'information provenant de l'ozone, mais également de l'information provenant des profils d'autres espèces chimiques contaminantes (cf. section 2.4), et de divers paramètres physiques (par exemple le gradient de température, l'albédo de surface, l'émissivité, etc). Or l'incertitude que l'on a entre la « réalité » et le « modèle » sur chacun de ces paramètres et profils va résulter en une erreur sur l'inversion. Cette erreur est d'autant plus grande que l'incertitude entre « réalité » et « modèle » est grande, et que la sensibilité des radiances, aux paramètres et profils,  $K_b$ , est grande.

Ainsi, pour éviter d'avoir une erreur sur l'inversion trop importante à cause de ces paramètres sensibles, une solution consiste à les inverser en même temps que le profil d'ozone en les incluant dans le vecteur d'état. Dans ce travail de thèse, pour éviter d'avoir à inverser un vecteur d'état très grand, et ainsi gagner sur le temps de calcul, nous avons inclus dans le vecteur d'état uniquement les paramètres les plus sensibles. Pour les autres paramètres, nous avons considéré avoir une connaissance parfaite de ces derniers, c'est à dire que l'incertitude entre « réalité » et « modèle » est nulle, ainsi il n'influera pas sur les résultats de l'inversion de données.

Une étude de sensibilité a ainsi été conduite dans le but de déterminer à quels paramètres notre inversion était sensible. Pour cela nous avons comparé, pour chaque paramètre, la différence absolue entre les radiances calculées avec la valeur moyenne du paramètre  $b_m$  et les radiances calculées avec une valeur perturbée du paramètre  $b_p = b_m \pm \Delta b$ , où  $\Delta b$  représente l'incertitude estimée sur la connaissance du paramètre  $b$ . Si l'écart des radiances ainsi calculées est bien moindre que le bruit propre à l'instrument  $\epsilon$ , alors le paramètre est jugé comme peu sensible et n'est pas pris en compte dans l'inversion, par contre si l'écart des radiances est supérieur au bruit propre à l'instrument alors l'inversion est jugée sensible à ce paramètre et ce dernier est inclus dans le vecteur d'état.

Nous avons ainsi évalué la sensibilité à tous les paramètres de notre atmosphère simulée, à savoir : les profils des espèces chimiques  $H_2O$ ,  $O_3$ ,  $CO_2$ ,  $N_2O$ ,  $CH_4$ ,  $NO_2$ , le profil de température, et l'albédo de surface.  $\Delta b$  a été pris pour les profils d'espèces chimiques à 10 %, sauf pour le profil de  $CO_2$  estimé connu à 1 % près. Pour le profil de température,

$\Delta b$  est égale à 1 °K. Pour l'albédo,  $\Delta b$  est de 10 %. Le résultat de l'étude de sensibilité a révélé que l'inversion était principalement sensible au profil de vapeur d'eau ( $H_2O$ ), au profil de température et à l'albédo de surface. La figure 2.10 présente ainsi la sensibilité des radiances à ces paramètres, et la compare à la sensibilité de l'instrument de mesure déterminée par son SNR.

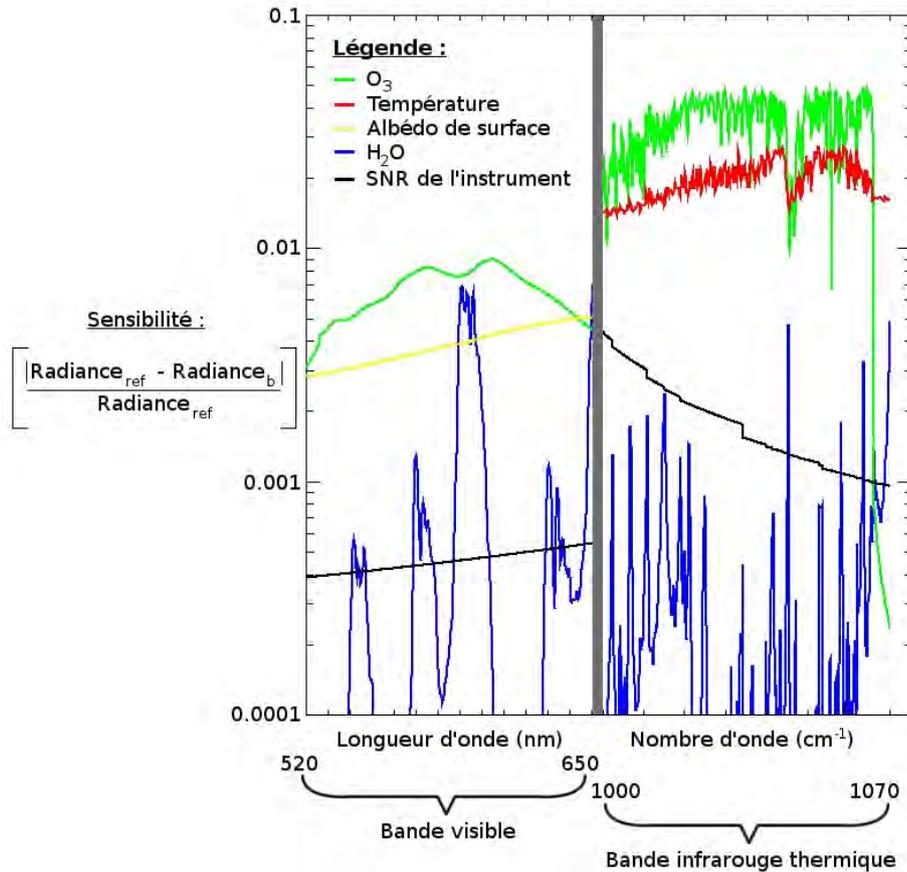


FIGURE 2.10 – Représentation de la sensibilité des radiances à une variation des paramètres de l'inversion, comparé à la sensibilité de l'instrument de mesure déterminée par son SNR. En vert est représentée la sensibilité obtenue pour un écart de 10 % du profil d'ozone. En bleu est représentée la sensibilité obtenue pour un écart de 10 % du profil de vapeur d'eau. En jaune est représentée la sensibilité obtenue pour un écart de 10 % de l'albédo de surface. En rouge est représentée la sensibilité obtenue pour un écart de 1 °K du profil de température. En noir est représentée la limite de sensibilité de l'instrument de mesure, donnée par son SNR. La sensibilité désigne ici la différence absolue, obtenue entre des radiances de référence ( $Radianc_{ref}$ ) et des radiances obtenues après perturbation d'un paramètre ( $Radianc_b$ ), normalisé par la valeur des radiances de référence.

Au final, le vecteur d'état de l'inversion de données contient le profil d'ozone, le profil

de vapeur d'eau, le profil de température et l'albédo, qui va nous permettre ainsi de réaliser l'inversion simultanée de ces 4 paramètres. À ce vecteur d'état,  $x$ , on construit la matrice jacobienne,  $K$ , associée, à partir des jacobiens de chaque paramètre calculés par les RTMs (cf. section 2.3.5) :

$$x = \begin{pmatrix} x_{O3,0} \\ \vdots \\ x_{O3,N} \\ x_{H2O,0} \\ \vdots \\ x_{H2O,N} \\ x_{Temp,0} \\ \vdots \\ x_{Temp,N} \\ x_{Alb,0} \\ \vdots \\ x_{Alb,3} \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad K = \begin{pmatrix} \frac{\partial R_{VIS,0}}{\partial x_{O3,0}} & \dots & \frac{\partial R_{VIS,n}}{\partial x_{O3,0}} & \frac{\partial R_{TIR,0}}{\partial x_{O3,0}} & \dots & \frac{\partial R_{TIR,m}}{\partial x_{O3,0}} \\ \vdots & \ddots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \frac{\partial R_{VIS,0}}{\partial x_{O3,N}} & \dots & \frac{\partial R_{VIS,n}}{\partial x_{O3,N}} & \frac{\partial R_{TIR,0}}{\partial x_{O3,N}} & \dots & \frac{\partial R_{TIR,m}}{\partial x_{O3,N}} \\ \frac{\partial R_{VIS,0}}{\partial x_{H2O,0}} & \dots & \frac{\partial R_{VIS,n}}{\partial x_{H2O,0}} & \frac{\partial R_{TIR,0}}{\partial x_{H2O,0}} & \dots & \frac{\partial R_{TIR,m}}{\partial x_{H2O,0}} \\ \vdots & \ddots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \frac{\partial R_{VIS,0}}{\partial x_{H2O,N}} & \dots & \frac{\partial R_{VIS,n}}{\partial x_{H2O,N}} & \frac{\partial R_{TIR,0}}{\partial x_{H2O,N}} & \dots & \frac{\partial R_{TIR,m}}{\partial x_{H2O,N}} \\ \frac{\partial R_{VIS,0}}{\partial x_{Temp,0}} & \dots & \frac{\partial R_{VIS,n}}{\partial x_{Temp,0}} & \frac{\partial R_{TIR,0}}{\partial x_{Temp,0}} & \dots & \frac{\partial R_{TIR,m}}{\partial x_{Temp,0}} \\ \vdots & \ddots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \frac{\partial R_{VIS,0}}{\partial x_{Temp,N}} & \dots & \frac{\partial R_{VIS,n}}{\partial x_{Temp,N}} & \frac{\partial R_{TIR,0}}{\partial x_{Temp,N}} & \dots & \frac{\partial R_{TIR,m}}{\partial x_{Temp,N}} \\ \frac{\partial R_{VIS,0}}{\partial x_{Alb,0}} & \dots & \frac{\partial R_{VIS,n}}{\partial x_{Alb,0}} & \frac{\partial R_{TIR,0}}{\partial x_{Alb,0}} & \dots & \frac{\partial R_{TIR,m}}{\partial x_{Alb,0}} \\ \vdots & \ddots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \frac{\partial R_{VIS,0}}{\partial x_{Alb,3}} & \dots & \frac{\partial R_{VIS,n}}{\partial x_{Alb,3}} & \frac{\partial R_{TIR,0}}{\partial x_{Alb,3}} & \dots & \frac{\partial R_{TIR,m}}{\partial x_{Alb,3}} \end{pmatrix}$$

avec  $N$  le nombre de niveau des profils,  $x_{O3}$  le profil d'ozone,  $x_{H2O}$  le profil de vapeur d'eau,  $x_{Temp}$  le profil de température,  $x_{Alb}$  les coefficients du polynôme d'ordre 3 modélisant l'albédo.  $R_{VIS}$  représente les radiances dans la bande visible, composée de  $n$  valeurs.  $R_{TIR}$  représente les radiances dans la bande infrarouge thermique, composée de  $m$  valeurs.

Enfin, pour réaliser l'inversion de données, il nous faut connaître un a priori sur le vecteur d'état. C'est à dire la connaissance minimale que l'on a sur les paramètres qui composent le vecteur d'état. L'a priori a donc été choisi de la manière suivante :

- Pour le profil d'ozone, comme nous l'avons vu section 2.2.3, l'a priori considéré est le profil d'ozone moyen donné par MOCAGE sur la période estivale de 2008.
- Pour le profil de vapeur d'eau, nous avons supposé que la connaissance actuelle, grâce aux instruments de mesures existants, nous permettait de prendre un a priori égal à la réalité plus ou moins une erreur aléatoire suivant une loi gaussienne d'écart-type  $\sigma_{H2O} = 10 \%$  de la valeur réelle.
- De la même manière que pour le profil de vapeur d'eau, pour le profil de température, on prend un a priori égal à la réalité plus ou moins une erreur aléatoire suivant une loi gaussienne d'écart-type  $\sigma_T = 1 \text{ °K}$ .
- Et enfin, de la même manière, pour les coefficients du polynôme de l'albédo de surface, on prend un a priori égal à la réalité plus ou moins une erreur aléatoire suivant une loi gaussienne d'écart-type  $\sigma_{alb} = 10 \%$  de la valeur réelle.

### 2.5.4 La chaîne d'inversion de données

Au final, nous avons développé durant ce travail de thèse une chaîne de modélisation et d'inversion de données (cf. Fig. 2.11). Le rôle de cette chaîne est tout d'abord à l'aide de MOCAGE, de calculer un état atmosphérique nous servant de « réalité ». L'état réel est alors envoyé dans les codes de transfert radiatif, puis dans le modèle instrumental, afin d'obtenir la mesure de l'instrument géostationnaire, ou encore ce que l'on appelle les radiances « mesurées ». C'est alors que l'on réalise l'inversion de ces mesures. La méthode d'inversion démarre à l'itération 0 avec  $x_0 = x_a$ , l'a priori, et s'itère. Pour chaque itération il faut calculer  $F(x_i)$  et  $K_i$ , pour cela on passe l'état  $x_i$  aux codes de transfert radiatif et au modèle instrumental, on obtient alors ce que l'on appelle les radiances « calculées » (et les jacobiens associés). Le fait de passer par la même chaîne de modélisation pour créer les radiances « mesurées » et les radiances « calculées », indique que l'on suppose avoir une connaissance parfaite des processus impactant le rayonnement dans l'atmosphère et de l'instrument de mesure.

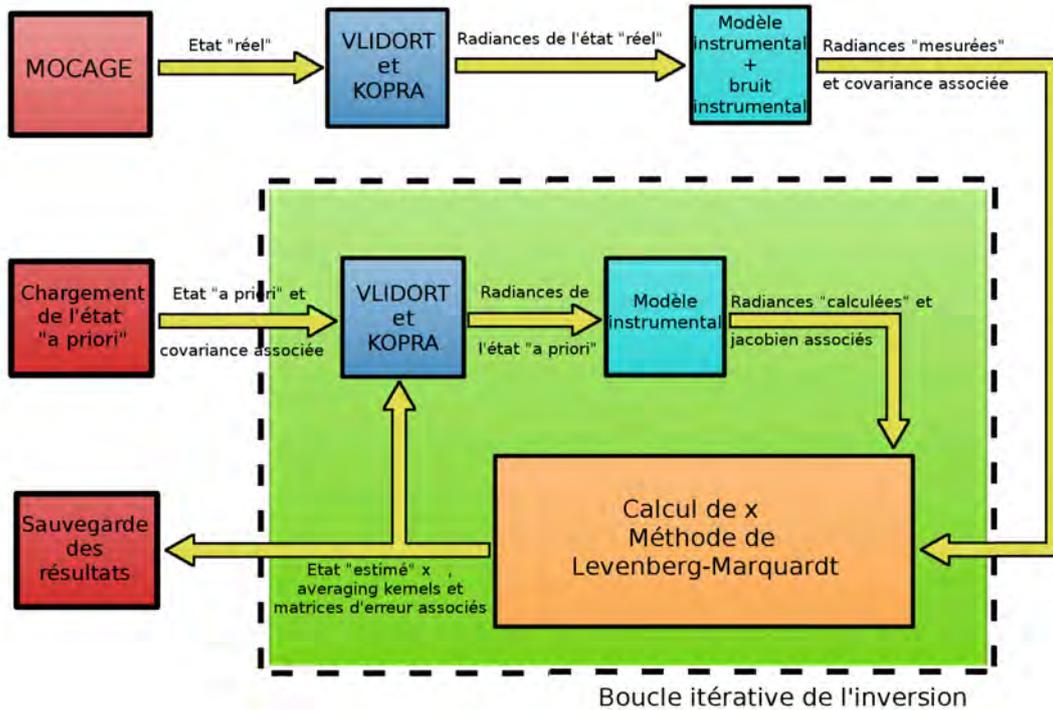


FIGURE 2.11 – Schéma bloc représentant le fonctionnement de la chaîne de modélisation et d'inversion de données réalisée durant ce travail de thèse.

Chaque image simulée acquise par le satellite géostationnaire contient environ 200 000 pixels, tous devant être inversés. Cependant la chaîne d'inversion, en faisant appel pour chaque itération à deux codes de transfert radiatif, est coûteuse en temps de calcul. En effet, l'inversion d'un pixel de l'image, avec notre chaîne d'inversion, sur un ordinateur

standard, prend environ 20 min. Heureusement, dans notre cas, l'inversion de données est indépendante pour chaque pixel, ce qui nous a permis de paralléliser l'inversion de données de l'image simulée facilement sur des supercalculateurs, en répartissant le calcul de chaque pixels sur les différents « cœurs de calcul » (processeurs) des supercalculateurs. Durant ce travail de thèse, nous avons utilisé 4 supercalculateurs différents : FUXI (un des clusters du laboratoire d'Aérodynamique), Curie (un des supercalculateurs du Très Grand Centre de Calcul -TGCC- du Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives -CEA-), Turing (un des supercalculateurs appartenant au Grand Équipement National de Calcul Intensif -GENCI- de l'Institut du Développement et des Ressources en Informatique Scientifique -IDRIS-), et enfin BEAUFIX (le nouveau supercalculateur de Météo-France).

Cependant, malgré les moyens informatiques dont on disposait, nous avons dû dégrader la résolution spatiale de l'image du satellite géostationnaire et son champ de vue, en gardant la grille MOCAGE (cf. section 2.6) qui contient environ 8000 pixels, ou encore en travaillant sur une image réduite contenant environ 2000 pixels (cf. chapitre 3 et chapitre 4), afin de garder un temps de calcul raisonnable.

## 2.6 Étude de l'impact de la polarisation sur les résultats de l'inversion de données

Nous avons vu dans la section 2.4 que le concept instrumental MAGEAQ contenait un scrambler afin d'enlever la polarisation du rayonnement. En effet, le rayonnement, en particulier le visible, en sortie de l'atmosphère est partiellement polarisé du fait des diffusions qu'il a subi lors de son parcours et de sa réflexion sur la surface terrestre. De plus, il est couramment admis que la composante circulaire,  $V$ , du rayonnement sortant de l'atmosphère est nulle. Le rayonnement en entrée de l'instrument à bord du satellite est donc partiellement polarisé rectilignement, et il va interagir avec les différents éléments optiques de l'instrument lors de la traversée de ce dernier, avant d'être mesuré par le capteur. Or, les éléments optiques sont sensibles à la polarisation lumineuse et conduisent ainsi à une variation d'intensité lumineuse mesurée. L'ajout d'un scrambler en entrée de l'instrument permet de s'affranchir de ces perturbations des mesures, en filtrant la polarisation. Cependant, un scrambler n'est pas parfait et laisse passer une partie du rayonnement polarisé, plus ou moins grande en fonction de la qualité du scrambler. Le coût du scrambler étant proportionnel à la qualité de ce dernier, il peut souvent représenter une fraction non-négligeable du coût total de l'instrument si l'on souhaite filtrer drastiquement la polarisation.

Nous avons ainsi réalisé une étude sur l'impact de la polarisation, dans la bande visible, sur notre instrument simulé, pour déterminer quelle qualité l'instrument devait atteindre, vis à vis de la polarisation, pour que les mesures avec la bande visible permettent d'ajouter une information non négligeable à la mesure de l'ozone pour la qualité de l'air (c'est à dire pour la couche entre 0 et 1 km d'altitude).

Airbus Defence and Space nous a fourni le modèle nous donnant les radiances polarisées mesurées par l'instrument ( $I_p$ ) en fonction des vecteurs de Stokes  $I$ ,  $Q$  et  $U$  (la composante circulaire  $V = 0$ ) et du taux de polarisation lié à l'instrument  $p$  :

$$I_p(\lambda) = I(\lambda) - (\sqrt{Q(\lambda)^2 + U(\lambda)^2} \times \frac{p}{1+p}) + (Q(\lambda) \times \frac{p}{1+p}) \quad (2.15)$$

où  $\lambda$  représente la longueur d'onde, entre 520 et 650 nm.

Les vecteurs de Stokes nous sont donnés par VLIDORT, pour chaque pixel de l'image, sur la grille MOCAGE (8000 pixels), à inverser. Cependant, nous rappelons que la modélisation ne prend pas en compte ni les aérosols, ni les nuages, et que la surface est considérée comme lambertienne. Ainsi la polarisation en sortie de l'atmosphère ne dépendra que de l'angle d'observation de la cible et du soleil, de la réflexion lambertienne à la surface, et de la diffusion Rayleigh dans l'atmosphère.

Pour l'inversion de données nous considérons que le modèle, calculant les radiances polarisées mesurées par l'instrument, est parfaitement connu, et que le taux de polarisation liée à l'instrument,  $p$ , est également connu. Seul demeure une incertitude sur la polarisation rectiligne en sortie de l'atmosphère, c'est à dire une incertitude sur les vecteurs de Stokes

$Q$  et  $U$ . Ces deux vecteurs de Stokes, dans la bande visible de notre étude entre 520 et 650 nm, sont modélisés par des polynômes d'ordre 2 (cf. Fig. 2.12). Les coefficients de ces polynômes, sur les vecteurs de Stokes  $Q$  et  $U$ , sont inversés simultanément avec le profil d'ozone, le profil de vapeur d'eau, le profil de température et les coefficients du polynôme de l'albédo de surface, lors de l'inversion de données (cf. section 2.5). L'a priori et la matrice de covariance d'erreur de l'a priori, pour les coefficients du polynôme sur  $Q$  (et respectivement  $U$ ), sont choisis en prenant comme a priori le polynôme moyen sur l'image inversée, et la matrice de covariance d'erreur associée.

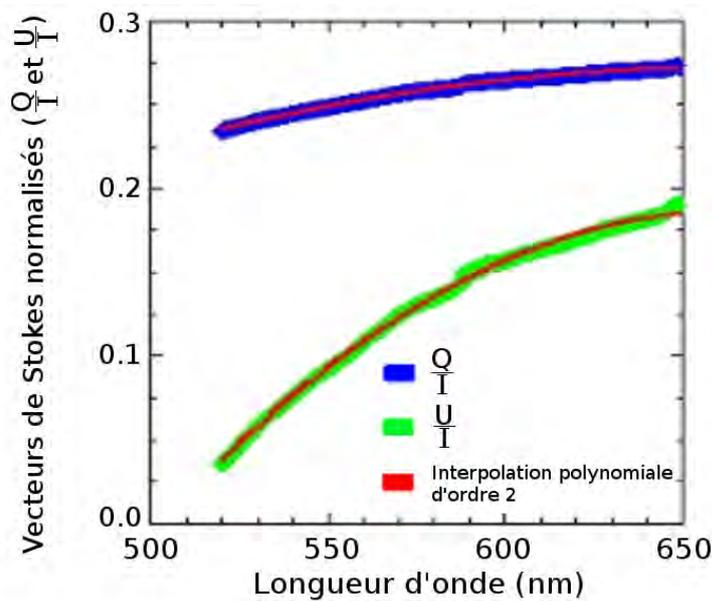


FIGURE 2.12 – Représentation d'un exemple des vecteurs de Stokes normalisés ( $\frac{Q}{I}$  et  $\frac{U}{I}$ ), en fonction de la longueur d'onde, obtenus avec le RTM VLIDORT. En rouge sont tracées les interpolations polynomiales d'ordre 2 correspondantes.

Nous avons alors considéré 5 cas d'études différents :

- Le premier cas considère uniquement la bande TIR de l'instrument simulé, et ne prend donc pas en compte la bande visible et la polarisation. Ce cas nous sert ainsi de référence pour évaluer par la suite l'apport de la bande visible en fonction du taux de polarisation instrumental considéré.
- Le second cas utilise les bandes TIR et VIS de l'instrument, et considère un taux de polarisation instrumental  $p = 5\%$ , ce qui correspond à un instrument « standard », d'après Airbus Defence and Space.
- Le troisième cas utilise les bandes TIR et VIS de l'instrument, et considère un taux de polarisation instrumental  $p = 1\%$ , ce qui correspond à un instrument pour lequel un revêtement de surface spécifique a été appliqué sur les optiques.

- Le quatrième cas utilise les bandes TIR et VIS de l'instrument, et considère un taux de polarisation instrumental  $p = 0,3 \%$ , ce qui correspond à un instrument « standard », et en considérant l'ajout d'un scrambler.
- Enfin, le cinquième cas utilise les bandes TIR et VIS de l'instrument, et considère un taux de polarisation instrumental  $p = 0,1 \%$ , ce qui correspond à un instrument pour lequel un revêtement de surface spécifique a été appliqué sur les optiques, et en considérant l'ajout d'un scrambler.

Pour ces différents cas d'études, nous avons réalisé l'inversion d'une image « MOCAGE », prise arbitrairement pour la journée du 7 Juillet 2009 à 15h. Nous avons alors étudié, pour chaque pixel, les résultats de l'inversion de l'ozone dans la couche entre 0 et 1 km d'altitude. En particulier nous avons tracé pour chaque image la corrélation, et l'écart-type, entre l'ozone inversé (c'est à dire l'ozone mesuré par l'instrument) et l'ozone vrai (c'est à dire l'ozone tel que simulé par le modèle MOCAGE, nous servant de réalité). Les résultats pour chaque cas d'étude sont donnés dans le tableau 2.3

TABLE 2.3 – Corrélation et écart-type obtenus, entre l'ozone inversé et l'ozone vrai, dans la couche entre 0 et 1 km d'altitude, pour les différents cas d'études sur l'impact du taux de polarisation instrumental. Plus de détails sur les différents cas d'études sont disponibles dans le texte.

|             | Cas d'étude 1 | Cas d'étude 2 | Cas d'étude 3 | Cas d'étude 4 | Cas d'étude 5 |
|-------------|---------------|---------------|---------------|---------------|---------------|
| $p$         | /             | 5 %           | 1 %           | 0,3 %         | 0,1 %         |
| Corrélation | 0,65          | 0,72          | 0,77          | 0,77          | 0,77          |
| Ecart-type  | 10,03         | 10,67         | 9,88          | 9,57          | 9,51          |

Ces résultats nous montrent tout d'abord que quelque soit le niveau du taux de polarisation de l'instrument (entre 5 % et 0,1 %), l'ajout de la bande VIS, par rapport à la bande TIR seule (cas d'étude 1), permet d'améliorer la corrélation. De plus, à part pour un taux de polarisation instrumental de 5 % (cas d'étude 2), l'écart-type est également amélioré. Enfin, le gain en corrélation et en écart-type, entre le cas d'étude 3 et le cas d'étude 4, est relativement faible, et est presque inexistant entre le cas d'étude 4 et le cas d'étude 5. Ainsi, on peut en déduire que l'utilisation de l'instrument dans le cas d'étude 3, c'est à dire d'un instrument pour lequel un revêtement de surface spécifique a été appliqué sur les optiques, est suffisant pour apporter l'essentiel de la contribution de la bande VIS lors de l'inversion. Il n'est donc pas forcément nécessaire d'utiliser un scrambler.

Cependant ces résultats doivent être pris avec précaution, car ils ne sont valides que dans le cadre des hypothèses qui ont été faites pour la simulation des mesures instrumentales et l'inversion de données. En effet, du fait des hypothèses prises dans la modélisation des vecteurs de Stokes en sortie de l'atmosphère (on ne prend pas en compte les aérosols, ni les nuages, et les surfaces sont supposées lambertiennes), cela conduit à sous-estimer la polarisation du rayonnement en sortie de l'atmosphère. De plus, lors de l'inversion de données, on

considère avoir une connaissance parfaite du taux de polarisation instrumental et du modèle calculant les radiances polarisées mesurées par l'instrument. On ne considère qu'une incertitude sur les vecteurs de Stokes  $Q$  et  $U$ . Il faudrait donc améliorer la modélisation pour pouvoir mieux prendre en compte l'impact réel de la polarisation sur l'instrument.

Dans la suite de ce travail de thèse, nous nous placerons dans un cas où l'on suppose avoir un scrambler parfait (c'est à dire qui annule complètement la polarisation) qui nous permet ainsi de nous affranchir des perturbations liées à la polarisation.

## 2.7 Conclusions du chapitre

En conclusion, nous avons pu voir à travers ce chapitre le détail de la chaîne de modélisation réalisée pour simuler les observations synthétiques d'un instrument, à bord d'un satellite géostationnaire, couplant une bande dans le visible et dans l'infrarouge thermique, dans le but de mesurer l'ozone, pour la qualité de l'air.

Nous avons ainsi tout d'abord vu le rôle du modèle de chimie transport MOCAGE qui nous a permis de créer une atmosphère « vraie » la plus proche possible de la réalité. En notant au passage les deux premières hypothèses faites durant ce travail de thèse : on ne prend pas en compte ni les nuages, ni les aérosols.

Dans un deuxième temps, nous nous sommes intéressés aux modèles de transfert radiatif, KOPRA et VLIDORT, qui nous ont permis de calculer à partir de l'atmosphère « vraie » les radiances, dans l'infrarouge thermique et le visible, qui arrivent jusqu'à l'instrument à bord du satellite géostationnaire. À nouveau des hypothèses ont été réalisées, en particulier pour la bande visible, les surfaces sont considérées comme lambertiennes et ne sont représentées que par un albédo spectral modélisé par un polynôme d'ordre 3. Ce polynôme ne permet ainsi pas de prendre en compte les signatures spectrales liées par exemple à la végétation.

Dans un troisième temps, nous avons décrit le modèle instrumental utilisé, qui nous permet de passer des radiances en sortie de l'atmosphère aux radiances mesurées par l'instrument. Le modèle instrumental ne dépend que de la bande spectrale, de la résolution spectrale, et du rapport signal sur bruit de l'instrument. Nous avons également vu que l'on ajoutait à l'instrument un scrambler qui nous permettait ainsi de réduire les effets de la polarisation. L'impact de la polarisation a fait d'ailleurs l'objet d'une étude à la fin du chapitre.

Enfin, nous avons détaillé l'algorithme d'inversion de données utilisé, et comment nous avons créé le vecteur d'état et l'a priori pour l'inversion de données. Nous avons ainsi vu que sont considérés, dans l'inversion de données, l'inversion simultanée des profils d'ozone, de vapeur d'eau et de température, ainsi que les coefficients du polynôme de l'albédo spectral. En effet, ces paramètres sont les plus sensibles dans les deux bandes considérées (TIR et VIS). Tous les autres paramètres sont supposés (suffisamment bien) connus, et sont pris égaux à leurs valeurs « vraies » pour qu'ils n'interfèrent pas dans l'inversion de données. De plus, dans le processus de l'inversion de données, la chaîne de modélisation permettant d'obtenir les radiances « mesurées » est la même que celle permettant d'obtenir les radiances « calculées », on considère ainsi que l'on a une connaissance parfaite des processus impactant le rayonnement dans l'atmosphère et de l'instrument de mesure. Enfin, nous avons également vu que l'inversion de données est coûteuse en temps de calcul et que pour réduire la consommation d'heures de calcul nous avons dû nous restreindre dans l'inversion d'images, prises par notre instrument simulé, avec un champ de vue et une résolution spatiale réduits.

Pour terminer ce chapitre, nous avons présenté les résultats d'une étude sur l'impact de

la polarisation, dans la bande visible, sur l'inversion de données d'ozone entre 0 et 1 km. Nous avons ainsi vu que l'information apportée par le VIS, pour la mesure de l'ozone entre 0 et 1 km, est loin d'être négligeable, comparé au TIR seule, car le VIS permet de gagner jusqu'à 0,12 en corrélation et de diminuer l'écart-type de 0,5 ppbv (soit environ 5 %). Cependant le VIS est sensible à la polarisation, et peut ainsi donner de moins bons résultats si l'inversion est perturbée par la polarisation. Ainsi, dans notre étude, nous avons montré qu'en prenant un instrument avec un taux de polarisation de 1 %, ce qui correspond à un instrument pour lequel un revêtement de surface spécifique a été appliqué sur les optiques, on était capable d'extraire l'essentiel de l'information apportée par la bande visible.

Ce simulateur d'observations synthétiques aura été également utilisé pour réaliser deux autres études, présentées respectivement dans le chapitre 3 et 4.





# Chapitre 3

## Intercomparaison entre GEO TIR et GEO TIR+VIS

### Sommaire

---

|            |   |            |
|------------|---|------------|
| <b>3.1</b> | <b>Résumé long de l'article 1 . . . . .</b>   | <b>112</b> |
| <b>3.2</b> | <b>Article 1 - The added value of a visible channel to a geostationary thermal infrared instrument to monitor ozone for air quality . . . . .</b> | <b>115</b> |
| 3.2.1      | Introduction . . . . .  | 115        |
| 3.2.2      | Simulated observations and reference state . . . . .  | 118        |
| 3.2.3      | Results : intercomparison between GEO TIR and GEO TIR+VIS   | 125        |
| 3.2.4      | Conclusions . . . . .   | 137        |
| <b>3.3</b> | <b>Conclusions du chapitre . . . . .</b>  | <b>139</b> |

---

Ce chapitre s'appuie sur l'article de Hache et al. (2014), publié en Juillet 2014 dans la revue *Atmospheric Measurement Techniques* (AMT). La section 3.1 de ce chapitre est un résumé long en français de l'article, ensuite dans la section 3.2 est donné le texte intégral en anglais de l'article. Enfin la section 3.3 présente les conclusions et perspectives de cette étude.

### 3.1 Résumé long de l'article 1

La qualité de l'air (QA) concerne la composition chimique de l'atmosphère proche de la surface de la Terre. Elle a une forte variabilité spatiale et temporelle (McNair et al., 1996) contrainte par les processus dynamiques de l'atmosphère, comme le transport local ou à grande échelle et les émissions locales provenant de sources biogéniques ou anthropogéniques (cf. section 1.2.2). Les principaux polluants dans la basse troposphère sont l'ozone, les aérosols (ou encore particules fines), et les précurseurs de l'ozone comme les oxydes d'azote ( $\text{NO}_x$ ), les composés organiques volatiles (COVs), et le monoxyde de carbone (cf. section 1.3). L'ozone troposphérique suit un cycle diurne à cause de sa formation par réactions photochimiques entre  $\text{NO}_x$  et COVs, et a une très forte capacité d'oxydation notamment en réagissant avec le radical OH (Holloway and Wayne, 2010; Brasseur et al., 2003).

La présence de polluants dans la basse troposphère est délétère pour la santé humaine (Brunekreef and Holgate, 2002; Dominici et al., 2010) et pour l'environnement. Les pertes économiques dues à une mauvaise qualité de l'air sont considérables. Pour remédier à cela les gouvernements ont mis en place des lois et programmes de surveillance de la QA, notamment le « Clean Air Act » aux États-Unis depuis 1970, et la loi « Laure » en France depuis 1996. En Europe, la directive 2008/50/CE impose la mesure des principaux polluants pour chaque pays afin de surveiller l'évolution de la QA (cf. section 1.4).

Actuellement les systèmes de prévisions pour la QA utilisent majoritairement les données provenant de stations sol, par exemple PREV'AIR : Rouïl et al. (2008) et MACC : Hollingsworth et al. (2008). Or les mesures des stations sol, bien que donnant accès aux contributions locales, sont inhomogènes et manquent de couverture spatiale ainsi que de représentativité verticale. Les satellites, grâce à leur très bonne couverture spatiale, semblent être une solution efficace pour ces mesures (Fishman et al., 2008; Martin, 2008). Cependant, pour mesurer l'évolution spatio-temporelle de la QA, il est nécessaire d'avoir des instruments dont la résolution spatiale est inférieure à 10 km, et la résolution temporelle inférieure à 1 heure (Lahoz et al., 2012). Ainsi, un satellite défilant en orbite basse (LEO), en passant au-dessus de la même zone environ 2 fois par jour ne permettra pas d'atteindre la résolution temporelle voulue, alors que l'orbite géostationnaire (GEO) en survolant en continu la même zone et en couvrant environ un quart du globe semble être le compromis idéal. Le système d'observations global (en anglais, Global Observing System -GOS-) s'enrichira bientôt de mesures provenant de géostationnaires comme : Sentinel 4 UVN (Bazalgette Courrèges-Lacoste et al., 2007) et MTG IRS (Munro, 2011) pour l'Europe; TEMPO (Chance et al., 2013) et GEO-CAPE pour les États-Unis, et GEO-KOMPSAT (Lee et al., 2010) pour l'Asie.

D'ores et déjà des travaux ont été publiés démontrant les capacités de l'orbite géostationnaire pour la mesure de la composition chimique de l'atmosphère et de la QA (Burrows et al., 2004; Orphal et al., 2005a; Lahoz et al., 2005). De plus, il a été démontré la nécessité d'avoir recours à une approche multispectrale pour mesurer les espèces chimiques pour la QA (Lahoz et al., 2012, 2005) dans le but d'extraire un maximum d'information sur les gaz proches de la surface.

Ce chapitre porte sur l'étude du concept MAGEAQ (Peuch et al., 2010), un satellite géostationnaire couplant une bande dans l'infrarouge thermique et le visible dédié à la mesure des espèces chimiques pour la QA. Cette étude s'appuie sur les travaux de Claeysman et al. (2011b) qui a démontré la valeur ajoutée de la bande infrarouge thermique (TIR) de MAGEAQ pour la mesure de l'ozone troposphérique. Également de précédent travaux ont considéré la bande ultraviolet/visible (UV/VIS) pour la mesure de l'ozone (Liu et al., 2005), ou encore des combinaisons des bandes UV, VIS et TIR (Landgraf and Hasekamp, 2007; Worden et al., 2007a; Natraj et al., 2011; Cuesta et al., 2013; Fu et al., 2013).

Ce chapitre se focalise sur l'étude de la valeur ajoutée par la bande VIS de MAGEAQ par rapport à sa bande TIR, pour la mesure de l'ozone dans la couche limite atmosphérique (entre 0 et 1 km d'altitude). Une chaîne de modélisation permet, en partant d'un état de référence donné par le modèle de chimie transport MOCAGE, de créer des observations simulées de MAGEAQ pour la bande TIR seule (GEO TIR) et pour les deux bandes à la fois (GEO TIR+VIS). L'étude porte alors sur l'intercomparaison des résultats obtenus avec GEO TIR et GEO TIR+VIS par rapport à l'état de référence. 7 jours de données horaires ont été simulés pour l'été 2009 en Europe, considéré comme un été standard c'est à dire sans pollution majeure à l'ozone.

La première partie de l'étude se concentre sur l'étude des fonctions de balayage de GEO TIR et GEO TIR+VIS, et montre que GEO TIR est sensible dans la basse troposphère en moyenne vers 3 km d'altitude, alors que GEO TIR+VIS va avoir un pic de sensibilité au sol. Également est étudiée la variation de la sensibilité dans le temps, et en fonction de la surface maritime ou continentale. En effet, GEO TIR est très sensible au gradient thermique de surface et donnera ainsi de meilleurs résultats (Pic de sensibilité entre 500 m et 2 km d'altitude) dans l'après-midi lors d'un maximum de contraste thermique au-dessus d'une surface continentale, alors qu'il aura tendance à avoir un pic de sensibilité entre 3 et 5 km d'altitude au-dessus des surfaces maritimes et lors de période de faible contraste thermique (par exemple la nuit). GEO TIR+VIS permet grâce à l'ajout du VIS d'avoir un pic de sensibilité au sol tout au long de la journée et principalement au-dessus des surfaces continentales à fort albédo. Bien entendu, la nuit GEO TIR+VIS redonne la même sensibilité que GEO TIR.

La deuxième partie de l'étude se concentre sur la colonne 0–1 km et présente la variation temporelle du nombre de degré de liberté (en anglais, Degrees of Freedom for Signal -DFS-), de la corrélation et de l'écart-type, entre les mesures faites par GEO TIR et l'état de référence, et entre les mesures faites par GEO TIR+VIS et l'état de référence. Les résultats

de ces différents tests statistiques révèlent que l'ajout du VIS améliore significativement les observations simulées d'ozone dans la couche limite atmosphérique, qui sont plus proches de l'état de référence comparées aux résultats avec le TIR seul.

Enfin la troisième partie de l'étude se concentre sur la capacité de GEO TIR et GEO TIR+VIS à détecter des événements de pollutions à l'ozone. En effet, l'Europe a défini un seuil d'information lorsque la concentration d'ozone dépasse  $120 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  pendant 8 heures consécutives, on regarde donc dans les observations simulées de GEO TIR et GEO TIR+VIS si ces dernières sont bien au-dessus du seuil lorsqu'il y a effectivement un événement de pollution à l'ozone. Les résultats montrent que GEO TIR détecte 50 % des pics d'ozone alors que GEO TIR+VIS permet d'en détecter 75 %. Ces résultats démontrent l'importance de la bande VIS pour la mesure de l'ozone pour la QA et sa complémentarité avec la bande TIR, ils témoignent également des possibilités que peuvent offrir des sondeurs dédiés à la QA comme MAGEAQ.

## 3.2 Article 1 - The added value of a visible channel to a geostationary thermal infrared instrument to monitor ozone for air quality

E. Hache<sup>1,2</sup>, J-L. Attié<sup>1,2</sup>, C. Tourneur<sup>3</sup>, P. Ricaud<sup>1</sup>, L. Coret<sup>3</sup>, W. A. Lahoz<sup>4</sup>, L. El Amraoui<sup>1</sup>, B. Josse<sup>1</sup>, P. Hamer<sup>1</sup>, J. Warner<sup>5</sup>, X. Liu<sup>6</sup>, K. Chance<sup>6</sup>, M. Höpfner<sup>7</sup>, R. Spurr<sup>8</sup>, V. Natraj<sup>9</sup>, S. Kulawik<sup>9</sup>, A. Eldering<sup>9</sup>, J. Orphal<sup>7</sup>

<sup>1</sup>GAME/CNRM, Météo-France, UMR3589, CNRS, Toulouse, France

<sup>2</sup>Université de Toulouse, CNRS, Laboratoire d'Aérodynamique, Toulouse, France

<sup>3</sup>EADS Astrium, Toulouse, France

<sup>4</sup>NILU – Norwegian Institute for Air Research, 2027, Kjeller, Norway

<sup>5</sup>The University of Maryland, College Park, MD 20742, USA

<sup>6</sup>Harvard-Smithsonian Center for Astrophysics, Cambridge, MA 02138, USA

<sup>7</sup>Karlsruhe Institute of Technology, IMK, Karlsruhe, Germany

<sup>8</sup>RT Solutions, Inc. 9 Channing Street, Cambridge, MA 02138, USA

<sup>9</sup>Jet Propulsion Laboratory (NASA-JPL), 4800 Oak Grove Drive, Pasadena, CA 91109, USA

### Abstract

*Ozone is a tropospheric pollutant and plays a key role in determining the air quality that affects human wellbeing. In this study, we compare the capability of two hypothetical grating spectrometers onboard a geostationary (GEO) satellite to sense ozone in the lowermost troposphere (surface and the 0–1 km column). We consider one week during the Northern Hemisphere summer simulated by a chemical transport model, and use the two GEO instrument configurations to measure ozone concentration (1) in the thermal infrared (GEO TIR) and (2) in the thermal infrared and the visible (GEO TIR+VIS). These configurations are compared against each other, and also against an ozone reference state and a priori ozone information. In a first approximation, we assume clear sky conditions neglecting the influence of aerosols and clouds. A number of statistical tests are used to assess the performance of the two GEO configurations. We consider land and sea pixels and whether differences between the two in the performance are significant. Results show that the GEO TIR+VIS configuration provides a better representation of the ozone field both for surface ozone and the 0–1 km ozone column during the daytime especially over land.*

### 3.2.1 Introduction

Air quality (AQ) is by definition related to the concentration of chemical pollutants in the atmosphere close to the Earth's surface. Air quality varies dynamically over space and time (McNair et al., 1996) due to different processes. These include chemistry, transport (both short and long range transport, and turbulence in the boundary layer), and local sources of pollutants, both biogenic and anthropogenic. Key lower-tropospheric pollutants

include ozone, aerosols (e.g., particulate matter, PM), and the ozone precursors like nitrogen oxides, volatile organic compounds (VOCs) and carbon monoxide. Tropospheric ozone controls the oxidation of many chemical species through reactions involving the hydroxyl radical, OH (Holloway and Wayne, 2010; Brasseur et al., 2003); and tropospheric ozone follows a diurnal cycle (minimum in the early morning and maximum in the afternoon) due to the photo-chemical reactions between the nitrogen oxides and VOCs that produce ozone during the daytime.

Air quality impacts human society : pollution at the Earth's surface causes health problems, including pulmonary and cardiovascular diseases (Brunekreef and Holgate, 2002), and recognition is growing of the combined health effects of multiple pollutants (Dominici et al., 2010). Air quality is also dependent on the interactions between human societal factors and certain episodic weather events. For example : during summer heat waves, the temperature coupled with the anthropogenic and biogenic ozone precursor emissions can produce ozone pollution over cities and megacities; during winter episodes, the extensive wood burning due to heating results in PM pollution. The annual health costs attributable to AQ in 2020 are predicted to range between 188 billion Euros and 608 billion Euros (see [http://ec.europa.eu/smart-regulation/impact/ia\\_carried\\_out/docs/ia\\_2005/sec\\_2005\\_1133\\_en.pdf](http://ec.europa.eu/smart-regulation/impact/ia_carried_out/docs/ia_2005/sec_2005_1133_en.pdf)) due to the resulting health damage (mortality and morbidity) in the EU-25 countries. This significant cost explains why governments are increasingly concerned about AQ. Legislation designed to address AQ is becoming increasingly common. Many of these new laws seek to introduce thresholds and limitations upon pollutant concentrations to protect human health (for example the European directive 2008/50/CE). This legislation relating to AQ is typically accompanied by projects designed to monitor and forecast pollutant abundances.

In order to monitor, forecast and manage AQ, observations are needed at a high spatio-temporal resolution that can capture the variability in the lowermost troposphere of either pollutants or their precursors. Such observations can be useful directly and may also improve understanding of emissions, chemical transformations, and transport from urban to intercontinental scales. Appropriate temporal and spatial resolutions for observations are (Lahoz et al., 2012) : (i) temporal sampling less than 1 h, and (ii) spatial scales less than  $\sim 10$  km. Local contributions to AQ are well sampled by surface networks. However, the surface network lacks sufficient spatial coverage and height resolved information, in particular, in the planetary boundary layer (IGACO, 2004), to fully capture the regional and continental-scale AQ picture. Spaceborne observations at sufficient spatial resolution represent a suitable means of gaining this increase in coverage (Fishman et al., 2008; Martin, 2008). Many low earth orbit (LEO) satellites measure pollutant species in the lower troposphere (see Lahoz et al., 2012, for a list of some of these satellite missions), but as indicated in Lahoz et al. (2012), the LEO geometry is less satisfactory than the geostationary (GEO) satellite geometry for monitoring AQ at the appropriate spatio-temporal resolutions (see above).

In the near future, the global observing system regarding the monitoring of AQ will be improved by a number of initiatives that are planning GEO satellite missions to monitor

chemical species. In Europe for example : the GMES (Global Monitoring of Environment and Security) Sentinel-4 UVN (Ultraviolet, Visible, Near-infrared) platform (ESA, 2007) will measure tropospheric  $O_3$ ,  $NO_2$ , HCHO,  $SO_2$ , and aerosol properties (column-averaged optical thickness and aerosol type); and the Meteosat Third Generation infrared sounder (MTG IRS) platform (Munro, 2011) will be able to measure tropospheric  $O_3$  and CO (although as a numerical weather prediction sounder, it is not optimized for these species). The Sentinel-4 UVN and MTG IRS instruments are due for launch from 2017/18 onwards. A number of projects outside Europe are also developing GEO satellites for chemical species monitoring. These include the NASA TEMPO (Tropospheric Emissions : Monitoring of Pollution) mission with proposed launch in 2018/19 (Chance et al., 2013), the NASA GEO-CAPE mission (GEOstationary Coastal and Air Pollution Events) with a proposed launch in the 2020 time frame, and the Korean GEO-KOMPSAT (Geostationary Korea Multi-Purpose Satellite) mission, with a planned launch in 2017/18 (Lee et al., 2010). These developments in Europe, the United States, and Asia focus on tropospheric aerosols and trace gases such as ozone. Synergies between European, the United States, and Asian GEO satellite platforms would be of great benefit for the quasi-global monitoring of AQ (CEOS, 2011). Synergy between GEO and LEO satellite platforms and surface observations would provide further benefits.

Previous studies have shown the potential advantages of GEOs to monitor AQ, and in particular that they provide a good compromise between spatiotemporal resolution and spatial coverage (e.g., Burrows et al., 2004; Orphal et al., 2005a; Zoogman et al., 2011). It is recognized that a multi-spectral approach is required to monitor AQ in the lowermost troposphere from a GEO (Lahoz et al., 2012; Natraj et al., 2011). To understand this requirement, a number of AQ studies have considered thermal infrared (TIR) instruments (e.g., Claeysman et al., 2011b), ultraviolet/visible (UV/VIS) instruments (e.g., Liu et al., 2005), and instrument combinations thereof (e.g., Landgraf and Hasekamp, 2007; Worden et al., 2007b; Natraj et al., 2011; Cuesta et al., 2013; Fu et al., 2013). In this paper, we build on the study of Claeysman et al. (2011b) and consider the capabilities of the proposed MAGEAQ (Monitoring the Atmosphere from Geostationary orbit for European Air Quality) GEO mission that aimed to use thermal infrared (TIR) and visible (VIS) instruments onboard the same satellite (Peuch et al., 2009) to monitor ozone in the lowermost troposphere (surface and the 0–1 km height region) for AQ purposes.

In this study, we quantify the improvement in ozone measurement capability in the lowermost troposphere when using an instrument that combines the TIR+VIS (GEO TIR+VIS) channels compared to an instrument that uses only the TIR (GEO TIR) channel. This will be done using the observing system simulation experiment (OSSE) approach (e.g., Masutani et al., 2010) in which a reference state is set up and sampled to simulate the ozone as seen by the GEO TIR and GEO TIR+VIS configurations. We then compare both sets of retrievals to the reference state. In our study, the reference state is simulated with the chemical transport model MOCAGE (MOdèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle) (see Sect. 3.2.2.1). We are interested in whether the GEO TIR+VIS ozone retrievals are closer than the GEO TIR ozone retrievals to the reference state. One difference between our approach and the standard OSSE method is that we do not perform data assimilation to

produce ozone fields to compare against the reference state; instead, we perform retrievals to produce ozone fields to be compared against the reference state.

In Sect. 3.2.2, we present the tools developed to calculate ozone retrievals using the simulated radiances of the GEO TIR and GEO TIR+VIS instruments. Section 3.2.3 discusses the comparison between the GEO TIR and GEO TIR+VIS simulated ozone retrievals against the reference state for a period of one week during an European summer. Section 3.2.4 presents conclusions and perspectives from this work.

### 3.2.2 Simulated observations and reference state

We use a chemical-transport model (CTM) to simulate the reference state for ozone. This ozone field is then used as input into a radiative transfer model (RTM) incorporating the instrument model specifications to represent radiances measured by the instrument. In a second step, an inversion model (optimal estimation) is used to transform the radiances measured by the instrument into an ozone profile. This allows us to derive simulated data of ozone which are then compared to the fields of ozone from the reference state. The various tools in this process of simulation and retrieval are described in Sects. 3.2.2.1–3.2.2.5 below.

#### 3.2.2.1 Chemical transport model

The CTM used in this study is MOCAGE (MOdèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle). MOCAGE is a three-dimensional CTM that simulates the physical and chemical processes affecting the main chemical species in the troposphere and the stratosphere (Bousserez et al., 2007). It uses a semi-Lagrangian advection scheme (Josse et al., 2004) to transport the chemical species. Turbulent diffusion is calculated with the scheme of Louis (1979) and convection is processed with the parametrization scheme of Bechtold et al. (2001). The chemical scheme used in this study is RACMOBUS, which is a combination of the stratospheric chemical scheme REPROBUS (Lefevre et al., 1994) and the tropospheric chemical scheme RACM (Stockwell et al., 1997). It includes 119 individual species with 89 prognostic variables and 372 chemical reactions. The version of MOCAGE used in our study has a vertical resolution of 47 hybrid levels from the surface up to 5 hPa, with a resolution of about 150 m in the lower troposphere increasing to 800 m in the upper troposphere. In this study, the horizontal grid uses two different nested latitude-longitude domains, the first at 2 over the globe and the second at 0.5 over Europe. MOCAGE uses the ARPEGE meteorological analyses, from Météo-France, to force the model every 3 h. The emission inventory used is that provided by TNO (Netherlands Organization for Applied Scientific Research). MOCAGE is used, and has been validated, in the Global and regional Earth-system Monitoring using Satellite and in-situ data (GEMS) project (Hollingsworth et al., 2008) and in the MACC (Monitoring atmospheric composition and climate) project (<http://www.gmes-atmosphere.eu/about/project/>).

#### 3.2.2.2 Radiative transfer models

We focus on the ozone signature present in the TIR and VIS (the Chappuis bands). TIR provides sensitivity to ozone in the middle troposphere during daytime and nighttime

whereas the VIS provides sensitivity to ozone close to the surface only during daytime (Natraj et al., 2011). We couple two different RTMs to simulate the radiances seen by a geostationary satellite grating spectrometer instrument in the TIR and VIS. Ozone in the TIR has already been measured by several LEOs with sensitivity in the mid-troposphere, e.g., the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI), see, for example Clerbaux et al. (2009), sampling the lowermost troposphere in the TIR+UV combining both IASI (TIR) and GOME-2 (UV) (Cuesta et al., 2013) or both TES (Tropospheric Emission Spectrometer) and OMI (Ozone Monitoring Instrument) (Fu et al., 2013). The advantage of measuring in the VIS is to have ozone information at the Earth’s surface for monitoring the AQ. The two RTMs are briefly described below.

The first one, KOPRA (Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm, Höpfner et al., 1998; Stiller et al., 2002), is used to simulate the TIR part of the radiances for both GEO TIR and GEO TIR+VIS. KOPRA was developed by the Karlsruhe Institute of Technology (KIT) in 1998 (<http://www.imk-asf.kit.edu/english/312.php>). It was primarily designed to simulate atmospheric radiative transfer in the infrared for the MIPAS/ENVISAT satellite mission (Fischer et al., 2008; Carli et al., 2012). KOPRA is a line-by-line RTM and uses the HITRAN spectroscopic database (Rothman et al., 2005, 2009). KOPRA has been validated for nadir geometry by Tjemkes et al. (2003).

We couple KOPRA with the VLIDORT (Vector Linearized Discrete Ordinate Radiative Transfer) model (Spurr, 2006), the latter being used to simulate the VIS part of the radiances for GEO TIR+VIS. VLIDORT is a monochromatic multiple scattering RTM; it deals with polarized light scattering, and it uses the pseudo-spherical approximation for treating solar-beam attenuation in a curved atmosphere. VLIDORT is able to generate simultaneous fields of Jacobians (weighting functions) of simulated Stokes 4-vectors with respect to any profile of atmospheric variables and/or any surface parameter (Spurr, 2008).

Our forward model assumes a Lambertian surface, with the spectral database of reflectivity coming from the GOME (Global Ozone Monitoring Experiment) instrument (Koelemeijer et al., 2003). Cross-sections are either derived from line-by-line spectroscopy based on the HITRAN 2004 and 2008 database (Rothman et al., 2005, 2009), or taken from a UV/visible trace-species database (Daumont et al., 1992; Brion et al., 1993, 1998; Malicet et al., 1995) used for the GEOCAPE simulations (Natraj et al., 2011). In a first approximation, we do not take into account clouds nor aerosols, treating only Rayleigh scattering and trace gas absorption in the visible – these are our “clear-sky” conditions.

### 3.2.2.3 Inverse method

The optimal estimation inversion scheme used in this study is the iterative Newton–Raphson scheme which is suitable for non-linear problems. The Levenberg–Marquardt algorithm (Marquardt, 1963) is incorporated into this method to reduce instability during the inversion. More details can be found in Rodgers (2000).

The equation for the inversion method is :

$$x_{i+1} = x_a + (\mathbf{K}_i^t \cdot \mathbf{S}_y^{-1} \cdot \mathbf{K}_i + (1 + \gamma) \cdot \mathbf{S}_a^{-1})^{-1} \times [\mathbf{K}_i^t \cdot \mathbf{S}_y^{-1} \cdot (y - F[x_i]) + \mathbf{K}_i \cdot [x_i - x_a] + \gamma \cdot \mathbf{S}_a^{-1} \cdot [x_i - x_a]] \quad (3.1)$$

where  $x_i$  is the estimate of the state vector at iteration  $i$ ;  $x_a$  is the a priori state vector (see Sect. 2.4);  $F[x_i]$  is the radiance calculated by the RTM from  $x_i$ ;  $y$  is the radiance measured by the instrument;  $\mathbf{K}_i$  is the Jacobian matrix of the radiance over  $x$  ( $\mathbf{K} = \frac{\partial F[x]}{\partial x}$ ).  $\mathbf{S}_a^{-1}$  is the inverse of the error covariance matrix of the a priori.  $\mathbf{S}_y^{-1}$  is the inverse of the error covariance matrix of the measurements; finally,  $\gamma$  is the Levenberg–Marquardt parameter. This parameter is adjusted at each iteration to minimize the cost function. At iteration 0, the inversion starts with  $\gamma = 1$  and the estimate of the state vector at iteration 0 is  $x_0 = x_a$ . A  $\chi^2$  test determines how  $\gamma$  is adjusted. If the  $\chi^2$  value calculated at iteration  $i$  decreases, we reduce by a factor of 5 the value of  $\gamma$ , and we go to iteration  $i + 1$ . However, if the  $\chi^2$  value increases, we increase by a factor of 5 the value of  $\gamma$  and we repeat iteration  $i$ . The calculation stops after 10 iterations, or if the value of  $\gamma$  is consecutively increased five times and is not able to reduce the  $\chi^2$  value.

### 3.2.2.4 A priori information

As indicated in Eq. (1), a priori information is needed to retrieve the state vector. In this study, the focus is on the retrieval of ozone and on the main parameters that can affect this retrieval : the H<sub>2</sub>O profile, the temperature profile, and the surface albedo. The a priori information related to H<sub>2</sub>O and temperature profiles and surface albedo is assumed to come from measurements made by other satellite instruments or from meteorological analysis/prediction. In this study, the a priori data are simulated by adding a random value to the reference state to introduce a small error. The reference state is simulated with the MOCAGE CTM described in Sect. 2.1. Thus we assume  $x_a = x_{rs} + \epsilon_{rs}$ , where  $x_a$  is the a priori value of the parameter;  $x_{rs}$  is the reference state value of the parameter; and  $\epsilon_{rs}$  is a random Gaussian value with mean 0 and a standard deviation  $\sigma_{rs}$ . As done in Claeys et al. (2011b), we assume for the H<sub>2</sub>O profiles a  $\sigma_{rs}$  of 10 % at each pressure level, and for the temperature profile a  $\sigma_{rs}$  of 1 K at each pressure level. The surface albedo comes from a spectral database of reflectivity over the globe which provides for pixels of 1 the value of the reflectivity at 335, 380, 416, 440, 463, 494, 555, 610, 670, 758, and 772 nm. These reflectivities are fitted with third-order polynomials which are used in the VLIDORT calculations and in the inversion method. We retrieve the four coefficients of the polynomial function simultaneously with the other parameters. For the a priori on the albedo, we use the four coefficients obtained with the polynomial fit of the reflectivity database, and we then attach an error on each coefficient, in order to have a relative error of 10 % on the albedo.

The ozone a priori is calculated as the average of all ozone profiles from the MOCAGE CTM over Europe between 1 July 2008 and 31 August 2008, a period different to that considered for the comparison between GEO TIR and GEO TIR+VIS (9 to 15 July 2009). Thus, the O<sub>3</sub> a priori is constant for all retrievals. This makes it easier to do the comparison

between the different satellite configurations, which is done by studying the variability of the retrieved observations. A future possible improvement of this work would be to use dynamic  $O_3$  a priori profiles that vary over Europe and over time.

### 3.2.2.5 Instrument model

The instrument simulator models a grating spectrometer onboard a geostationary satellite. It calculates the radiance with instrumental noise using the two RTMs. The RTMs take into account the instrument geometry (i.e., an instrument onboard a geostationary satellite focused over Europe, at an altitude of 36 000 km, and positioned at 0 latitude and 10 longitude) to calculate the radiance that reaches the instrument. The purpose of the instrument model is to take into account the wavelength bands of the instrument, the spectral resolution of each band and the measurement noise (see Table 3.1). The radiance output of the RTM is convolved with a Gaussian slit function to simulate the spectral spread of the instrument. A filter is applied to this radiance to fit the spectral TIR and VIS transmission bands of the instrument. In each band, the radiance is discretized to be consistent with the spectral sampling resolution. To take into account the instrumental noise, we add to this radiance (called  $I_{\text{mod}}$  in Eq. 2) a value which depends on the signal-to-noise ratio (SNR) and a random number following the standard normal distribution ( $\tilde{N}$ ). The final measured radiance is :

$$I_{\text{meas}} = I_{\text{mod}} + \left( \frac{I_{\text{mod}}}{\sigma_{\text{SNR}}} \times \tilde{N} \right) \quad (3.2)$$

Moreover, we assume that, for a grating spectrometer, the SNR varies with the wavelength  $\lambda$  using the formula :  $\sigma_{\text{SNR}}(\lambda) = a \times \lambda + b$ , where  $\lambda$  is in nm,  $a$  and  $b$  are the coefficients derived from the detailed MAGEAQ concept study made by the industrial consortium ASTRIUM/AIRBUS. This simplified model accounts for the various noise contributors, including shot noise and also dark current, read out, flicker, thermal and quantization noises amongst the most significant technological noises. This study takes into account the different optical materials, focal planes, viewing geometry and integration time of two grating spectrometers (TIR and VIS). Claeysman et al. (2011b) already described the TIR configuration and Fig. 3.1 presents the calibration curve showing the variation of SNR vs. the wavelength for the VIS grating spectrometer. The SNR of the typical radiance case used in this study and the minimal radiance case are also presented in this figure.

To obtain the maximum sensitivity of our instrument to surface ozone, we take into account the information provided by the TIR and VIS bands. A compromise has to be made between the choice and the number of the spectral bands, the total bandwidth, the spectral resolution of the instrument in each band, and the technology and final cost of the instrument. In this study, we choose a feasible instrument configuration that optimizes high quality surface ozone retrievals (see Table 3.1). This configuration is based on the MAGEAQ concept which was proposed to the EE8 ESA call (Peuch et al., 2010). The instrument presented in our study uses two combined grating spectrometers, one with a spectral band in the TIR, and the other one with a spectral band in the VIS. The characteristics of these two bands are as follows :

TABLE 3.1 – Summary of the instrument configurations used. TIR = thermal infrared; VIS = visible; FWHM = full width half maximum; NESR = noise equivalent source radiance.

|                                |   |
|--------------------------------|---|
| Configuration                  |   |
| Field of regard                | 15 W–35 E, 35–65N   |
| Repeat cycle                   | 1 h   |
| Spatial resolution over Europe | 15 km × 15 km   |
| TIR channel                    |   |
| Spectral band                  | 1000–1070 cm <sup>-1</sup>                                    |
| Spectral sampling resolution   | 0.1 cm <sup>-1</sup>  |
| Spectral resolution FWHM       | 0.2 cm <sup>-1</sup>  |
| NESR                           | 6.04 nW (cm <sup>2</sup> sr cm <sup>-1</sup> ) <sup>-1</sup>  |
| VIS channel                    |   |
| Spectral band                  | 520–650 nm  |
| Spectral sampling resolution   | 0.3 nm  |
| Spectral resolution FWHM       | 1.2 nm  |
| NESR                           | 9.2 × 10 <sup>-3</sup> W (m <sup>2</sup> sr nm) <sup>-1</sup> |

- The TIR band has 21 micro-windows between 1000 and 1070 cm<sup>-1</sup>, a spectral sampling resolution of 0.1 cm<sup>-1</sup>, and a spectral resolution of 0.2 cm<sup>-1</sup> full width at half maximum (FWHM) of the Gaussian slit function. The coefficients for the noise model are :  $a = -1.374$  (nm<sup>-1</sup>) and  $b = 13\,940.0$  (dimensionless). It represents, on average, a noise equivalent source radiance (NESR) of 6.04 nW (cm<sup>2</sup> sr cm<sup>-1</sup>)<sup>-1</sup>.
- The VIS band has one micro-window from 520 to 650 nm inside the Chappuis band, a spectral sampling resolution of 0.3 nm, and a spectral resolution of 1.2 nm FWHM. The coefficients for the noise model are :  $a = -5.83$  (nm<sup>-1</sup>) and  $b = 5616.0$  (dimensionless) (see Fig. 3.1). It represents, on average, a NESR of 9.2 × 10<sup>-3</sup> W (m<sup>2</sup> sr nm)<sup>-1</sup>.

Concerning the polarization of the light associated with the instrument measurement, the first assumption, usually accepted, is to neglect the circular component in the atmosphere (e.g., Schutgens and Stammes, 2003). Furthermore, it is possible to add a scrambler device in the instrument design, which reduces the polarization effects. In other words, the linear components of the polarization of the light can be neglected with this instrumental improvement (Laan et al., 2000).

Like MAGEAQ, the GEO TIR and GEO TIR+VIS instruments are designed to measure hourly ozone over Europe, with a pixel size of 15 km × 15 km at 45 latitude. Figure 3.2 shows an ozone field simulated with the field of view (FOV) of the GEO instruments. In this study, we use a smaller domain over the western part of Europe from the FOV of the instrument and we degrade the spatial resolution to 0.5 × 0.5 for each pixel to fit the MOCAGE CTM grid (see Fig. 3.2). This change in the instrumental configuration has no impact on our study that focusses on the comparison between GEO TIR and GEO TIR+VIS for which

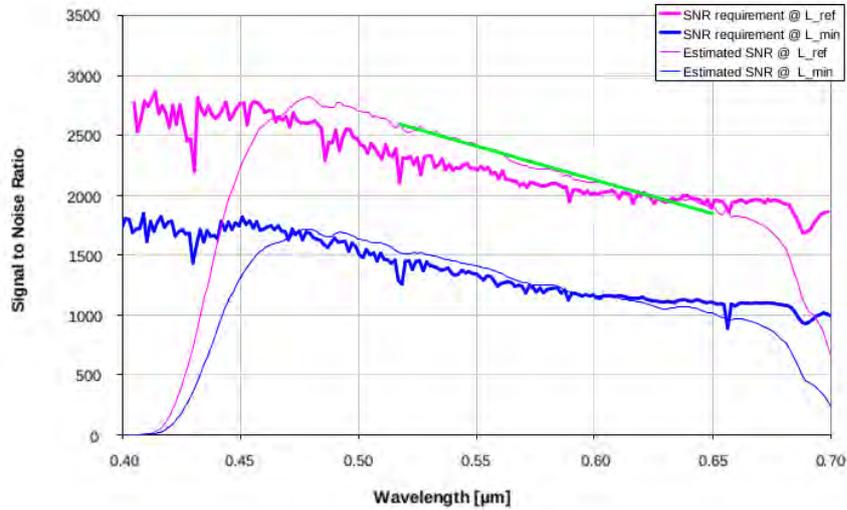


FIGURE 3.1 – Calibration curves representing the variation of the SNR with respect to the wavelength for the MAGEAQ VIS instrument. The pink lines indicate the SNR for the typical radiance case ( $L_{ref}$ ) and the blue lines indicate the SNR for the minimal radiance case ( $L_{min}$ ). The thick lines show the SNR requirement and the thin lines show the SNR estimated for the instrument. The thin pink curve is fitted by a linear line (green line) to derive the instrument noise model.

we have used the same spatial resolution. Degrading the horizontal resolution and the domain under investigation is a direct consequence of the high computation time needed to simulate the instrument measurement. Such a GEO image contains 200 000 pixels, but the smaller domain with the degraded spatial resolution has now 2000 pixels per image. This domain allows us to run simulations for extended periods of time. In this way, a full week of simulated retrievals is calculated for the two instruments : GEO TIR and GEO TIR+VIS, which gives more robust statistics.

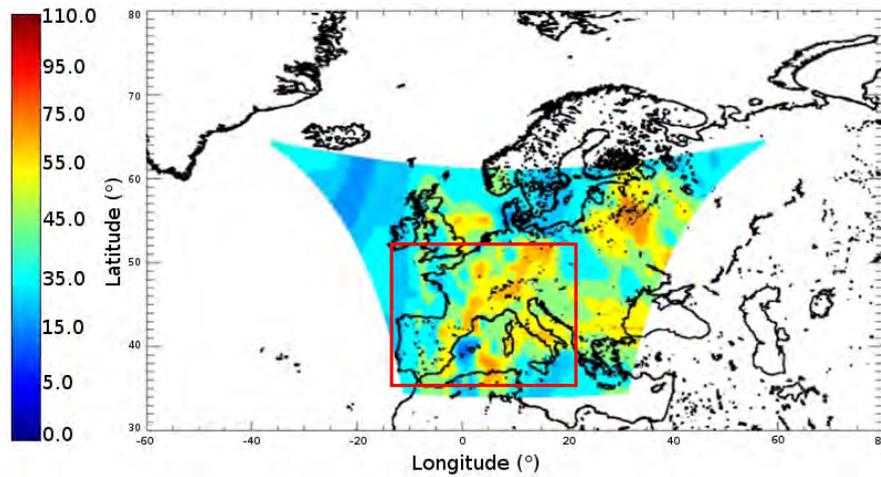


FIGURE 3.2 – Image of the surface ozone field from MOCAGE 11 July 2009 at 12 :00 UTC simulated with the field of view and the spatial resolution of the MAGEAQ geostationary instrument ( $\sim 15 \text{ km} \times 15 \text{ km}$ ). The colour bar indicates the ozone concentration in parts per billion by volume (ppbv), with red/blue indicating relatively high/low values. The red square indicates the domain of ozone simulation with the MOCAGE grid ( $0.5 \times 0.5$ ).

### 3.2.3 Results : intercomparison between GEO TIR and GEO TIR+VIS

This section presents an intercomparison of the data obtained from the simulator for the GEO TIR and GEO TIR+VIS instruments. We calculated retrievals for GEO TIR and GEO TIR+VIS over the domain delimited by the red square shown in Fig. 3.2, for the summer period between 9 and 15 July 2009. This period can be described as a typical summer, as it does not correspond to a period of extremely low or high concentrations of surface ozone. Over this period, the top of the planetary boundary layer can reach an altitude of around 400 m over the sea and 1 km above land during daytime. The efficient convective mixing in the planetary boundary layer means that we can focus on both the surface, and the 0–1 km column that corresponds roughly to the usual depth of the planetary boundary layer during daytime and over land. In the following subsections, we will discuss the results obtained at the surface and for the 0–1 km column.

#### 3.2.3.1 Surface ozone sensitivity

We first consider the sensitivity to surface ozone of the two different instrument concepts considered (GEO TIR and GEO TIR+VIS). This sensitivity is represented by averaging kernels  $A$  (Rodgers, 2000) defined by  $A = [K^T S_y^{-1} K + S_a^{-1}]^{-1} K^T S_y^{-1} K$ . The averaging kernels can be regarded as smoothing functions of the state vector  $x$ . They represent the fraction of the retrieval that comes from the data rather than the a priori, i.e., the sensitivity of the retrieval to the measurement. Averaging kernels tend to be approximately unity at levels where the retrieval is accurate. For visualization, we perform the normalization of the averaging kernels using 1 km layers to understand the degree of information at each vertical level. In general, the averaging kernels do not have an equidistant altitude grid. To address this, we normalize the averaging kernels information to 1 km by dividing the value of the averaging kernels by the layer thickness in the retrieval (corresponding to the layer between each chosen levels), which varies from 100 m (lower levels) to 8 km (higher levels). This approach is commonly used and more information can be found in Deeter et al. (2007) and Natraj et al. (2011). If we consider the averaging kernels averaged over the domain at different hours (Fig. 3.3), one can see a low sensitivity of the TIR at the surface during nighttime (02 :00 UTC). The GEO TIR shows a maximum sensitivity at a height of 3 km, which decreases and is almost zero at the surface. Since the VIS can only be used during daytime, the GEO TIR+VIS behaves similarly. During the early part of the daytime at 06 :00 UTC, the GEO TIR shows the same sensitivity as at 02 :00 UTC, because the thermal contrast at the surface is low, but the GEO TIR+VIS shows a maximum of sensitivity of 0.2 from the surface to about 500 m. At 12 :00 UTC, when the thermal contrast at the surface is higher, one can see that the GEO TIR has a constant sensitivity of 0.15 between 500 m and 4 km. For levels below 500 m, the sensitivity decreases quickly to less than 0.06 at the surface. The GEO TIR+VIS shows a maximum of sensitivity of 0.2 from the surface to 500 m. Thus, the GEO TIR instrument provides a very low sensitivity near the surface and some sensitivity in the 0–1 km column only during favourable conditions (i.e., high thermal contrast). In contrast, the GEO TIR+VIS is able to provide extra sensitivity at the surface during daytime.

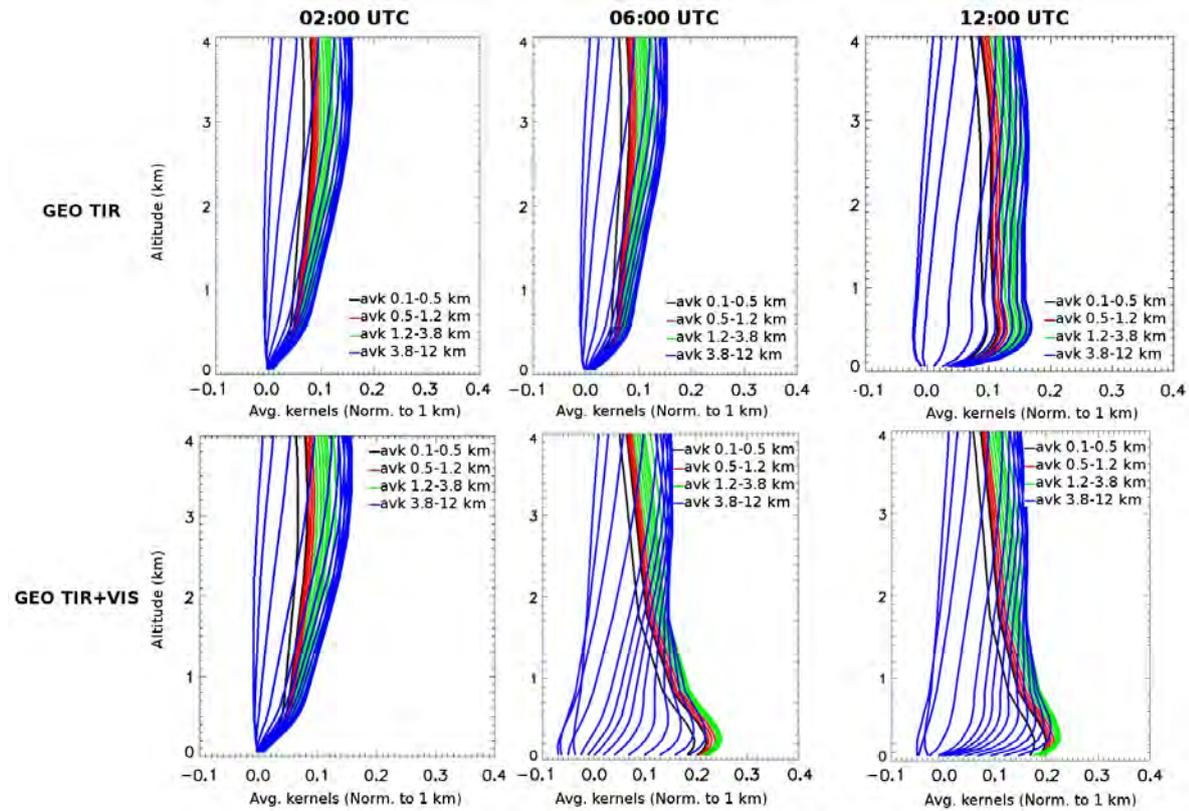


FIGURE 3.3 – Mean averaging kernels (normalized to 1 km), over the red square domain (over both land and sea pixels) in Fig. 3.2, as a function of altitude (km) at 02 :00, 06 :00 and 12 :00 UTC for GEO TIR (top 3 panels) and GEO TIR+VIS (bottom 3 panels). Black curves indicate the surface to 0.5 km averaging kernels, red curves indicate the 0.5 to 1.2 km averaging kernels, the green curves indicate the 1.2 to 3.8 km averaging kernels, and the blue curves indicate the 3.8 to 12 km averaging kernels.

Another diagnostic that quantifies the sensitivity is the Degrees of Freedom for Signal (DFS; Rodgers, 2000), i.e., the number of independent pieces of information that can be obtained from an observation, given by the trace of the matrix of the averaging kernels. Table 3.2 provides the different DFS obtained with GEO TIR and GEO TIR+VIS, for the 0–1 km column, at 02 :00, 06 :00 and 12 :00 UTC, averaged over the small domain. As shown previously, the GEO TIR+VIS is more sensitive to the surface than GEO TIR : since the DFS between 0 and 1 km during daytime is  $\sim 0.27$  for GEO TIR and  $\sim 0.34$  for GEO TIR+VIS, for the average of all the pixels of the red square domain (see Fig. 3.2).

We now compare the sensitivity of GEO TIR and GEO TIR+VIS between land and sea pixels (see Fig. 3.4 and Table 3.2). Firstly, we focus on GEO TIR results only. At 06 :00 UTC over sea, GEO TIR has a low sensitivity between 0–1 km. Over land, the performance is worse, as we have very low sensitivity between 0–1 km owing to the low thermal contrast.

TABLE 3.2 – Summary of the 0–1 km Degrees of Freedom for Signal (DFS) with GEO TIR and GEO TIR+VIS at 02 :00, 06 :00 and 12 :00 UTC for all the pixels of the red square domain (land and sea pixels together) in Fig. 3.2, and at 06 :00 and 12 :00 UTC for the case of sea and land pixels. Bold values represent the highest DFS values when comparing GEO TIR and GEO TIR+VIS.

|                        | All pixels |             |             | Sea         |             | Land        |             |
|------------------------|------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|
|                        | 02 :00     | 06 :00      | 12 :00      | 06 :00      | 12 :00      | 06 :00      | 12 :00      |
| GEO TIR 0–1 km DFS     | 0.15       | 0.18        | 0.27        | 0.22        | 0.21        | 0.11        | 0.31        |
| GEO TIR+VIS 0–1 km DFS | 0.15       | <b>0.35</b> | <b>0.34</b> | <b>0.27</b> | <b>0.28</b> | <b>0.42</b> | <b>0.40</b> |

The DFS between 0–1 km is 0.22 over sea and 0.11 over land. At 12 :00 UTC, over sea, GEO TIR has low sensitivity, but over land has better sensitivity owing to the increasing thermal contrast through the daytime. This is reflected in the DFS between 0–1 km, which is 0.21 over sea and 0.31 over land. We now discuss the GEO TIR+VIS results. At 06 :00 UTC over land, we have a better sensitivity to the surface than over sea, with the 0–1 km DFS over sea being 0.27 and over land 0.42. The sensitivity of GEO TIR+VIS at 12 :00 UTC is very similar. The sensitivity is better over land than over sea, with the 0–1 km DFS being 0.28 over sea and 0.40 over land.

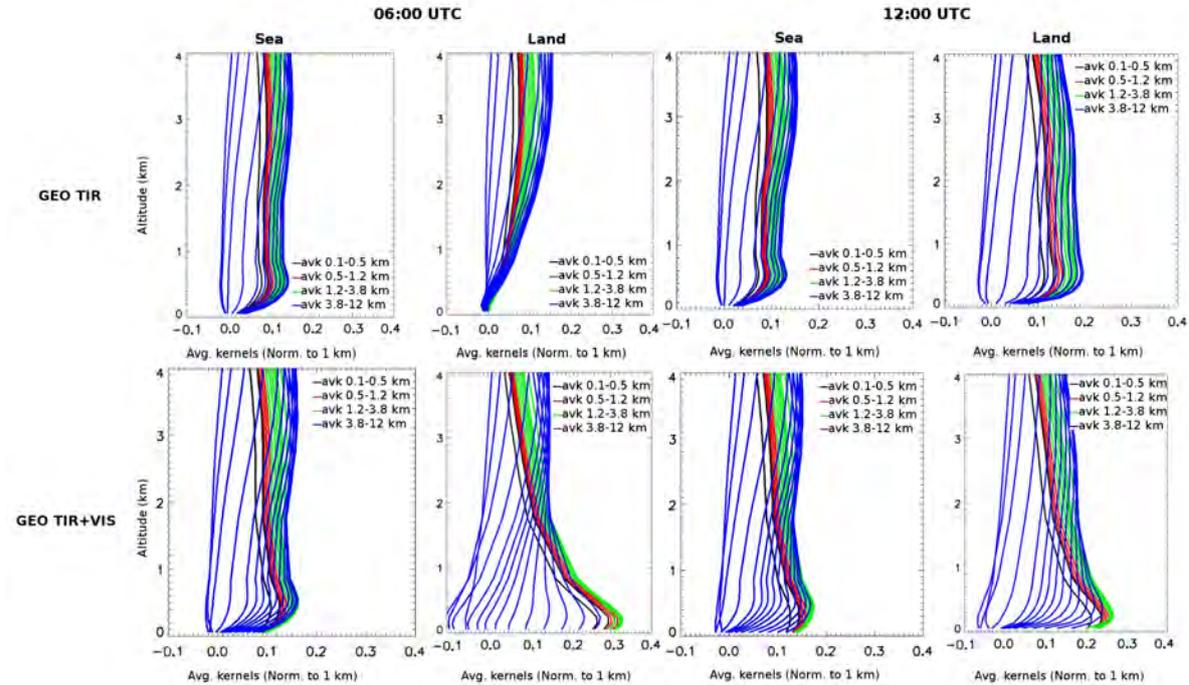


FIGURE 3.4 – As in Fig. 3.3 except for over sea pixels (first and third columns) and land pixels (second and fourth columns) at 06 :00 UTC and 12 :00 UTC.

For the GEO TIR+VIS, the simultaneous simulated retrievals of H<sub>2</sub>O, temperature

profiles and surface albedo, together with the retrievals of  $O_3$  profiles provide a significant amount of information on  $O_3$  values in the 0–1 km column. In particular, they provide better information during the daytime than those given by the GEO TIR. The GEO TIR+VIS instrument improves the sensitivity in the 0–1 km column during daytime compared to GEO TIR. These improvements are more pronounced for land pixels that are the main target for AQ monitoring purposes.

Another way to analyse these results is to study the values of the DFS representative of the 0–1 km column over Europe for GEO TIR and GEO TIR+VIS only during daytime (Fig. 3.5). In Fig. 3.5, the impact of the VIS band is obvious with higher DFS values on the domain showing a higher sensitivity at the lowermost layers. In addition, the highest sensitivities are over land where precise ozone measurements are crucial for AQ monitoring. Figure 3.6 presents the altitude of the maximum of the surface averaging kernels for GEO TIR and GEO TIR+VIS during daytime, which corresponds to the maximum sensitivity. For GEO TIR, the maximum sensitivity is located at about 3 km, but depends on the surface type : over land, the maximum is close to 2 km and over sea it is close to 4 km. However, for GEO TIR+VIS, the maximum sensitivity is at much lower altitude, namely about 300 m depending also on the surface type with lower altitude values over land and higher values over sea.

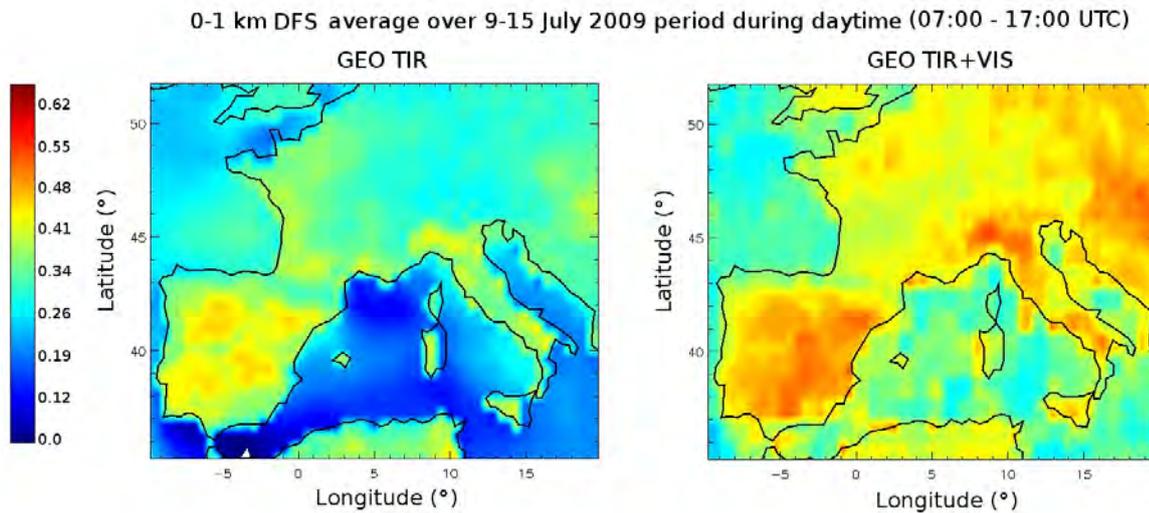


FIGURE 3.5 – DFS values for GEO TIR (left panel) and GEO TIR+VIS (right panel) over Europe and averaged over the daytime (07 :00–17 :00 UTC) period from 9 to 15 July 2009. The colour bar indicates the different DFS values, with red/blue indicating relatively high/low values.

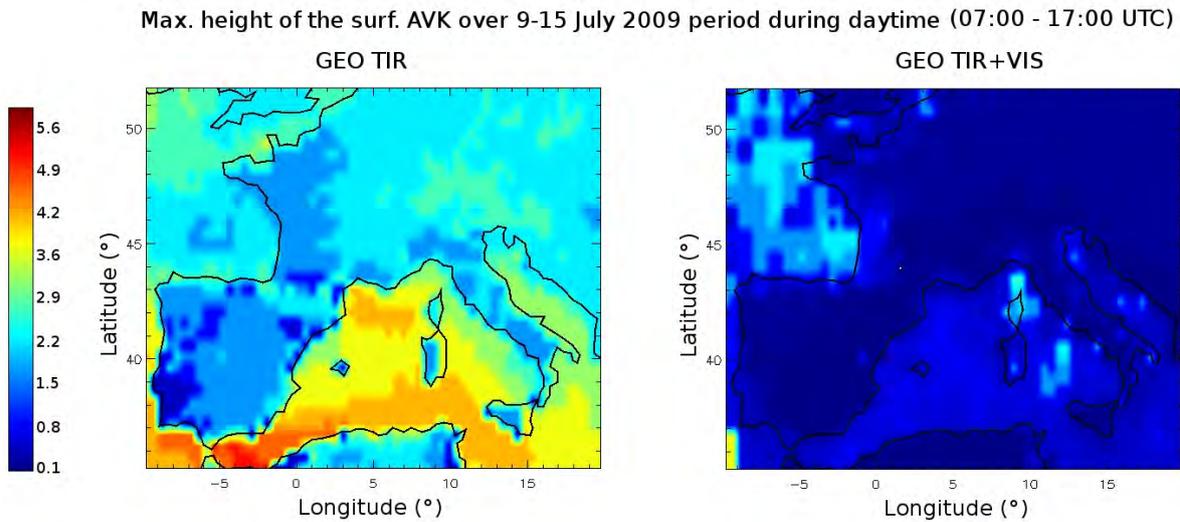


FIGURE 3.6 – As in Fig. 3.5 but for the height (km) of the surface averaging kernels maximum. The colour bar indicates the different height value in km, with red/blue indicating relatively high/low levels.

### 3.2.3.2 Ozone retrievals over a week period

We consider the intercomparison between GEO TIR and GEO TIR+VIS simulated observations and the performance over a one week period in this subsection. A statistical analysis is done by using the  $z$  test, the correlation coefficient between the simulated observations and the reference state, and the standard deviation of the simulated observations compared to the reference state. The  $z$  test has been used in OSSEs before to test the significance of differences between datasets (see Claeyman et al., 2011a; Lahoz et al., 2005). In order to highlight the differences between the results of the statistical tests comparing GEO TIR and GEO TIR+VIS, we calculate the  $z$  test for the 0–1 km ozone column only during daytime (07 :00–17 :00 UTC) (figure not shown). The result of the  $z$  test shows that over most of the domain of interest, the GEO TIR and GEO TIR+VIS configurations are significantly different at the 99 % significance level. This confirms that the two datasets corresponding to GEO TIR and GEO TIR+VIS contain significantly different information.

Figure 3.7 presents the 0–1 km ozone column of the reference state, the GEO TIR, and the GEO TIR+VIS configurations, for 11 July 2009 at 16 :00 UTC, as an example. For GEO TIR, the ozone values are globally underestimated but distinctive local features with high ozone values are well represented (e.g. over Spain and Italy). Conversely, for GEO TIR+VIS, the ozone distribution is closer to the reference state : the bias is reduced and the representation of the ozone field is better.

Figure 3.8 shows the values of the correlation coefficient and the standard deviation over time. This information is compared to the reference state for the surface and for the 0–1 km column, for GEO TIR and GEO TIR+VIS. The ozone correlations for GEO TIR

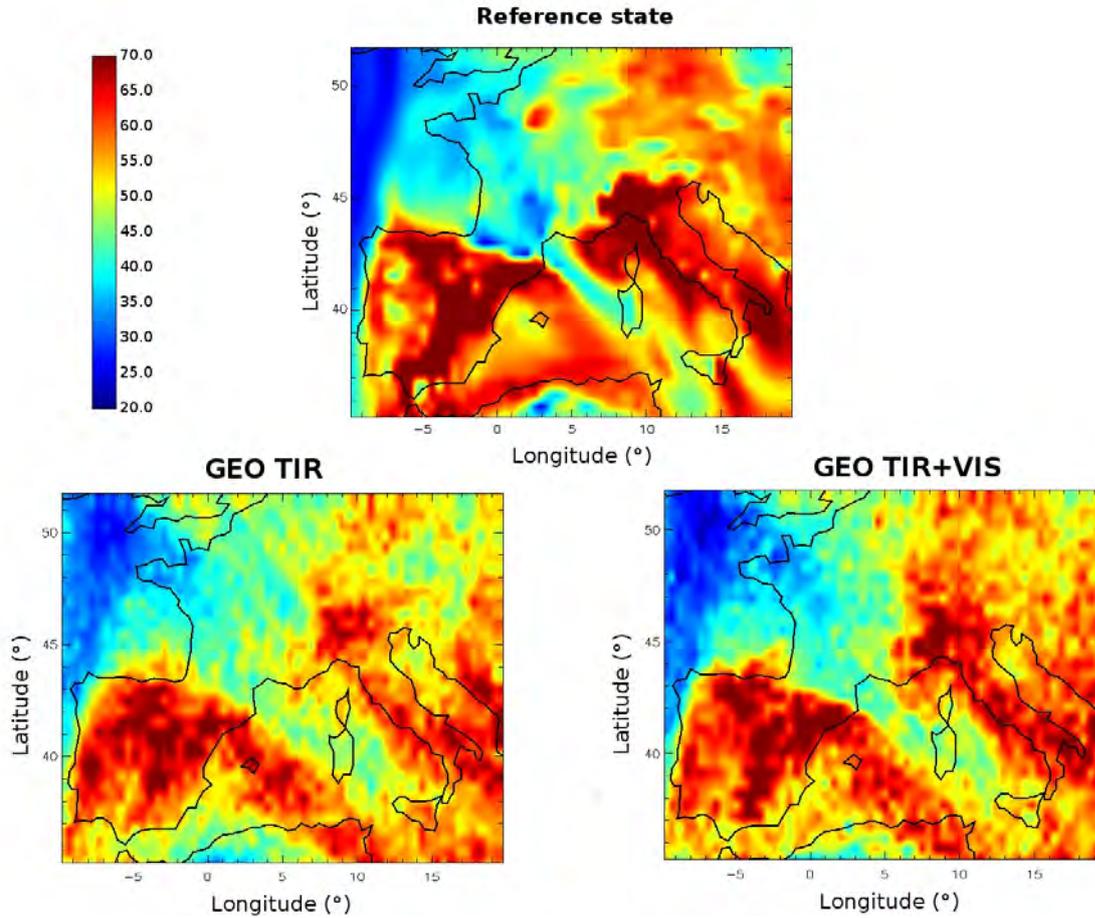


FIGURE 3.7 – 0–1 km ozone column (ppbv) for the 11 July 2009 at 16 :00 UTC for the reference state (top), GEO TIR (bottom left panel) and GEO TIR+VIS (bottom right panel). The colour bar indicates the ozone concentration in parts per billion by volume (ppbv), with red/blue indicating relatively high/low values.

and GEO TIR+VIS show a diurnal variability that corresponds to the thermal contrast variation, also in agreement with the diurnal cycle of ozone (maximum during daytime and minimum during nighttime). An additional diurnal variability corresponding to the amount of sunlight is seen for the GEO TIR+VIS compared to the GEO TIR. As expected, during nighttime, the simulated ozone correlations between GEO TIR and GEO TIR+VIS compared to the reference state are the same. During daytime, for the 0–1 km ozone column, there is an increase of 0.1 for the correlation coefficient from 0.65 (GEO TIR) to 0.75 (GEO TIR+VIS). The correlation at the surface also shows a diurnal variability, but the peaks of the maximum correlation are narrower; during daytime, GEO TIR+VIS gives an average correlation peaking at 0.6 while GEO TIR peaks at 0.5. The a priori is not correlated with the reference state with a correlation less than 0.2. Thus, the simulated observations are more highly correlated with the reference state than the a priori. The complementarity between TIR and VIS observations improves considerably the correlation between GEO TIR+VIS observations and the reference state, compared with the correlation between

GEO TIR observations and the reference state.

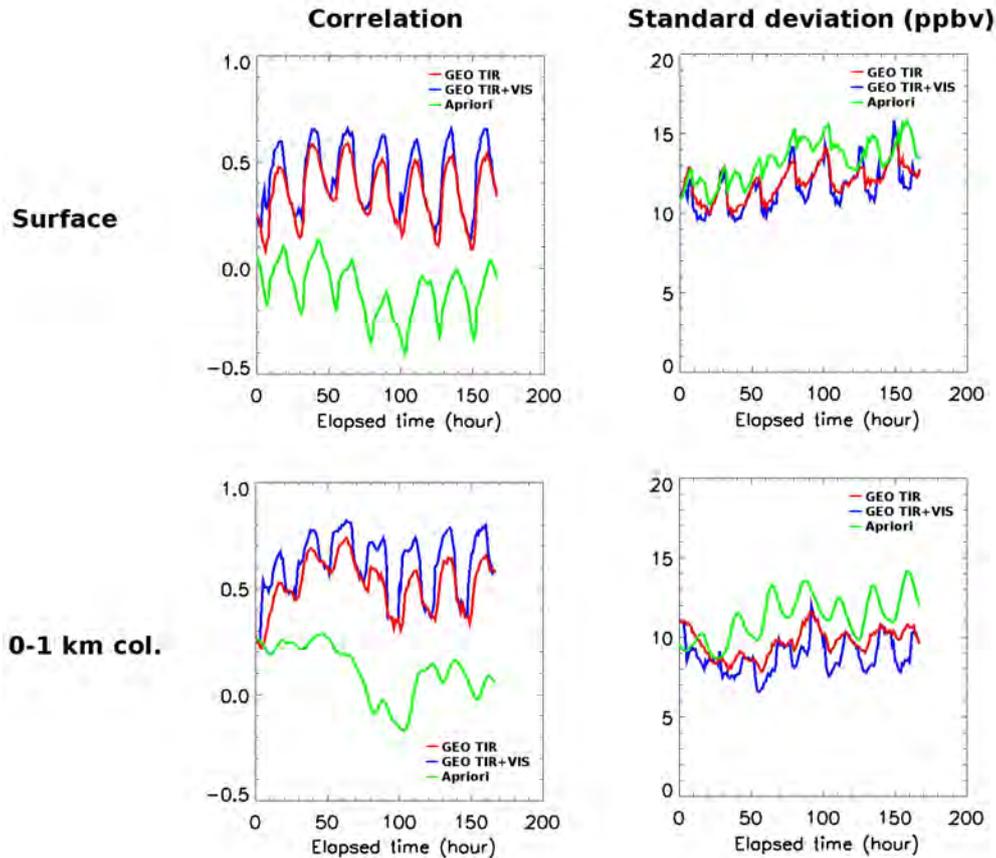


FIGURE 3.8 – Time series of ozone correlation (left column, dimensionless) and standard deviation (right column, ppbv) between GEO TIR (red lines), GEO TIR+VIS (blue lines) and the reference state. This is calculated for all pixels of the red square domain (see Fig. 3.2) for the period between 9 to 15 July 2009. The green line shows the results obtained with the a priori. The first row corresponds to the surface ozone results and the second row corresponds to the 0–1 km ozone column results.

The standard deviation shows the same behaviour as the correlation coefficients. During daytime, GEO TIR and GEO TIR+VIS have lower standard deviations compared to the reference state than between the a priori and the reference state. During daytime, the 0–1 km standard deviation of GEO TIR+VIS is lower than the 0–1 km standard deviation of GEO TIR by 15%. The same behaviour is seen for the daytime surface standard deviation (Fig. 3.8).

Finally, Fig. 3.9 shows the 0–1 km DFS that reflects the variation of the sensitivity of GEO TIR and GEO TIR+VIS over time. As expected, during nighttime, GEO TIR and GEO TIR+VIS have the same sensitivity. During daytime, the sensitivity of GEO TIR is

closely linked to the thermal contrast, so the sensitivity increases in the morning, reaches a maximum at the beginning of the afternoon, and decreases toward the end of the day. The 0–1 km DFS peak has an average value of 0.26. Conversely, the sensitivity of GEO TIR+VIS is linked to both the amount of sunlight (VIS part of the instrument) and to the thermal contrast (TIR part of the instrument). Thus, the 0–1 km DFS shows a considerable increase in the early morning, stabilizes during mid morning, increases at the end of the morning and beginning of afternoon, reaches a maximum during the afternoon, and decreases at the end of the day. The 0–1 km DFS peak has an average value of 0.36.

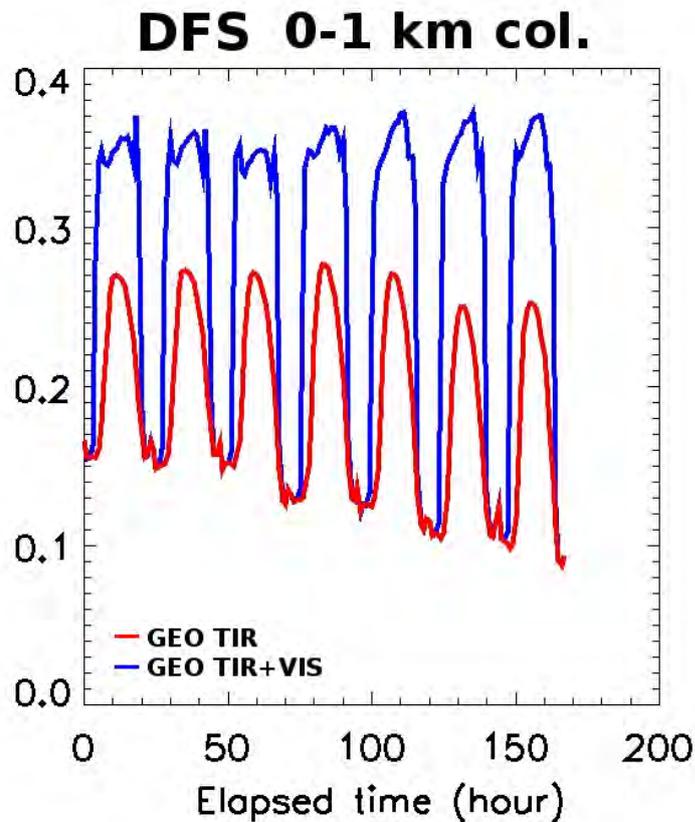


FIGURE 3.9 – 0–1 km DFS, for all the pixels of the red square domain (see Fig. 3.2), over time (period between the 9 to 15 July 2009) for GEO TIR (in red) and GEO TIR+VIS (in blue).

Now, we compare land and sea pixels to show the variation over time of the statistical parameters (correlation, standard deviation, and 0–1 km DFS). Focusing first on the sea pixels, Fig. 3.10 shows that the correlation has a diurnal cycle which is less pronounced than the correlation in the sea+land results for GEO TIR and GEO TIR+VIS. During daytime, an increase of 0.1 on the 0–1 km ozone column correlation for GEO TIR+VIS is calculated compared to the 0–1 km ozone column correlation for GEO TIR. However, there is no clear difference between the GEO TIR and GEO TIR+VIS surface ozone correlations. The same

behaviour is observed for the standard deviation. The 0–1 km ozone column standard deviation of GEO TIR+VIS is lower than that of GEO TIR, but no difference is calculated for the surface ozone standard deviation. Figure 3.11 shows that the GEO TIR average maximum is 0.18 for the 0–1 km DFS. For GEO TIR+VIS, the 0–1 km DFS shows an average maximum of 0.3. Compared to the previous set of results of GEO TIR and GEO TIR+VIS that considered all the pixels of the domain delimited by the red square (see Fig. 3.2), GEO TIR and GEO TIR+VIS are less efficient at retrieving sea pixels, particularly at the surface. This can be explained by the lower thermal contrast over the sea, and since the sea acts as a temperature reservoir, there is less variability associated with the diurnal cycle. Also, for the VIS, the albedo of the sea is small, and therefore the sensitivity at the surface added by the VIS over sea is relatively low.

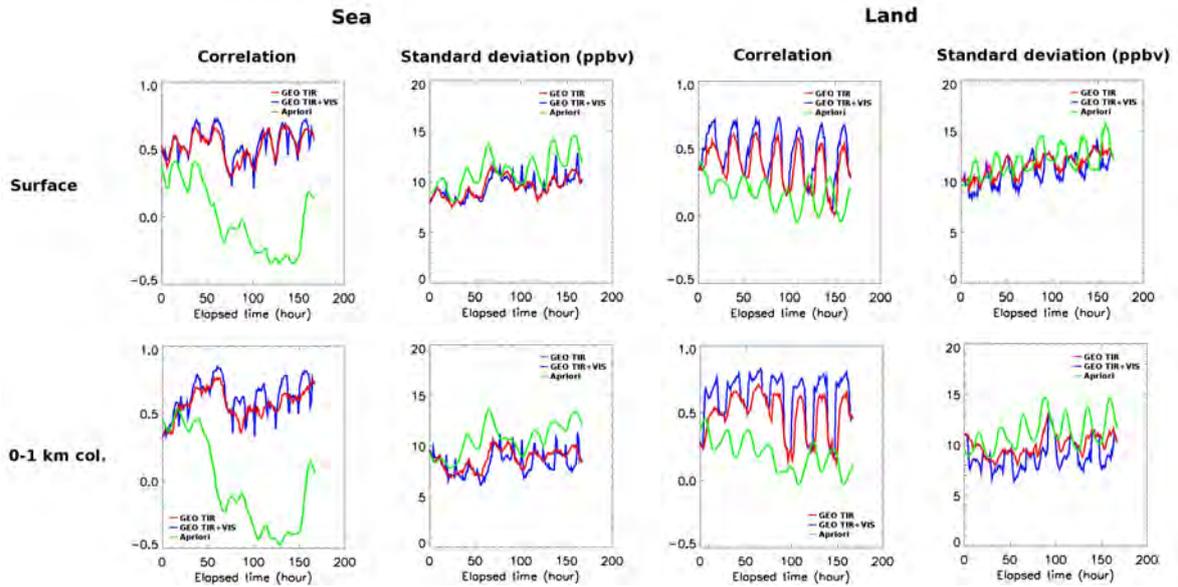


FIGURE 3.10 – As in Fig. 3.8 but for the sea pixels (first and second column) and land pixels (third and fourth column). First and third columns show the correlation ; second and fourth columns show the standard deviation.

For the land pixels, Fig. 3.10 shows the signature of the diurnal cycle. For GEO TIR, the 0–1 km ozone column correlation average maximum is about 0.6 and the surface ozone correlation average maximum is 0.55. For GEO TIR+VIS, the 0–1 km ozone column correlation average maximum is around 0.75 and the surface ozone correlation average maximum is around 0.65. For the standard deviation, during daytime, GEO TIR+VIS provides a significant improvement. On average this is a reduction of 20 % for the 0–1 km ozone column and a reduction of 10 % for the surface ozone, compared to the GEO TIR standard deviation. Finally, in Fig. 3.11, the GEO TIR 0–1 km DFS shows high variability during the diurnal cycle, the 0–1 km DFS average peak being 0.32. For the GEO TIR+VIS, the 0–1 km DFS average peak is 0.4.

As for the case of the results for GEO TIR and GEO TIR+VIS considering all the pixels

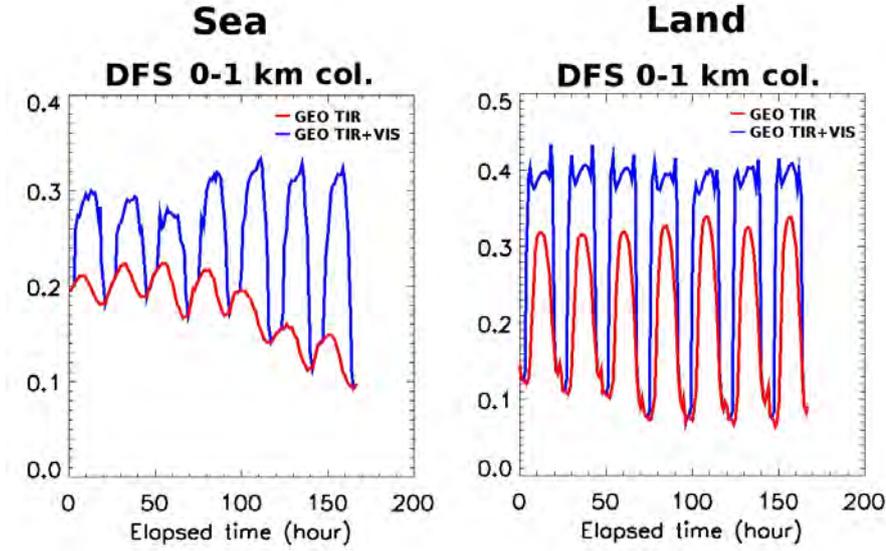


FIGURE 3.11 – As in Fig. 3.9 but for the sea pixels (first column) and land pixels (second column).

of the domain delimited by the red square (see Fig. 3.2), the GEO TIR+VIS is considerably more efficient than the GEO TIR in terms of sensitivity, correlation, and standard deviation, for both the 0–1 km column results and the surface results.

### 3.2.3.3 Air quality monitoring

The final intercomparison between the GEO TIR and GEO TIR+VIS instruments addresses their efficiency at monitoring AQ. The current European legislation for health protection is used, in particular the European directive (2008/50/CE), sets a threshold for the determination of a bad AQ event arising from high ozone concentrations. The threshold considered for the surface ozone concentration is nowadays  $120 \mu\text{g m}^{-3}$  for an 8 h consecutive period. This threshold is calculated using the daily maximum of an 8 h running average of the ozone surface value. The accuracy (ACC), the probability of detection (PD) and the false alarm rate (FAR) for the GEO TIR and GEO TIR+VIS instruments are calculated as follows :

$$\text{ACC} = 100 \times \frac{(R_1\_S_1 + R_0\_S_0)}{N} \quad (3.3)$$

$$\text{PD} = 100 \times \frac{R_1\_S_1}{R_1} \quad (3.4)$$

$$\text{FAR} = 100 \times \frac{R_0\_S_1}{R_0} \quad (3.5)$$

where  $R_1\_S_1$  represents the number of surface grid points where both the reference state and the simulated observations are higher than the threshold, and  $R_0\_S_0$  represents the number of surface grid points where both the reference state and the simulated observations

are lower than the threshold.  $N$  is the total number of surface grid points (number of pixels of the red square domain, see Fig. 3.2).  $R_1$  represents the number of surface grid points where the reference state is higher than the threshold.  $R_0\_S_1$  represents the number of surface grid points where the reference state is lower than the threshold and the simulated observations are higher than the threshold.  $R_0$  represents the number of surface grid points where the reference state is lower than the threshold.

TABLE 3.3 – Air quality monitoring results for GEO TIR and GEO TIR+VIS. For all the pixels of the red square domain (land and sea pixels together) in Fig. 3.2, the land pixels, and the sea pixels, we calculate the accuracy (ACC), the probability detection (PD) and the false alarm rate (FAR). See Sect. 3.2 for more details. Bold values represent the best values in the comparison between GEO TIR and GEO TIR+VIS.

|             | GEO TIR |       |              | GEO TIR+VIS  |              |       |
|-------------|---------|-------|--------------|--------------|--------------|-------|
|             | ACC     | PD    | FAR          | ACC          | PD           | FAR   |
| Global data | 70.78   | 28.72 | <b>10.81</b> | <b>75.37</b> | <b>49.45</b> | 13.29 |
| Sea pixels  | 65.62   | 10.40 | <b>1.55</b>  | <b>70.69</b> | <b>26.56</b> | 3.08  |
| Land pixels | 74.48   | 47.86 | <b>16.39</b> | <b>78.72</b> | <b>73.36</b> | 19.44 |

Table 3.3 presents the ACC, PD, FAR percentages for : the GEO TIR and GEO TIR+VIS configurations for the case where sea and land pixels are included together ; where only sea pixels are included ; and when only land pixels are included. For all pixels, GEO TIR has an ACC close to 70 % (65 % and 74 % for sea and land pixels, respectively), but a PD of around 30 % (10 % and 48 % for sea and land pixels, respectively) and a FAR around 11 % (1 % and 16 % for sea and land pixels, respectively). Thus, GEO TIR has a higher likelihood of missing a real ozone peak than to detect it, and when the instrument detects an ozone peak, GEO TIR has a likelihood of one in ten that it is a false alarm for the domain. For pixels over land, the domain of interest for monitoring AQ, we have a likelihood of one in six that it is a false alarm.

The results for all pixels for GEO TIR+VIS show that we have an ACC close to 75 % (70 % and 79 % for sea and land pixels, respectively). We have a PD close to 50 % (26 % and 73 % for sea and land pixels, respectively), and we have a FAR close to 13 % (3 % and 20 % for sea and land pixels, respectively). Therefore, one can see that GEO TIR+VIS always performs better than GEO TIR in terms of ACC and PD, and with just a slightly higher rate of false alarms. Note that for the GEO TIR+VIS over land, the domain of interest for monitoring AQ, we have a PD that reaches the value of 73 % ; this is more than 25 % better than the PD obtained with GEO TIR over land.

To get a better idea of the detection behaviour of the GEO TIR and GEO TIR+VIS instruments, we consider the Receiver Operating Characteristic (ROC) curves (Fig. 3.12) by calculating the changes in PD and FAR when we modify the threshold, and then we plot the PD against the FAR. Figure 3.12 shows the ROC plot calculated for the daily maximum of the 8 h running average of the surface values over land pixels.

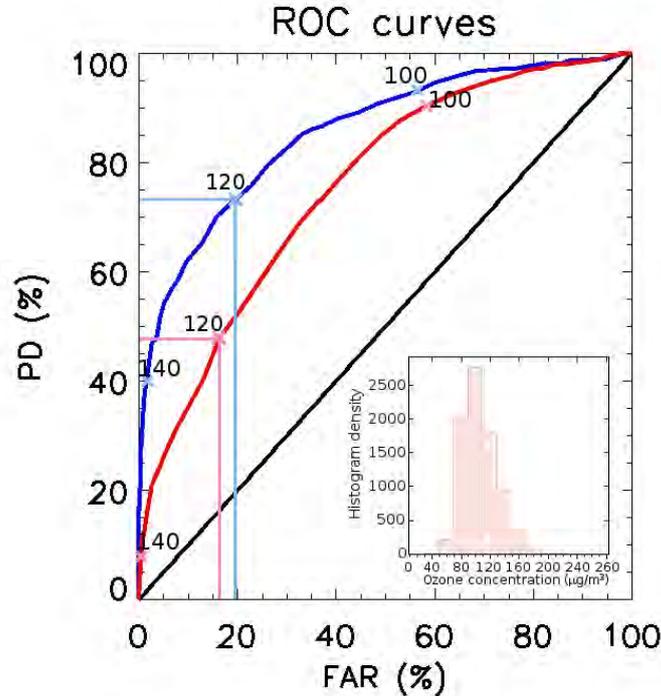


FIGURE 3.12 – Receiver Operating Characteristic (ROC) curves, that represent the probability of detection (PD) vs. the false alarm rate (FAR) considering the pixels for daytime (07 :00–17 :00 UTC) over land at the surface. In black is plotted the equal likelihood line, in blue the ROC curve for GEO TIR+VIS and in red the ROC curve for GEO TIR. The ROC curves are calculated for air quality purposes, and we highlight the value corresponding to the European threshold (2008/50/CE) for health protection of a surface ozone concentration of  $120 \mu\text{g m}^{-3}$ , measured for the daily maximum of the 8 h running average of the surface values. As a complementary information, two other thresholds (100 and  $140 \mu\text{g m}^{-3}$ ) are highlighted. Also the histogram of the distribution of the daily ozone maximum of the 8 h running average of the surface values of the reference state is shown.

For a weaker threshold value (less than  $100 \mu\text{g m}^{-3}$ ), GEO TIR and GEO TIR+VIS are quite similar in terms of PD and FAR likely because this threshold value is too close to the a priori to represent the sensitivity added by the two instruments. Conversely, for higher threshold values, GEO TIR+VIS improves the PD compared to GEO TIR for a quite similar FAR. In the same way, this shows a FAR of about 20 %, corresponding to the threshold of  $120 \mu\text{g m}^{-3}$ , with a probability of detection of about 75 % and less than 50 % for GEO TIR+VIS and GEO TIR, respectively. For threshold values greater than  $140 \mu\text{g m}^{-3}$ , the number of pixels is too low to obtain meaningful PD and FAR statistics. In Fig. 3.12, we also represent the histogram of the ozone concentration from the reference state that shows the bounds for which the calculations of PD and FAR are valid. These ROC curves are dependent on the distribution of the ozone fields of the reference state. Therefore, GEO

TIR+VIS clearly shows a better detection performance than GEO TIR concerning the European directive (2008/50/CE) threshold for health protection.

### 3.2.4 Conclusions

In this paper, we compare two geostationary satellite (GEO) instrument configurations for sampling ozone in the lowermost troposphere (surface and the 0–1 km height region). Ozone is an AQ hazard in the lowermost troposphere. These configurations represent two grating spectrometers operating in the TIR (GEO TIR), and in the TIR with a VIS channel (GEO TIR+VIS). The added value of the GEO TIR+VIS configuration compared to the GEO TIR configuration is quantified by comparing : (i) their sensitivity to surface ozone ; (ii) the performance of ozone profile retrievals from these configurations, and that of a priori ozone profile information, against an ozone reference state simulated with the chemical transport model MOCAGE ; and (iii) AQ threshold analysis. This comparison considers land and sea pixels for surface ozone and 0–1 km ozone column. The metrics used to quantify the relative performance of the configurations include the averaging kernels and the degrees of freedom for signal (DFS), and the statistical metrics used to quantify the performance of the configurations against the reference state include  $z$  test, correlation, standard deviation, DFS, height of maximum of surface averaging kernels and receiver operating characteristic (ROC) curves.

We find that the GEO TIR+VIS configuration provides more information on both surface ozone and the 0–1 km ozone column than the GEO TIR configuration during daytime (during nighttime, the VIS channel is not operational). The metrics considered also show that the GEO TIR+VIS configuration is closer to the reference state than both the GEO TIR configuration and ozone a priori information. Statistical tests indicate that the GEO TIR+VIS configuration is significantly closer to the reference state than the GEO TIR configuration. Correlation and standard deviation indicate that the addition of the VIS channel to the TIR instrument improves the simulated ozone observations compared to the reference state. DFS and the maximum of the surface averaging kernels show an enhancement in sensitivity in the lowermost layers including the boundary layer during daytime for the GEO TIR+VIS configuration vs. the GEO TIR configuration. Finally, the ROC curves clearly show the added value of the GEO TIR+VIS vs. the GEO TIR by calculating for a similar false alarm rate of  $\sim 20\%$  an improved probability of detection of  $\sim 75\%$  for GEO TIR+VIS compared to less than  $50\%$  for GEO TIR. These values correspond to the threshold of  $120 \mu\text{g m}^{-3}$  used nowadays in the European directive 2008/50/CE for health protection.

However, these results need to be taken with caution as several assumptions have been made. As discussed in this paper, we do not take into account clouds and aerosols. The assumption on the clouds is likely to be applicable as the goal of the instrument is to monitor air quality, in particular to monitor high ozone episodes, commonly associated with an anticyclonic situation (i.e., a cloud free situation). In addition, this study is a comparison between two instrument configurations, and thus provides relative results. The assumption on aerosols is more problematic as aerosols impact the radiances in the visible and degrade

the quality of the retrieval, in particular in the Chappuis band, but because of the difficulty of accurately modelling and measuring their properties (Timmermans et al., 2009), we have chosen not to take the aerosols into account in this first approximation to the problem. Moreover, this study only considers a lambertian surface with a spectral albedo interpolated using a third order polynomial. This representation of the surface properties neglects the uncertainties that are likely in reality due to the Bidirectional Reflectance Distribution Function (BRDF) and to the spectral signatures of surface and vegetation properties (Richter et al., 2012). Future improvements of this study will concern better modelling and retrieval of aerosols and surface properties. Finally, we also neglect the mismatches between the cross-sections used in the radiative transfer model and the real cross sections. Considering that measurements of cross-sections are made in the laboratory with errors which contribute to the retrieval error, these uncertainties could be significant (Liu et al., 2007; Gorshelev et al., 2014). The quality of the retrievals relies also on improvements in the laboratory measurements and in the modelling of these cross-sections.

Bearing in mind the assumptions made, these results suggest that a GEO TIR+VIS configuration provides significantly more information on surface ozone and the 0–1 km ozone column than a GEO TIR configuration. The TIR+VIS configuration would thus be worth considering as an addition to the Global Observing System for monitoring AQ. Future work will take into account the influence of the aerosols and the polarisation on the retrieval and provide more realistic results, e.g., including the impact of the scrambler geometry on the instruments, and the slit’s pseudo-noise. Moreover, future work will include performing an OSSE using assimilation products instead of using only retrievals to test further the results in this work and assess the impact that observation errors have on the comparison between the GEO TIR+VIS and GEO TIR configurations.

### Acknowledgements

*This work was funded by the Centre National de Recherches Scientifiques (CNRS) and the Centre National de Recherches Météorologiques (CNRM) of Météo-France. JLA and WL were supported by the RTRA/STAE foundation. EH and JLA thank also the Région Midi Pyrénées (INFOAIR project) and ASTRIUM-EADS for their strong support. This work was performed using HPC resources from GENCI-TGCC (Grant 2012-t2012016951) and GENCI-IDRIS (Grant 2013-t2013016951). We acknowledge the two referees and the editor for their corrections and their reports that helped to improve the quality of the paper.*

### 3.3 Conclusions du chapitre

Dans ce chapitre nous avons pu étudier les capacités de l'instrument MAGEAQ, en particulier la valeur ajoutée par sa bande dans le visible pour la mesure de l'ozone pour la qualité de l'air. En effet, l'étude a porté sur la comparaison entre GEO TIR et GEO TIR+VIS à travers leurs sensibilités à la mesure de l'ozone, les performances de l'inversion de données de l'ozone dans la couche limite atmosphérique (0–1 km), et la détection des dépassements de seuils d'ozone. De plus l'étude a considéré de manière distincte les résultats obtenus sur les surfaces maritimes des résultats obtenus sur les surface continentales.

Les résultats montrent que GEO TIR+VIS permet d'apporter un ajout de sensibilité et d'information significatif pour l'inversion de l'ozone dans la couche limite atmosphérique, comme pour l'ozone de surface, comparé à GEO TIR. En effet, au-dessus des surfaces continentales, pour la colonne 0–1 km d'altitude, GEO TIR+VIS a un pic moyen de DFS de 0.4 en journée, alors que GEO TIR a un pic moyen de 0.32 en journée. De plus, les résultats montrent que l'apport du visible permet d'obtenir une corrélation entre les valeurs d'ozone inversées par l'instrument GEO TIR+VIS et les valeurs d'ozone réelles de 0.75 pour la colonne 0–1 km ; alors que la corrélation entre les valeurs d'ozone inversées par l'instrument GEO TIR et les valeurs d'ozone réelles est de 0.6 pour la colonne 0–1 km. Enfin, les derniers résultats ont montré que les capacités de détection des dépassements de seuils d'ozone pour GEO TIR+VIS atteignent 75 % alors que GEO TIR atteint 50 %.

Cependant, ces résultats doivent être pris avec précautions car ils ont été obtenus via la modélisation, et pour se faire plusieurs hypothèses ont été faites. En effet, l'étude se place dans le cas d'un « ciel clair », c'est à dire sans nuage et sans aérosols. L'hypothèse sur les nuages est acceptable dans la mesure où les pics d'ozone estivaux en Europe se produisent lors de situations anti-cycloniques, c'est à dire sans nuages. En revanche, l'hypothèse sur les aérosols a été faite pour simplifier en première approximation la modélisation et l'inversion de données, mais est loin d'être vraie. En effet, les aérosols impactent les valeurs des radiances, surtout dans les bandes de Chappuis, et par conséquent la méconnaissance de leurs concentrations dans l'atmosphère va diminuer les capacités de l'instrument GEO TIR+VIS. Également, l'étude considère les surfaces comme uniquement lambertiennes et associées à une valeur d'albédo spectral interpolée par un polynôme d'ordre 3. En réalité, il nous faudrait considérer des fonctions de distribution de la réflectance bidirectionnelle (BRDF) et également prendre en compte des signatures spectrales spécifiques aux surfaces et à la végétation (Richter et al., 2012). A nouveau la méconnaissance que l'on a sur ces propriétés va aboutir à diminuer les capacités de l'instrument GEO TIR+VIS.

Au final les résultats de cette étude ont permis de nous fournir en première approximation une idée sur les capacités de l'instrument GEO TIR+VIS. Ces résultats démontrent l'utilité d'avoir un sondeur géostationnaire dédié à la mesure des espèces chimiques pour la qualité de l'air, et la nécessité de coupler le VIS au TIR. Des axes d'améliorations futures pour ce travail, dans le but de s'approcher toujours plus de la réalité, concernent la modélisation et l'inversion de données des aérosols et des propriétés de surface. Enfin, il est indispensable de replacer l'utilité d'un tel sondeur dans le système d'observations global

(GOS), c'est à dire comparer l'ajout des observations de MAGEAQ par rapport au réseau déjà existant de stations sol à travers la réalisation d'expériences de simulations de système d'observation (OSSEs), ce que nous allons voir dans le prochain chapitre.





# Chapitre 4

## Assimilation de données et expériences de systèmes d'observations simulés

### Sommaire

---

|            |   |            |
|------------|---|------------|
| <b>4.1</b> | <b>Introduction</b>   | <b>144</b> |
| <b>4.2</b> | <b>L'Assimilation de données</b>  | <b>146</b> |
| 4.2.1      | Principes   | 146        |
| 4.2.2      | MOCAGE-PALM   | 150        |
| 4.2.3      | Expériences de systèmes d'observations simulés  | 151        |
| <b>4.3</b> | <b>OSSE : L'apport de GEO TIR+VIS comparé aux stations sol pour la mesure de l'ozone pour la qualité de l'air</b> | <b>153</b> |
| 4.3.1      | Description de l'OSSE   | 153        |
| 4.3.2      | Caractérisation de l'assimilation et des incréments d'analyse   | 158        |
| 4.3.3      | Résultats de l'assimilation de données : Évaluation statistique des analyses de l'ozone                           | 159        |
| 4.3.4      | Résultats de la prévision de l'ozone de surface et dans la couche 0–1 km  | 168        |
| <b>4.4</b> | <b>Conclusions du chapitre</b>  | <b>172</b> |

---

## 4.1 Introduction

Ce chapitre a pour but d'évaluer la valeur ajoutée du sondeur géostationnaire MAGEAQ dans le système d'observations global (en anglais, Global Observing System -GOS-) actuel, afin d'améliorer la distribution et la prévision de l'ozone dans la couche limite atmosphérique pour la qualité de l'air (QA). Actuellement la prévision quotidienne de l'ozone passe par les modèles de QA préalablement contraints par les observations disponibles, i.e. par assimilation de données provenant du GOS.

L'assimilation de données joue un rôle majeur dans l'amélioration des prévisions. En effet, comme nous l'avons vu dans la section 2.1, les modèles ne servent qu'à approcher la réalité et sont souvent empreints d'une erreur. De plus, les incertitudes sur l'état initial réel et le fait que les processus modélisés sont souvent non-linéaires aboutissent rapidement à créer une erreur importante dans les prévisions : on parle alors de limite de prévisibilité. L'assimilation de données, en contraignant le modèle à un instant donné  $t$  à aller vers les observations, permet ainsi de diminuer l'incertitude entre la réalité et le modèle à l'instant  $t$ . En conséquence l'état prévu  $t + 1$  est amélioré d'autant plus. En météorologie, par exemple, les non-linéarités aboutissent à une limite de prévisibilité de la modélisation à environ 7 jours. C'est grâce à l'assimilation continue des observations provenant de stations sol, des observations aéroportées, et des satellites, que l'on est capable de définir l'état initial du jour  $j$  permettant ensuite de modéliser l'état prévu jusqu'à  $j + 7$ , et ce en continu.

Un autre avantage majeur de l'assimilation de données, et de permettre de passer de l'espace des observations à l'espace de la modélisation. En effet, le résultat de l'assimilation, appelé analyse, est donné sur la grille du modèle permettant ainsi la comparaison directe entre analyse et modèle, mais également entre toute autre analyse créée à partir d'autres systèmes d'observation totalement différents. On peut ainsi comparer par exemple l'analyse utilisant des données satellites, avec l'analyse utilisant des données de stations sol.

L'intercomparaison de l'analyse issue de différents systèmes d'observations s'appelle plus couramment des expériences de systèmes d'observations (en anglais, Observing System Experiments -OSEs-), ou encore lorsque les systèmes d'observations sont simulés on parle d'expériences de systèmes d'observations simulés (en anglais, Observing System Simulated Experiments -OSSEs-). Quelques OSSEs ont été réalisées pour des études en lien avec la qualité de l'air, par exemple, Edwards et al. (2009) compare un instrument à bord d'un satellite géostationnaire mesurant dans le TIR et le NIR avec des instruments à bord de satellites défilants mesurant dans le TIR, dans le but de mesurer le monoxyde de carbone à la surface, aux États-Unis. Claeys et al. (2011a) compare deux instruments différents à bord de satellites géostationnaires, mesurant dans le TIR. Le premier instrument reprend la configuration de MAGEAQ dans la bande TIR, et le second reprend la configuration du futur instrument MTG IRS. L'étude évalue les capacités de ces instruments à mesurer l'ozone et le monoxyde de carbone entre 0 et 3 km d'altitude, en Europe. Yumimoto (2013) compare un instrument TIR à bord d'un satellite défilant avec un instrument TIR à bord d'un satellite géostationnaire, et un instrument TIR et NIR à bord d'un satellite géostationnaire, pour mesurer le monoxyde de carbone à la surface, en Asie de l'Est. Enfin, Zoogman

et al. (2014) compare un instrument UV et VIS à bord d'un satellite géostationnaire avec un instrument TIR à bord d'un satellite défilant, et des stations sol, pour mesurer l'ozone de surface aux États-Unis.

Nous nous proposons dans ce chapitre d'étudier une OSSE comparant des stations sol avec l'instrument simulé MAGEAQ (couplant une bande dans le TIR et le VIS) à bord d'un satellite géostationnaire (par la suite on parlera de GEO TIR+VIS), pour mesurer l'ozone à la surface et dans la couche 0–1 km d'altitude, pour la qualité de l'air, en Europe.

Pour cela, nous verrons dans un premier temps, dans ce chapitre, les principes de l'assimilation de données, et des OSSEs. Nous parlerons également du modèle d'assimilation de données utilisé : MOCAGE-PALM. Ensuite, nous présenterons en détail l'OSSE réalisée et nous traiterons les résultats obtenus, visant à quantifier l'apport des observations de MAGEAQ dans le GOS. Enfin nous conclurons sur ce chapitre.

## 4.2 L'Assimilation de données

L'assimilation de données, de manière générale, vise à estimer l'état d'un système dynamique en utilisant toutes les sources d'informations disponibles. Elle regroupe l'ensemble des techniques statistiques qui permettent d'améliorer la connaissance de l'état d'un système à partir de sa connaissance théorique (le modèle) et des observations expérimentales. Elle appartient au domaine de l'estimation statistique et de la théorie du contrôle (Gelb, 1974; Lions, 1968).

Son origine remonte au 18<sup>ème</sup> siècle, lorsque l'astronome Johann Tobias Mayer réussit à calculer les mouvements de la Lune avec une précision inégalée à l'époque. En effet, il évalua les erreurs dues aux imperfections des réglages des instruments de mesure et eut le premier l'idée de répéter la mesure des angles pour atténuer les erreurs de mesure. C'est pendant cette époque également que les astronomes et mathématiciens développèrent les méthodes d'estimation similaires à la méthode des moindres carrés, et c'est à partir du 20<sup>ème</sup> siècle, grâce aux travaux du mathématicien Sir Ronald Aylmer Fisher, que la thématique de l'estimation pris son envol (Fischer, 1925). Par la suite, Rudolf Emil Kalman développa le filtrage optimal récursif (Kalman, 1960; Kalman and Bucy, 1961), plus couramment appelé « le filtre de Kalman » (cf. section 4.2.1), tandis que Yoshi Kazu Sasaki proposa vers la même époque une approche variationnelle de l'estimation (Sasaki, 1958, 1970) qui, sous certaines hypothèses, conduit à des résultats semblables à ceux du filtrage optimal, on parle alors de méthode 3D-Var ou 4D-Var (cf. section 4.2.1) en fonction que l'on prenne en compte ou non la dimension temporelle.

La première discipline des sciences de la terre à s'être emparée de l'assimilation de données est la météorologie. En effet, dès 1963 Gandin (Gandin, 1963) développa une analyse objective des champs de précipitations totales. Convaincus de l'importance cruciale de l'assimilation de données, de nombreux centres de recherche ou de prévision tels que Météo-France ou le Centre Européen pour les Prévisions Météorologiques à Moyen-Terme CEPMMT) (Rabier et al., 2000) participent à des projets internationaux ayant pour objectifs l'amélioration des prévisions météorologiques, mais aussi l'étude de l'impact anthropique sur l'évolution du climat, et la prévision de la qualité de l'air. Ceci est rendu possible par l'amélioration des sources d'informations, par exemple les nouvelles générations de satellites d'observations, et par une incessante augmentation des capacités de calcul.

### 4.2.1 Principes

Les méthodes d'assimilation de données ont une base commune avec les méthodes d'inversion de données, celle de l'estimation optimale. En effet, toutes les deux cherchent à obtenir la meilleure estimation possible d'un état donné. L'assimilation de données se base sur le formalisme suivant : on cherche à estimer l'état du modèle vrai (ou encore de la réalité)  $x^t$ . Pour cela on fait appel à « l'ébauche », c'est à dire la première estimation disponible de l'état étudié  $x^t$ . On note l'ébauche  $x^b$ . On ajoute alors à l'ébauche les observations  $y^o$  qui permettent d'obtenir des informations partielles sur l'état étudié  $x^t$  au travers de l'opérateur d'observation non-linéaire  $H$ . Certaines hypothèses, comme la linéarisation de l'opérateur

d'observation  $H$  au voisinage de l'ébauche par  $\mathbf{H}$  tel que :  $Hx - Hx^b = \mathbf{H}(x - x^b)$ , ou encore la considération des erreurs d'ébauche  $\epsilon_b$  et d'observation  $\epsilon_o$  comme étant non-biaisées et de statistiques connues, nous permettent ainsi de calculer la valeur de l'état assimilé, ou analyse,  $x^a$ , la plus proche de l'état étudié  $x^t$  :

$$x^a = x^b + \mathbf{K}^*(y^o - \mathbf{H}x^b) \quad (4.1)$$

et la matrice de covariance d'erreur de l'analyse

$$\mathbf{A} = (\mathbf{I} - \mathbf{K}^*\mathbf{H})\mathbf{B}(\mathbf{I} - \mathbf{K}^*\mathbf{H})^T + \mathbf{K}^*\mathbf{R}\mathbf{K}^{*T} \quad (4.2)$$

Avec  $\mathbf{I}$  la matrice identité,  $\mathbf{B}$  et  $\mathbf{R}$  respectivement les matrices de covariance d'erreur de l'ébauche et des observations. Le terme  $(y^o - \mathbf{H}x^b)$  est également appelé terme d'innovation de l'assimilation. Enfin  $\mathbf{K}^*$  représente le gain optimal, défini par  $\mathbf{K}^* = \mathbf{B}\mathbf{H}^T(\mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^T + \mathbf{R})^{-1}$  dans notre cas d'estimation linéaire, non-biaisée, et optimale. On parle plus couramment d'estimation BLUE (Best Linear Unbiased Estimation).

Une autre façon de résoudre ce problème d'estimation passe par l'approche variationnelle. On cherche alors à minimiser une fonction coût  $J(x)$  tel que :

$$J(x) = \frac{1}{2}(x - x^b)B^{-1}(x - x^b) + \frac{1}{2}(y^o - \mathbf{H}x)^T R^{-1}(y^o - \mathbf{H}x) \quad (4.3)$$

Le minimum est donné par :

$$\nabla J(x) = B^{-1}(x - x^b) - \mathbf{H}^T R^{-1}(y^o - \mathbf{H}x) = 0 \quad (4.4)$$

Ce qui nous donne ainsi la solution suivante :

$$x^a = x^b + (B^{-1} + \mathbf{H}^T R^{-1} \mathbf{H})^{-1} \mathbf{H}^T R^{-1} (y^o - \mathbf{H}x^b) \quad (4.5)$$

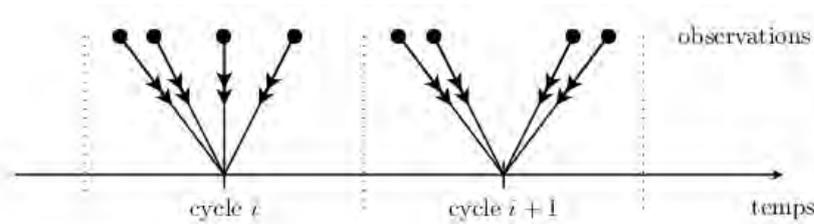


FIGURE 4.1 – Répartition des observations dans la méthode 3D-VAR d'après Daget (2007).

Ces deux méthodes (BLUE et variationnelle) de résolution sont à la base même des deux principales techniques existantes pour l'assimilation de données :

- L'assimilation séquentielle : basée sur la théorie d'estimation linéaire statistique, elle consiste à ajuster une ou plusieurs variables du modèle par rapport aux observations au fur et à mesure de leurs disponibilités dans le temps, sans jamais utiliser d'observations futures. L'algorithme le plus utilisé est celui du filtre de Kalman (Kalman, 1960). Ce dernier stipule que l'analyse au temps  $t_i$  est donné par  $x_i^a$  tel que :

$$x_i^a = x_i^f + \mathbf{K}_i(y_i^o - \mathbf{H}_i x_i^f) \quad (4.6)$$

et la matrice de covariance d'erreur d'analyse au temps  $t_i$ ,  $\mathbf{P}_i^a$ , est tel que :

$$\mathbf{P}_i^a = (\mathbf{I} - \mathbf{K}_i \mathbf{H}_i) \mathbf{P}_i^f \quad (4.7)$$

avec  $\mathbf{K}_i$  la matrice de gain au temps  $t_i$  donné par :  $\mathbf{K}_i = \mathbf{P}_i^f \mathbf{H}_i^T (\mathbf{H}_i \mathbf{P}_i^f \mathbf{H}_i^T + \mathbf{R}_i)^{-1}$ . Et  $\mathbf{P}_i^f$  est la matrice des covariances d'erreur d'ébauche. Le superscript  $f$  sert à mettre en évidence le fait que l'ébauche est une prévision ( $f$  comme forecast). Enfin l'ébauche au temps  $t_i$ ,  $x_i^f$ , et sa matrice de covariance associée  $\mathbf{P}_i^f$ , sont reliées au modèle linéarisé  $\mathbf{M}$ , son adjoint  $\mathbf{M}^T$ , à l'erreur associée au modèle  $\mathbf{Q}_i$ , et à l'état analysé précédent par :

$$x_{i+1}^f = \mathbf{M}_{i \rightarrow i+1} (x_i^a) \quad (4.8)$$

et

$$\mathbf{P}_{i+1}^f = \mathbf{M}_{i \rightarrow i+1} \mathbf{A}_i \mathbf{M}_{i \rightarrow i+1}^T \quad (4.9)$$

- L'assimilation variationnelle : basée sur la théorie de l'optimisation, elle consiste à utiliser l'ensemble des observations passées et futures sur une période déterminée, appelée fenêtre d'assimilation, pour obtenir un état initial optimum permettant une trajectoire du modèle la plus proche possible des observations (Dimet and Talagrand, 1986). Cette méthode passe par la minimisation de la fonction coût vue précédemment, cf. équation (4.3). Il existe différentes méthodes variationnelles, les plus célèbres étant celle du 3D-VAR, 3D-FGAT, et 4D-VAR. La différence entre ces méthodes réside dans la façon de prendre en compte la dimension temporelle des observations dans l'assimilation. En effet, une méthode 3D-VAR considère, au temps d'assimilation  $t_i$ , toutes les observations à l'intérieur d'une fenêtre temporelle donnée  $[t_i - \delta t, t_i + \delta t]$  et les associe au temps  $t_i$ , et calcule ainsi la valeur de l'analyse  $x^a = x^b + \delta x$ , où  $x^b$  représente l'ébauche et  $\delta x$  l'incrément de l'assimilation constant sur la fenêtre temporelle donnée (cf. Fig. 4.1). La méthode 3D-FGAT est similaire au 3D-VAR à ceci près qu'elle considère le temps associé à chacune des observations (cf. Fig. 4.2). Enfin la méthode 4D-VAR est la méthode la plus poussée, elle correspond à une extension temporelle complète du 3D-VAR, et va calculer un incrément fonction du temps afin que la trajectoire de l'analyse soit optimale entre l'ébauche et les observations (cf. Fig. 4.3).

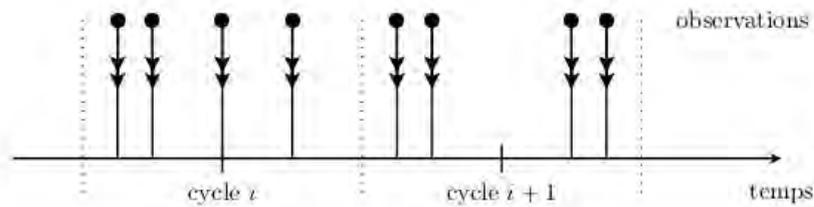


FIGURE 4.2 – Répartition des observations dans la méthode 3D-FGAT d'après Daget (2007).

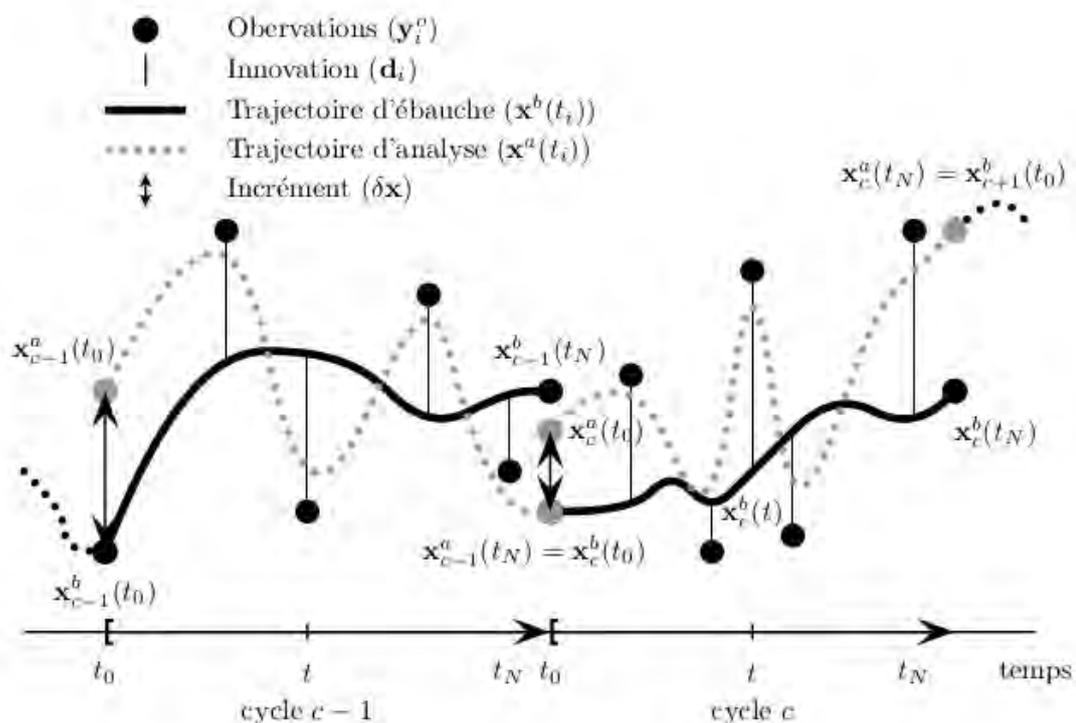


FIGURE 4.3 – Illustration de la méthode du 4D-VAR, d'après Daget (2007). Pour chaque cycle  $c$ , le modèle d'évolution est intégré de  $t_0$  à  $t_N$  à partir de l'état initial d'ébauche  $x_c^b(t_0)$  (courbe noire pleine) et le vecteur d'innovation  $d_i$  est calculé pour les différentes observations  $y_i^o$  avec  $i = 1, \dots, N$  (ligne fine verticale). L'analyse est effectuée à l'instant  $t_0$  en ramenant les innovations à l'instant  $t_0$  à l'aide du modèle adjoint. Après la minimisation, un incrément est obtenu qui est rajouté à l'état de l'ébauche initial pour obtenir l'état analysé  $x_c^a(t_0) = x_c^b(t_0) + \delta x^a$ . Cet état analysé tient compte de la dynamique du modèle de sorte que la trajectoire analysée (courbe grise pointillée) minimise au mieux l'écart aux observations tout au long du cycle d'assimilation (de  $t_0$  à  $t_N$ ). L'état analysé  $x_c^a(t_N)$  est ensuite utilisé comme état initial d'ébauche pour le cycle suivant.

### 4.2.2 MOCAGE-PALM

L'assimilation de données a été réalisée dans ce travail de thèse avec l'outil MOCAGE-PALM. Celui-ci a été développé conjointement à Météo-France, au CERFACS (Centre Européen de Recherche et de Formation Avancée en Calcul Scientifique), et au Laboratoire d'Aérodynamique, avec le soutien du pôle Ether et du programme LEFE (Les Enveloppes Fluides et l'Environnement) à travers les projets ADOMOCA (Assimilation de DONnées dans des MODèles de Chimie Atmosphérique) 1 et 2.

MOCAGE-PALM, comme son nom l'indique, est en réalité une chaîne d'assimilation faisant appel au modèle de chimie transport MOCAGE auquel a été ajouté une sur-couche logiciel PALM (Projet d'Assimilation par Logiciel Multi-méthodes; Buis et al., 2006) permettant d'intégrer les observations dans le modèle suivant un schéma d'assimilation variationnelle. PALM est un coupleur dynamique basé sur un formalisme modulaire décrivant l'algorithme d'assimilation en terme de flux de données entre des objets appelés unités. Les unités peuvent être intégrées dans une chaîne appelée branche. Dans le cas présent, une branche est consacrée au modèle et une deuxième branche est consacrée au traitement des observations. Chaque branche utilise un nombre ajustable de processeurs ce qui permet d'optimiser le fonctionnement de l'application sur une architecture parallèle. Plus de détails sur la méthode d'assimilation implémentée dans MOCAGE-PALM se trouvent dans les articles Massart et al. (2005, 2007).

D'ores et déjà MOCAGE-PALM a permis de réaliser un lot d'études portant sur les processus atmosphériques, notamment l'étude du trou d'ozone dans le vortex polaire et les échanges entre le vortex polaire et les moyennes latitudes (El Amraoui et al., 2008), les échanges entre tropiques et moyennes latitudes (Bencherif et al., 2007), les échanges entre troposphère et stratosphère (Semane et al., 2007), l'étude de l'ozone mesuré par IASI (Massart et al., 2009), l'étude de l'acide nitrique mesuré par IASI (Ricaud et al., 2009), l'étude du CO de MOPITT et de l'ozone de MLS (El Amraoui et al., 2010). Dans ce travail de thèse, MOCAGE-PALM a été utilisé afin d'assimiler les observations simulées d'ozone, mesurées par le satellite géostationnaire MAGEAQ. Comme nous le verrons section 4.3, nous avons également assimilé des observations simulées de stations sol, nous servant à représenter le GOS.

Enfin, dans notre étude on suppose que chaque instrument de mesure (satellites et stations sol) réalise leurs observations au même instant, et ce pour chaque heure. De plus ces observations sont assimilées sur des fenêtres de 1 heure, par conséquent la méthode d'assimilation est équivalente au 3D-VAR.

### 4.2.3 Expériences de systèmes d'observations simulés

Dans ce travail de thèse, nous cherchons à évaluer l'apport du satellite géostationnaire MAGEAQ par rapport au GOS existant. À cette fin, on utilise la méthodologie des expériences de systèmes d'observations simulés (en anglais, Observing System Simulation Experiments -OSSEs-), développée par Atlas (1997). Les OSSEs ont été très largement utilisées jusqu'à présent en météorologie pour évaluer l'apport de nouveaux instruments de mesure dans l'amélioration des prévisions et des analyses météorologiques (e.g., Lahoz et al., 2005; Stoffelen et al., 2006; Masutani et al., 2010). Plus récemment, les OSSEs ont commencé à être employées pour déterminer les capacités des nouveaux instruments pour les prévisions et analyses de chimie atmosphérique (e.g., Edwards et al., 2009; Timmermans et al., 2009; Claeysman et al., 2011a).

La figure 4.4 représente le schéma standard de l'OSSE : à l'aide d'un premier modèle, on modélise un état atmosphérique considéré comme étant la réalité (nommé Nature Run sur la figure 4.4) dans notre OSSE, et nous servant à modéliser les observations synthétiques d'un instrument à partir d'un simulateur. Ces observations sont ensuite assimilées à l'aide d'un second modèle (nommé Control Run sur la figure 4.4). Les résultats de l'assimilation (appelés par la suite analyses) peuvent ainsi être comparés par rapport aux résultats du second modèle sans assimilation (appelés par la suite Free Run), et par rapport au Nature Run, pour déterminer l'apport du système de mesure.

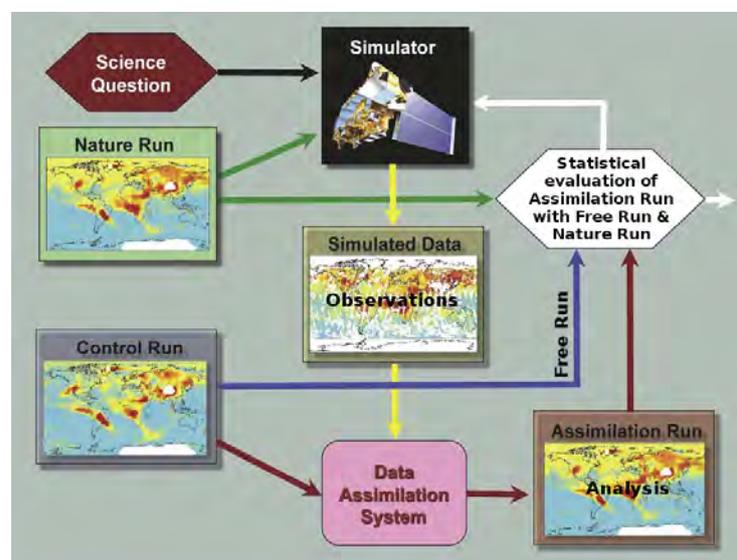


FIGURE 4.4 – Représentation schématique d'une expérience de simulation de systèmes d'observations (OSSE), d'après (Edwards et al., 2009).

Comme les OSSEs sont entièrement issues de la simulation, elles ne sont pas restreintes aux systèmes d'observations existants, on peut également simuler les observations d'un

« futur » système d'observations, et les comparer ainsi à d'autres systèmes d'observations existants ou non.

## 4.3 OSSE : L'apport de GEO TIR+VIS comparé aux stations sol pour la mesure de l'ozone pour la qualité de l'air

Dans cette section, nous allons décrire une OSSE réalisée pour comparer l'apport de l'information provenant du GOS et de MAGEAQ (plus exactement, les observations simulées de la bande TIR et VIS de MAGEAQ : GEO TIR+VIS), puis nous étudierons ces résultats. Ainsi, une première section (4.3.1) examine l'élaboration de l'OSSE, puis une seconde section (4.3.2) caractérise le comportement de l'assimilation de données à partir des valeurs des incréments, une troisième section (4.3.3) étudie les résultats des analyses, enfin une dernière section (4.3.4) analyse les résultats de la prévision.

### 4.3.1 Description de l'OSSE

La figure 4.5 reprend le schéma de constitution d'une OSSE et représente celle réalisée dans notre étude. Comme nous l'avons vu précédemment, réaliser une OSSE implique de disposer d'un Nature Run, qui simule l'état réel de l'atmosphère, et d'un Control Run qui est le modèle dans lequel se fait l'assimilation des observations synthétiques. Pour refléter au mieux l'écart entre la réalité et les modèles actuels, nous avons choisi d'utiliser deux modèles différents représentant l'état de l'art actuel de la modélisation de la qualité de l'air. Ainsi, le modèle MOCAGE (cf. section 2.2.2) nous a servi pour le Control Run, et nous avons utilisé le modèle LOTOS-EUROS pour le Nature Run. L'utilisation de ces deux modèles pour constituer des OSSEs se fait dans le cadre du projet ISOTROP (Impact of Spaceborne Observations on TROPospheric composition analysis and forecast) en collaboration avec le KNMI (L'institut royal de la météorologie des Pays-Bas) et le TNO (organisation pour la recherche scientifique appliquée des Pays-Bas).

LOTOS-EUROS est le produit de l'intégration de deux modèles : LOTOS (LOng Term Ozone Simulation) développé par le TNO et EUROS (EUROpean Operational Smog) développé par le RIVM (l'institut national pour la santé publique et l'environnement des Pays-Bas). LOTOS-EUROS est un modèle de chimie-transport permettant de simuler l'évolution chimique des polluants atmosphériques (gaz et particules) en Europe. Plus d'informations sur ce modèle sont disponibles dans Schaap et al. (2008) et Kranenburg et al. (2013). LOTOS-EUROS a également été utilisé et validé dans divers études comme Manders et al. (2009), Timmermans et al. (2009), Vlemmix et al. (2011), Curier et al. (2012), et Mues et al. (2014).

Dans cette étude, LOTOS-EUROS nous a servi à créer notre Nature Run et les observations synthétiques des différents instruments de mesures que l'on veut prendre en compte dans l'OSSE. En effet, l'OSSE veut comparer l'apport des observations de MAGEAQ par rapport aux observations provenant du GOS pour la prévision de la qualité de l'air. Dans notre étude, nous avons simplifié le GOS en ne prenant en compte que les stations sol, qui représentent tout de même actuellement la source d'information principale sur l'ozone dans la couche limite comparée aux autres moyens d'observations (ballons, satellites défilants,

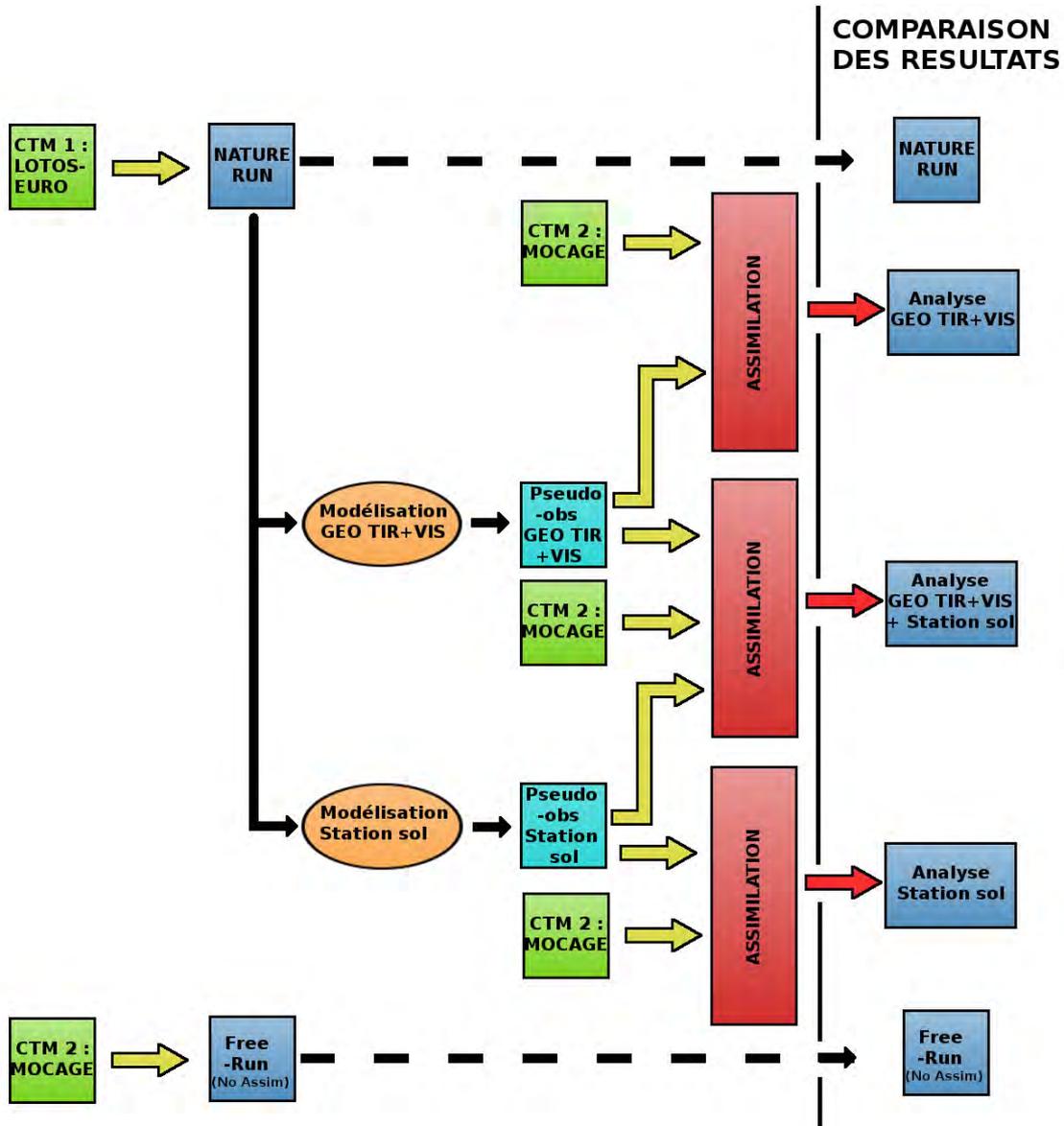


FIGURE 4.5 – Schéma explicatif représentant l’OSSE réalisée dans ce travail de thèse pour comparer l’instrument GEO TIR+VIS, les stations sol, et les deux à la fois.

etc). En ce qui concerne l’instrument MAGEAQ, nous avons repris la chaîne de simulation du chapitre précédent pour créer, à partir du Nature Run LOTOS-EUROS, les observations synthétiques de MAGEAQ, alias GEO TIR+VIS.

La période d’intérêt considérée pour l’OSSE est du 5 au 13 Août 2003. Elle correspond à la période de canicule qui a eu lieu en Europe en 2003 accompagnée d’épisode de pollution due à la photochimie, et en particulier de pollution à l’ozone (Ministère de l’Ecologie et du Développement Durable, 2003). Les conditions anticycloniques et le gradient thermique de

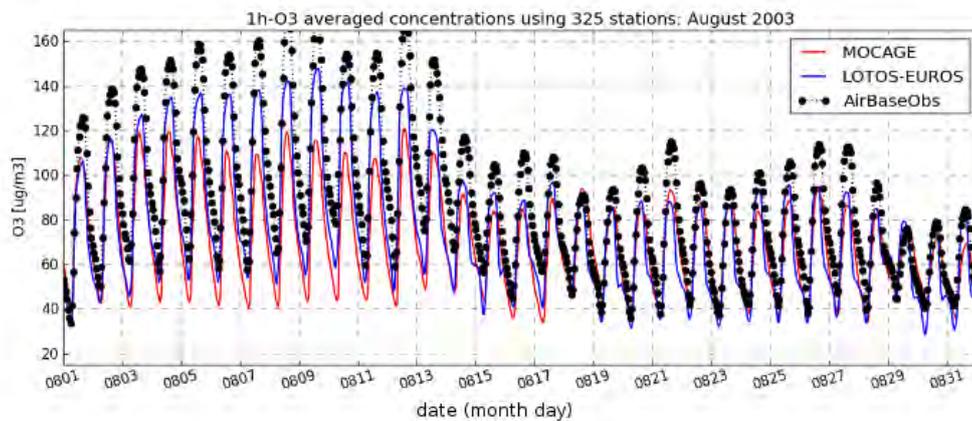


FIGURE 4.6 – Série temporelle de la concentration horaire moyenne de l’ozone lors du mois d’Août 2003, pour le modèle MOCAGE (courbe rouge), le modèle LOTOS-EUROS (courbe bleue), et les données de stations sol du réseau AirBase (courbe noire). D’après Attié et al. (2013).

cette période (Solberg et al., 2008) sont favorables à la mesure par l’instrument satellite. En effet, les conditions anticycloniques donnent des situations peu nuageuses et stables, favorables aux mesures dans le VIS, et le fort gradient thermique permet d’ajouter de la sensibilité à la mesure proche du sol dans le TIR.

De plus, une étude réalisée lors du projet ISOTROP a montré qu’en moyenne l’écart que l’on peut observer entre les modèles MOCAGE et LOTOS-EUROS représente assez bien l’écart que l’on a entre modèle et réalité (la réalité est mesurée via 325 stations sol du réseau AirBase). Ainsi, la figure 4.6 représente les séries temporelles de la concentration d’ozone moyenne en Europe, pendant le mois d’Août 2003, du modèle MOCAGE, du modèle LOTOS-EUROS, et des stations sol du réseau AirBase. Les maximums journaliers de la concentration d’ozone moyenne, particulièrement fort entre le 3 Août et le 13 Août 2003, résultent de la situation météorologique caniculaire de cette période.

Le domaine spatial de notre étude s’étend de  $-3.75^\circ$  à  $25.75^\circ$  de longitude et de  $38.25^\circ$  à  $54.75^\circ$  de latitude, au-dessus de l’Europe. La simulation des mesures des stations sol a été réalisée en considérant la position de chaque station sol du réseau réel actuel. On a ainsi supposé qu’à l’endroit où se trouvait les stations sol on disposait, pour chaque heure, de mesures très fiables (erreur  $< 1$  ppbv), mais localisées essentiellement au niveau du sol. La figure 4.7 représente la couverture spatiale par les stations sol dans l’OSSE. L’instrument GEO TIR+VIS a quant à lui une couverture globale sur tout le domaine d’étude, et de l’information répartie sur la verticale suivant les fonctions de balayage (en anglais, Averaging Kernels -AVKs-) des mesures, mais une erreur de mesure plus importante (généralement une dizaine de ppbv). Nous avons défini une longueur de corrélation horizontale des observations (stations sol et satellites) de  $0.4^\circ$ , et une longueur de corrélation verticale correspondant à la distance entre le niveau d’altitude  $n$  où a lieu l’observation, et le niveau d’altitude  $n + 1$ . Ces valeurs sont tirées du système d’assimilation opérationnelle de la

qualité de l'air MACC (cf. section 3.1), et indiquent simplement que chaque observation va principalement affecter la maille du modèle (latitude, longitude, et altitude) dans laquelle elle se trouve.

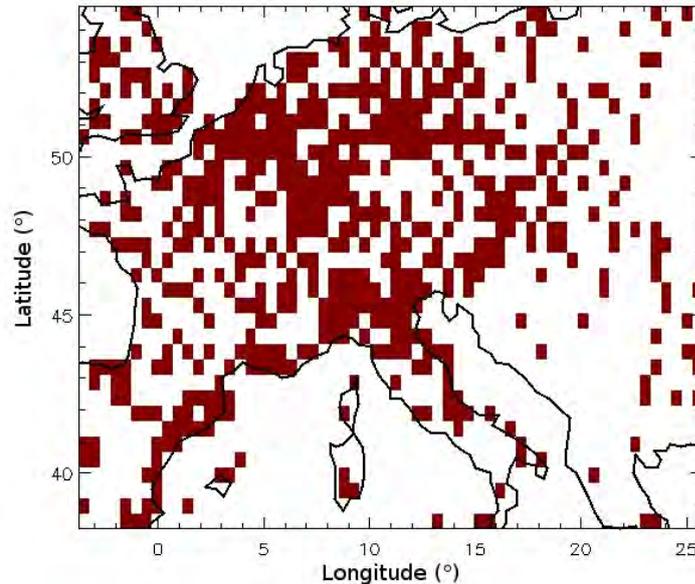


FIGURE 4.7 – Représentation de la couverture spatiale des stations sol incluses dans l'OSSE.

La période d'intérêt de notre OSSE est divisée en deux : du 5 au 10 Août, on suppose que l'on a pour chaque heure les données des stations sol et de GEO TIR+VIS, que l'on assimile dans MOCAGE-PALM. On obtient ainsi pour chaque heure les analyses, et on peut ainsi les comparer entre elles pour déterminer leurs contributions respectives dans l'amélioration de la modélisation de l'ozone. Ensuite, du 10 au 13 Août, on se place dans un cas de prévision, où l'on considère qu'il n'y a plus d'observations disponibles. Les modèles vont ainsi tourner librement à partir du dernier état analysé. Le dernier état analysé a ainsi lieu le 10 Août à 0h. L'intérêt de cette dernière période est de présenter de quelle manière l'assimilation d'un type d'observations par rapport à un autre, ou par rapport au modèle seul, va impacter la prévision de l'ozone pour la qualité de l'air.

Le tableau 4.1 nous donne un récapitulatif du descriptif de l'OSSE réalisée.

TABLE 4.1 – Descriptif de l'OSSE réalisée.

|  |   |
|--|---|
| <b>Champ d'étude :</b>                   |   |
| Longitude                                | -3,75° à 25,75°   |
| Latitude                                 | 38,25° à 54,75°   |
| Résolution spatiale                      | 0,5° x 0,5°   |
| Période totale                           | du 5 au 13 Août 2003  |
| Période des analyses                     | du 5 au 10 Août 2003  |
| Période des prévisions                   | du 10 au 13 Août 2003   |
| Résolution temporelle                    | 1 heure   |
| <b>Système d'assimilation :</b>          |   |
| Nature Run                               | LOTOS-EUROS   |
| Control Run                              | MOCAGE  |
| Longueur de corrélation horizontale      | 0,4°  |
| Longueur de corrélation verticale        | distance entre les niveaux n et n+1 (variable selon MOCAGE)   |
| <b>Systèmes d'observations simulés :</b> |   |
| GEO TIR+VIS                              | Satellite géostationnaire couplant une bande dans le TIR et une bande dans le VIS (configuration MAGEAQ). |
| Stations sol                             | Données de surface uniquement, couverture spatiale donnée par la figure 4.7.                              |
| Stations sol + GEO TIR+VIS               | Couplage des deux systèmes d'observations précédents.   |

### 4.3.2 Caractérisation de l'assimilation et des incréments d'analyse

Afin de caractériser le comportement de l'assimilation de données, nous allons tout d'abord nous intéresser à la différence entre les observations et le modèle avant et après assimilation. La figure 4.8 présente les histogrammes des différences (observations - modèles), avant et après assimilation, obtenus pour l'assimilation des données des stations sol (Fig. 4.8, à gauche), de GEO TIR+VIS (Fig. 4.8, au centre), et des deux à la fois (Fig. 4.8, à droite), sur toute la période d'assimilation (du 5 au 10 Août 2003).

Tout d'abord si on s'intéresse au cas des stations sol, on voit que les valeurs avant l'assimilation forment une courbe gaussienne de largeur à mi-hauteur d'environ 10 ppbv, alors qu'après assimilation, les valeurs forment une courbe gaussienne extrêmement fine autour de 0 ppbv. Ainsi, du fait de la grande précision des mesures des stations sol, ces dernières ont contraint fortement le modèle à tel point qu'aux emplacements des stations sol l'analyse est égale à la valeurs des observations.

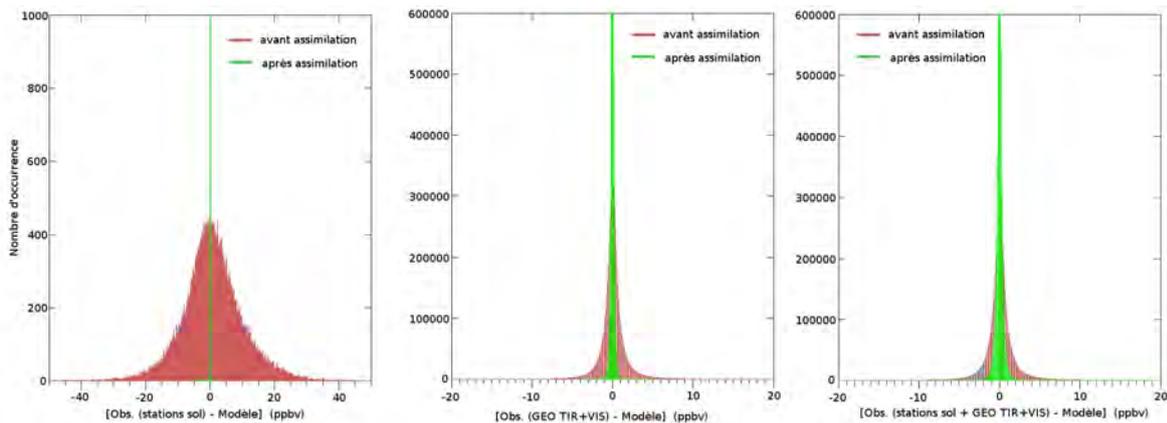


FIGURE 4.8 – Histogramme de la différence entre les observations et le modèle, avant assimilation (en rouge) et après assimilation (en vert). (À gauche) Pour les stations sol, (au centre) pour GEO TIR+VIS, (à droite) pour les deux à la fois, stations sol + GEO TIR+VIS.

De la même manière pour les observations de GEO TIR+VIS, et les observations stations sol + GEO TIR+VIS, les courbes gaussiennes après assimilation sont plus piquées que les courbes gaussiennes avant assimilation, l'analyse converge donc bien vers un état plus proche des observations. Également, la diminution de la largeur des courbes gaussiennes avant et après assimilation, et moins importante que la diminution obtenue avec uniquement les stations sol, cela montre bien que les observations satellites moins précises que les stations sol contraignent moins fortement l'assimilation. Enfin, la dernière information visible sur ces histogrammes est la quantité totale d'observations disponibles, les stations ont donné plusieurs dizaines de milliers d'observations, alors que le satellite GEO TIR+VIS a permis d'en obtenir plusieurs millions, deux ordres de grandeurs supérieurs.

Si maintenant on souhaite caractériser l'impact des observations dans l'analyse, on peut regarder la valeur des incréments  $\delta x$  (cf. section 4.2.1), et plus particulièrement les profils des incréments moyennés sur le domaine spatial (cf. Fig. 4.9). En effet, la Figure 4.9 nous indique ainsi directement à quelles altitudes les observations vont être capables d'influencer l'assimilation. On se rend bien compte, sur la figure 4.9a, que les observations des stations sol permettent d'influencer l'assimilation entre 0 et 1 km d'altitude, tandis qu'au-dessus de 1 km, la contribution des stations sol devient négligeable. Au contraire, la figure 4.9b nous montre que les observations de GEO TIR+VIS permettent d'avoir de la sensibilité sur toute la colonne, même si la valeur des incréments est globalement plus faible, ce résultat peut-être ramené à l'étude de sensibilité de GEO TIR+VIS dans la section 3.2. Enfin, l'assimilation des deux types d'observations à la fois, stations sol + GEO TIR+VIS, figure 4.9c, permet d'obtenir des incréments qui témoignent à la fois de la sensibilité à la surface des stations sol, et de la sensibilité sur la colonne de GEO TIR+VIS. On se rend compte également qu'il existe une synergie entre ces deux moyens d'observations dans la couche entre 0 et 1 km d'altitude, puisque ces incréments ne sont pas uniquement égaux à la somme des incréments des deux moyens de mesures pris séparément.

Ces résultats nous ont permis d'attester du bon comportement de la chaîne d'assimilation, en nous montrant que l'état analysé se rapprochait bien de la valeur des observations, et ce d'autant plus que la précision des observations est bonne. Et ils nous ont également permis de repérer à quels niveaux l'assimilation allait être impactée par les observations, et confirmer que chaque type d'observation nous permettait d'être sensible dans la couche entre 0 et 1 km. Maintenant nous allons donc nous intéresser aux résultats des analyses, voir dans quelle mesure l'assimilation des différents types d'observations se rapproche du Nature Run.

### 4.3.3 Résultats de l'assimilation de données : Évaluation statistique des analyses de l'ozone

Dans cette section nous allons nous concentrer sur l'étude de la corrélation, du biais, et de l'erreur quadratique moyenne des analyses par rapport au Nature Run, pour les valeurs à la surface (Fig. 4.10), et pour la colonne 0–1 km (Fig. 4.11). Ces valeurs statistiques ont été obtenues en moyennant sur la période du 5 au 10 Août. Par la suite, lorsque nous nous référerons à l'analyse obtenue par l'assimilation des données de GEO TIR+VIS, nous l'abrègerons en ASSIM GEO TIR+VIS. De la même façon, lorsque nous nous référerons à l'analyse obtenue par l'assimilation des données des stations sol, nous l'abrègerons en ASSIM stations sol. Enfin, lorsque nous nous référerons à l'analyse obtenue par l'assimilation des données des stations sol et des données de GEO TIR+VIS, nous l'abrègerons en ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS.

#### 4.3.3.1 Évaluation statistique des analyses de l'ozone à la surface

Si on s'intéresse tout d'abord aux valeurs de la corrélation à la surface (Fig. 4.10, première colonne), on peut voir que le modèle Free Run est corrélé au Nature Run avec des

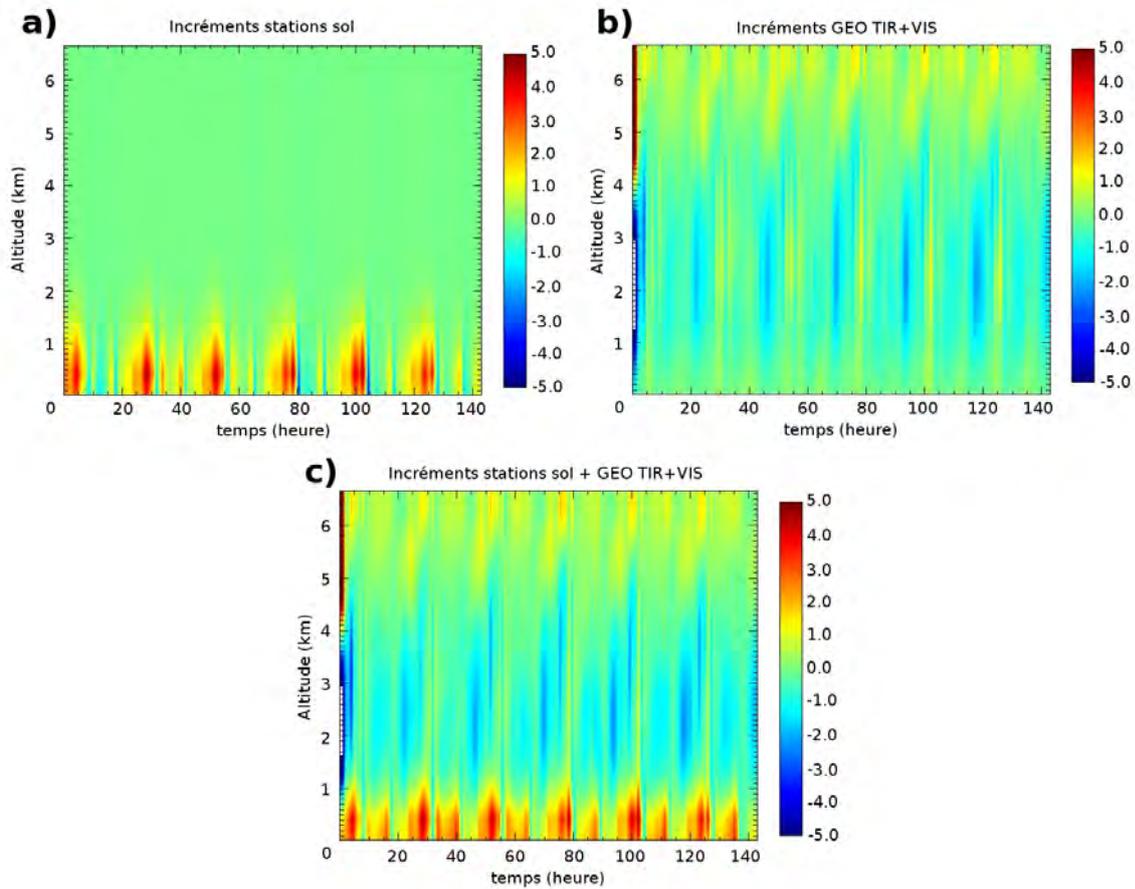


FIGURE 4.9 – Profils, entre 0 et 7 km d’altitude, des incréments de l’assimilation, moyennés sur le domaine spatial, en fonction du temps. a) Incréments pour les stations sol, b) incréments pour GEO TIR+VIS, c) incréments pour les deux à la fois, stations sol + GEO TIR+VIS. Les barres de couleurs donnent les valeurs de ces incréments en ppbv.

valeurs comprises entre 0.5 et 0.8 sur les surfaces continentales, hormis au-dessus des Alpes et des Pyrénées où la corrélation chute fortement avec des valeurs comprises entre 0.0 et 0.4. Au-dessus des surfaces maritimes la corrélation est très faible, voir même anti-corrélée.

La corrélation entre ASSIM GEO TIR+VIS et le Nature Run nous donne un résultat très similaire bien que les valeurs soient légèrement supérieures, l’apport de ASSIM GEO TIR+VIS à la surface et donc relativement modeste (gain inférieur à 0.1 sur la corrélation).

Si l’on s’intéresse à la corrélation entre ASSIM stations sol et le Nature Run, on obtient un champ complètement différent, où les zones de très fortes corrélations (entre 0.9 et 1.0) se trouvent dans le Nord-Est du domaine. On voit que par rapport à la corrélation entre le Free Run et le Nature Run on a gagné en corrélation au-dessus des surfaces maritimes et des Alpes et Pyrénées, cependant on notera une légère diminution au-dessus de la France. On peut constater également que le champ de corrélation entre ASSIM stations sol et le Nature Run est beaucoup moins homogène que le champ de corrélation entre le Free Run

et le Nature Run. Cet effet hétérogène est dû à la contribution locale des stations sol.

Enfin, le dernier champ de corrélation entre ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS et le Nature Run, nous donne un résultat très similaire au champ de corrélation entre ASSIM stations sol et le Nature Run. Cela nous montre que les stations sol jouent un rôle prépondérant dans les analyses à la surface.

Maintenant, si on s'intéresse aux valeurs du biais à la surface (Fig. 4.10, deuxième colonne), on s'aperçoit que le biais [Nature Run - modèle Free Run] est négatif sur l'Est du domaine (environ -20 % à -40 % de biais) et sur la Manche (-40 % à -50 % de biais), alors que pour tout le reste du champ le biais est positif avec des valeurs maximales (environ 40%) autour de l'Italie et du Nord de la France.

De la même manière, le biais à la surface [Nature Run - (ASSIM GEO TIR+VIS)] présente des motifs similaires, cependant on peut constater une nette disparition des valeurs négatives du biais sur l'Est du domaine et une réduction du biais au-dessus des Alpes et de l'Italie (valeur du biais entre 20 % et 40 %). ASSIM GEO TIR+VIS est ici loin d'être insignifiante, le biais dans le champ devient ainsi très majoritairement positif même si les valeurs se sont rapprochées du biais nul.

En ce qui concerne le biais à la surface [Nature Run - ASSIM stations sol], on constate que les valeurs se sont nettement rapprochées d'un biais nul, on retrouve cependant les fortes valeurs négatives (-40 %) au-dessus de la Manche, et les fortes valeurs positives (40 %) au Nord de l'Italie et sur la Sardaigne qui étaient présentes dans le biais à la surface [Nature Run - Free Run].

Enfin le biais à la surface [Nature Run - (ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS)] nous donne un champ dont les motifs sont très proches du champ de biais [Nature Run - ASSIM stations sol] mais les valeurs sont globalement encore plus proches du biais nul. Ainsi à nouveau, même si l'analyse semble contrainte majoritairement par les données des stations sol, l'apport des données de GEO TIR+VIS est significatif puisqu'il permet d'atténuer le biais d'une dizaine de pour-cent.

Finalement, si l'on s'intéresse aux valeurs de l'erreur quadratique moyenne (en anglais, Root Mean Square -RMS-) à la surface (Fig. 4.10, troisième colonne), on retrouve des résultats similaires à ceux de l'étude des corrélations. À savoir que le RMS entre le Nature et le Free Run et le RMS entre le Nature Run et ASSIM GEO TIR+VIS sont très proches et présentent des motifs similaires, avec un maximum du RMS dans la mer du Nord, le Nord de la France, les Alpes et la Sardaigne, les valeurs étant comprises entre 40 et 50 % dans ces régions. De plus on constate également que le RMS entre le Nature Run et ASSIM GEO TIR+VIS est en moyenne légèrement plus grand, d'environ 5 %, que le RMS entre le Nature Run et le Free Run.

Le même genre de similitudes peut être observé entre le RMS du Nature Run et de ASSIM stations sol, et le RMS du Nature Run et de ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS. Les valeurs maximales du RMS se situent au Nord-Ouest de la France, au-dessus des Alpes et du Nord de l'Italie, et en Sardaigne, les valeurs étant comprises entre 40 et 50 % dans ces régions, alors que partout ailleurs le RMS oscille entre 0 et 20 %.

L'apport des données de GEO TIR+VIS pour le RMS à la surface semble négligeable, alors qu'une fois de plus les données des stations sol jouent un rôle prépondérant dans l'amélioration de l'analyse par rapport au Free Run. Ces premiers résultats montrent qu'à

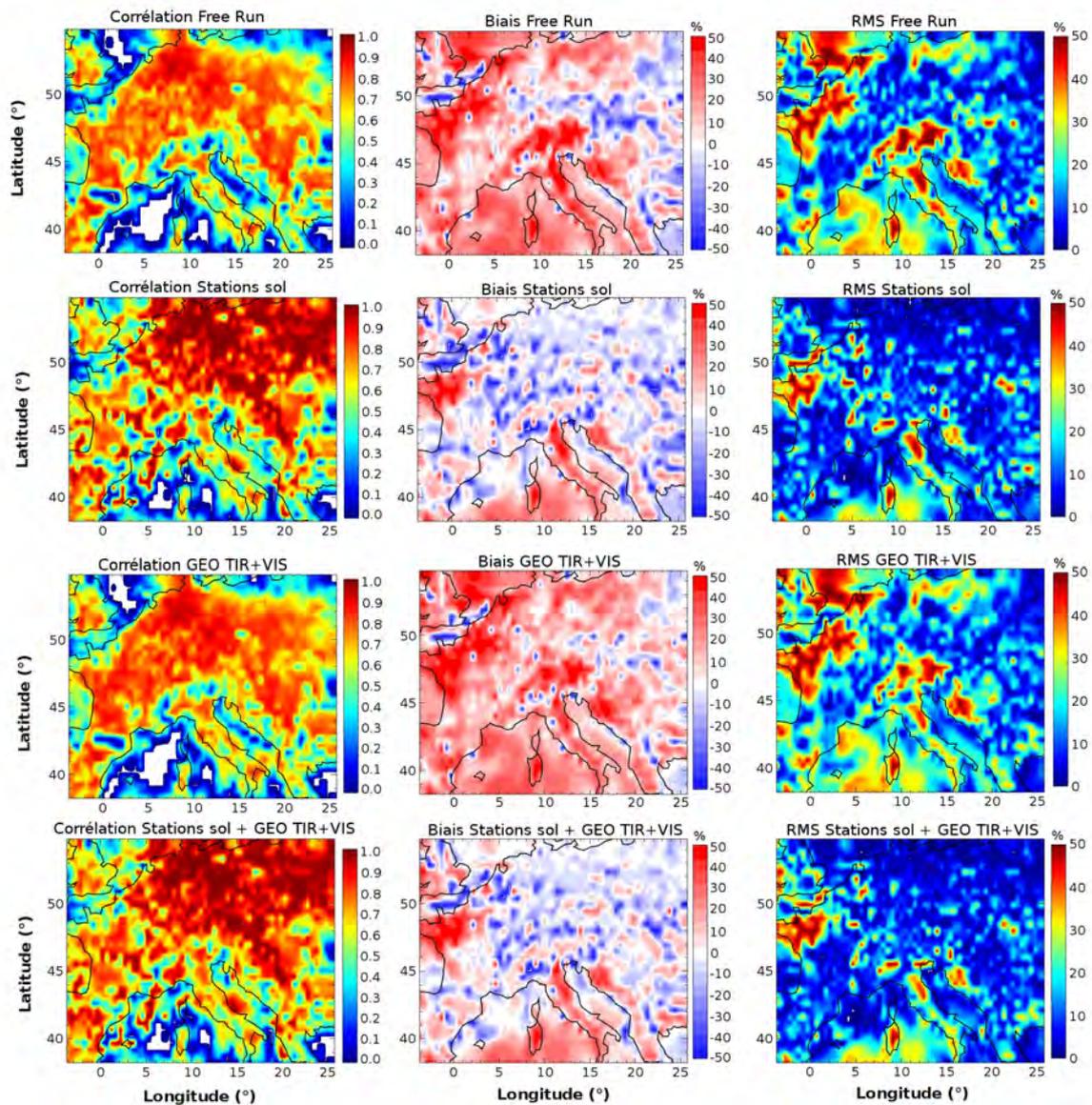


FIGURE 4.10 – À partir des valeurs à la surface : cartes de la corrélation (première colonne), du biais en % (seconde colonne), et de l'erreur quadratique moyenne en % (RMS, troisième colonne), entre le Nature Run et le Free Run (première ligne), entre le Nature Run et ASSIM stations sol (seconde ligne), entre le Nature Run et ASSIM GEO TIR+VIS (troisième ligne), et le Nature Run et ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS (quatrième ligne). Ces valeurs statistiques ont été obtenues en moyennant sur la période du 5 au 10 Août. Le biais et l'erreur quadratique moyenne (RMS) sont exprimés en pourcentage. Les valeurs pour chaque paramètre sont représentées par les barres de couleur.

la surface, ASSIM stations sol l'emporte principalement sur ASSIM GEO TIR+VIS, mais que l'apport simultané des données stations sol et des données GEO TIR+VIS permet

de conserver d'aussi bons résultats que ASSIM stations sol, voir même de les améliorer, notamment en ce qui concerne le biais.

#### 4.3.3.2 Évaluation statistique des analyses de l'ozone dans la couche 0–1 km d'altitude

Regardons maintenant les résultats de la corrélation, du biais et de l'erreur quadratique moyenne pour la colonne d'ozone 0–1 km. Si l'on s'intéresse tout d'abord aux valeurs de la corrélation (Fig. 4.11, première colonne), on voit que la corrélation entre le modèle Free Run et le Nature Run varie entre 0.5 et 0.7 au-dessus des surfaces continentales, alors qu'elle est généralement inférieure à 0.2 au-dessus des surfaces maritimes.

Cette fois-ci, c'est la corrélation entre ASSIM stations sol et le Nature Run qui présente des motifs similaires à la corrélation entre le modèle Free Run et le Nature Run, avec des valeurs de corrélation légèrement plus élevées au Nord-Est du domaine, et légèrement plus faible sur la France et la zone autour des Alpes. On a ainsi guère d'amélioration entre la corrélation de ASSIM stations sol et le Nature Run, par rapport à la corrélation entre le modèle Free Run et le Nature Run, lorsque l'on s'intéresse à la colonne 0–1 km.

Par contre, la corrélation entre ASSIM GEO TIR+VIS et le Nature Run nous donne une amélioration nette du champ dans sa globalité par rapport à la corrélation entre le modèle Free Run et le Nature Run, avec une corrélation variant entre 0.6 et 0.9 au-dessus des surfaces continentales, et variant entre 0.2 et 0.4 au-dessus des surfaces maritimes.

Enfin, si l'on s'intéresse à la corrélation entre ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS et le Nature Run, on retrouve un champ dont la corrélation est meilleure par rapport à celle obtenue entre le Free Run et le Nature Run, même s'il n'égale pas le champ corrélé obtenu avec ASSIM GEO TIR+VIS. On retrouve un mélange des motifs du champ de corrélation de ASSIM GEO TIR+VIS et du champ de corrélation de ASSIM stations sol, avec une corrélation améliorée au Nord-Est du domaine, mais plus faible au-dessus de la France et de la mer Méditerranée.

Ces résultats sont cette fois-ci en faveur de ASSIM GEO TIR+VIS en ce qui concerne la colonne 0–1 km, alors que les données des stations sol ne sont pas capables d'apporter d'amélioration notable.

Maintenant, si on s'intéresse aux valeurs du biais correspondant à la colonne 0–1 km (Fig. 4.11, deuxième colonne), on constate que le biais [Nature Run - modèle Free Run] est globalement négatif sur le domaine (variant entre -10 % et -40 %), sauf autour des Alpes, de l'Italie et de la mer Méditerranée où le biais est positif.

En ce qui concerne le biais [Nature Run - ASSIM stations sol] il est essentiellement négatif avec des valeurs variant en moyenne entre -20 % et -50 %. Pour le biais [Nature Run - (ASSIM GEO TIR+VIS)], ce dernier présente des motifs similaires au champ de biais [Nature Run - modèle Free Run] mais les valeurs sont considérablement améliorées puisqu'elles varient en moyenne entre -10 % et 10 %. Enfin le champ de biais [Nature Run - (ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS)] est un mélange entre les champs de biais [Nature Run - ASSIM stations sol] et [Nature Run - (ASSIM GEO TIR+VIS)], avec globalement un biais négatif plus prononcé que dans le champ [Nature Run - (ASSIM GEO TIR+VIS)].

Ici aussi, on constate que les résultats les plus prometteurs sont obtenus avec ASSIM

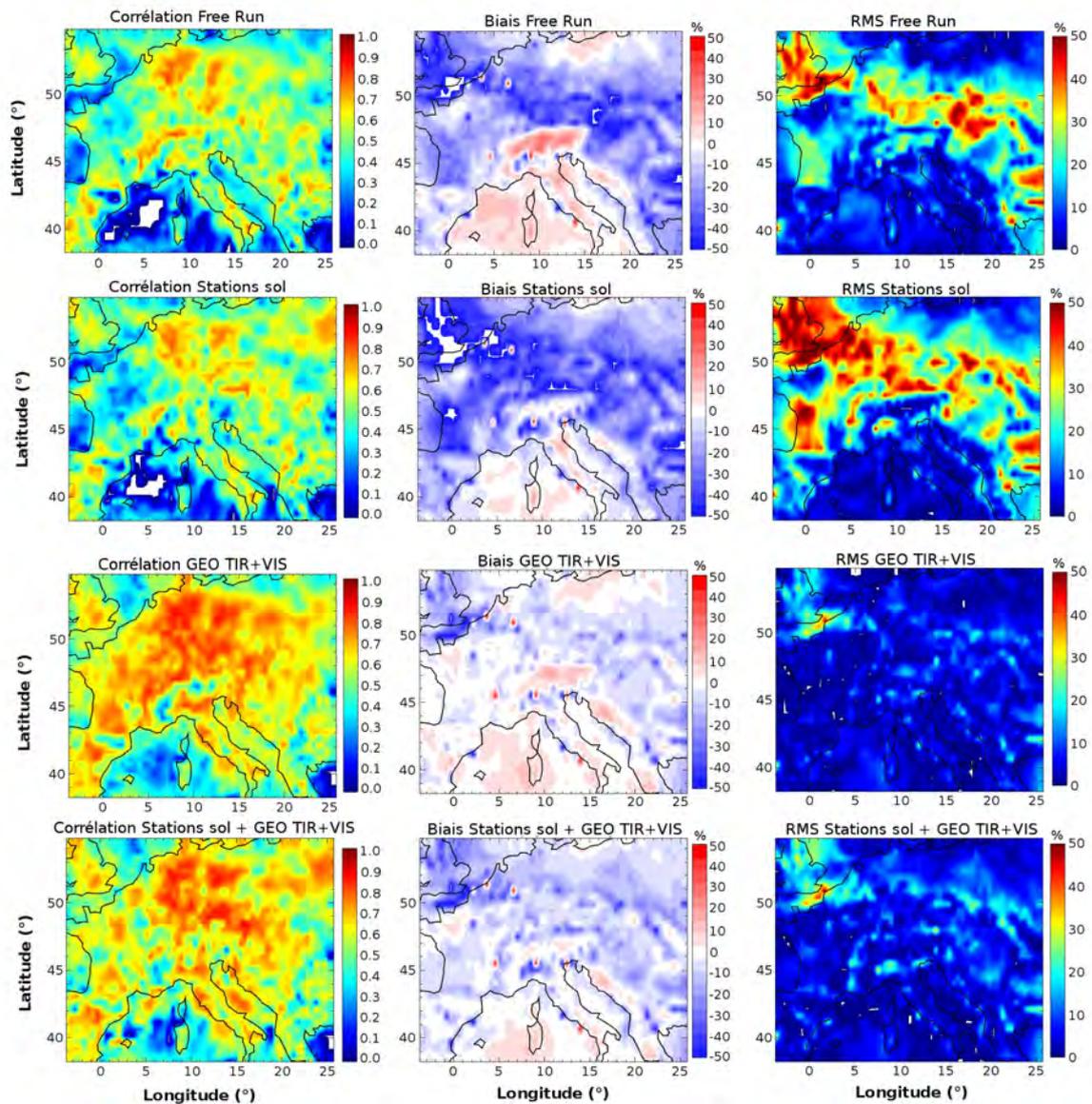


FIGURE 4.11 – À partir des valeurs de la colonne 0–1 km : cartes de la corrélation (première colonne), du biais (seconde colonne), et de l'erreur quadratique moyenne (RMS, troisième colonne), entre le Nature Run et le Free Run (première ligne), entre le Nature Run et ASSIM stations sol (seconde ligne), entre le Nature Run et ASSIM GEO TIR+VIS (troisième ligne), et le Nature Run et ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS (quatrième ligne). Ces valeurs statistiques ont été obtenues en moyennant sur la période du 5 au 10 Août. Le biais et l'erreur quadratique moyenne (RMS) sont exprimés en pourcentage. Les valeurs pour chaque paramètre sont représentées par les barres de couleur.

GEO TIR+VIS qui diminue les valeurs du biais considérablement, alors que les données des stations sol vont introduire dans notre cas un biais négatif qui va apparaître également,

mais de manière moindre, dans ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS.

Finalement, si on s'intéresse aux valeurs de l'erreur quadratique moyenne de la colonne 0–1 km (Fig. 4.11, troisième colonne), on obtient un RMS entre le Nature Run et le Free Run avec des valeurs maximales (entre 30 % et 50 %) sur une bande partant du Nord-Ouest du domaine jusqu'au Centre-Est du domaine, avec également une zone sur l'Ouest de la France.

Le champ de RMS entre le Nature Run et ASSIM stations sol donne des résultats similaires au champ de RMS entre le Nature Run et le Free Run, avec des valeurs maximales supérieures. Pour le champ de RMS entre le Nature Run et ASSIM GEO TIR+VIS on obtient cette fois-ci globalement une valeur de RMS oscillant entre 0 % et 10 %, hormis pour une zone au Nord de la France et l'Angleterre où le RMS oscille entre 20 % et 40 %. Enfin le champ de RMS entre le Nature Run et ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS est très similaire au champ de RMS entre le Nature Run et ASSIM GEO TIR+VIS, avec juste des valeurs légèrement plus élevées.

Au final, la corrélation, le biais, et le RMS de la colonne 0–1 km indiquent tous que ASSIM GEO TIR+VIS produit des résultats plus proches du Nature Run, suivi de près par ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS. Au contraire ASSIM stations sol dégrade les performances du modèle Free Run sur la colonne 0–1 km.

#### 4.3.3.3 Évaluation statistique des profils des analyses moyennées sur le domaine

Pour finir cette étude sur les analyses, les derniers résultats à observer sont les profils moyens de la corrélation, du biais et de l'écart quadratique moyen (cf. Fig. 4.12). En effet, en étudiant la figure 4.12, les profils de corrélation montrent que le Free Run à la surface a une corrélation de presque 0.6 qui chute à 0.5 sur les premiers 300 mètres d'altitudes avant de remonter pour atteindre à nouveau 0.6 au-dessus de 1 km. Ce comportement révèle l'existence d'une différence dans la modélisation de la couche 0–1 km entre le modèle Free Run et le Nature Run.

Alors que ASSIM stations sol permet d'améliorer sensiblement la corrélation à la surface puisqu'elle atteint 0.66, on constate à nouveau une baisse importante de la corrélation sur les 300 premiers mètres d'altitudes qui atteint 0.48, puis remonte à un peu plus de 0.6 au-dessus de 1 km. Ainsi, les stations sol améliorent évidemment la surface, mais il existe des différences entre le Nature Run et le Control Run (c'est à dire entre les deux modèles, MOCAGE et LOTOS-EUROS) dans les processus ayant lieu entre 0–1 km. Ces différences vont détruire dans notre cas d'étude tout le bénéfice des stations sol dans la couche juste au dessus de la surface, entre 0 et 1 km d'altitude. En effet, les stations sol n'étant sensible qu'à la surface, elles ne permettent pas de corriger les valeurs de l'ozone sur les couches juste supérieures, l'incrément est simplement propagé par le modèle.

Au contraire, le profil de corrélation de ASSIM GEO TIR+VIS démarre à la surface à 0.64 et va augmenter jusqu'à 0.85 au-dessus de 1 km. En effet, l'instrument GEO TIR+VIS étant sensible entre 0–1 km, et même au delà, est capable de rattraper les écarts entre les deux modèles dans la couche 0–1 km.

Finalement, ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS nous montre qu'à la surface l'apport

des données de GEO TIR+VIS par rapport aux données des stations sol est bien quantifiable puisque la corrélation atteint 0.69, mais l'apport principal des données de GEO TIR+VIS se fait pour les couches supérieures où l'on atteint une corrélation de 0.83 au-dessus de 1 km d'altitude.

De la même manière, en regardant les profils du biais et du RMS, on constate qu'à la surface alors que le modèle Free Run et ASSIM GEO TIR+VIS présentent un biais d'environ 20 % et un RMS d'environ 20 %, ASSIM stations sol va quant à elle avoir un biais quasi-nul et un RMS d'environ 5 %. La situation s'inverse dès que l'on s'élève, à 300 m d'altitude, cette fois-ci ASSIM stations sol va avoir un biais et un RMS important (-35 % et 30 % respectivement), le modèle Free Run de la même manière va avoir un biais de -25 % et un RMS de 20 %, tandis que ASSIM GEO TIR+VIS va réduire le biais à -15 % et le RMS à 12 %. Au delà de 300 m d'altitude, ASSIM stations sol va rejoindre les résultats du modèle Free Run avec un biais allant de -20 % à 20 %, et un RMS qui va diminuer de 20 % jusqu'à 5 % à 1500 m d'altitude, et remonter à 17 % à 5 km d'altitude. ASSIM GEO TIR+VIS va elle avoir un biais qui va rester assez faible variant entre -10 % et 10 %, le RMS va également diminuer et rester inférieur à 5 %.

Enfin, pour ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS, on obtient un biais à la surface qui comme les stations sol est quasi-nul, pour un RMS d'environ 5 %, et en montant jusqu'à 300 m d'altitude et au delà, le biais et le RMS vont se rapprocher des résultats de ASSIM GEO TIR+VIS, en donnant un biais et un RMS à 300 m de respectivement -20 % et 17 %, alors qu'aux altitudes supérieures le biais varie entre -10 % et 10 %, et le RMS reste inférieur à 5 %.

Au final, les résultats des analyses nous montrent que les données des stations sol bien que performantes pour améliorer les valeurs de l'ozone à la surface ne suffisent pas à elles seules à améliorer le modèle aux altitudes plus élevées (notamment la couche 0–1 km), alors que les données du satellite GEO TIR+VIS permettent d'obtenir une amélioration significative des valeurs de l'ozone dans la colonne 0–1 km.

Enfin, c'est le couplage de ces deux types d'observations qui va permettre d'obtenir le meilleur compromis entre les valeurs de l'ozone à la surface et sur la colonne 0–1 km. C'est en obtenant une analyse la plus proche possible du Nature Run que l'on peut espérer pouvoir produire par la suite les prévisions les plus précises. Dans la suite nous nous intéresserons à l'évaluation des prévisions obtenues à partir de ces analyses.

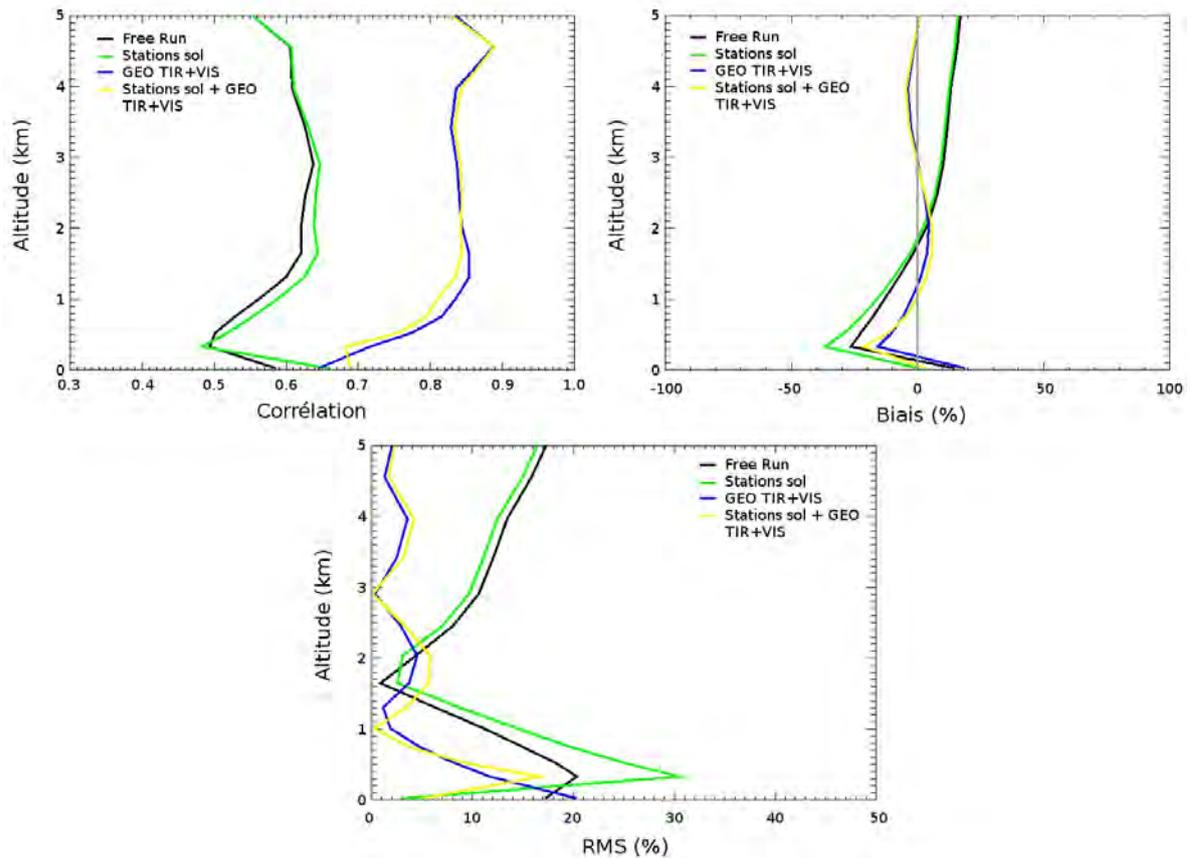


FIGURE 4.12 – Profils moyens de la corrélation (en haut, à gauche), du biais (en haut, à droite), et de l'erreur quadratique moyenne (RMS, en bas, au centre), entre le Nature Run et le Free Run (en noir), entre le Nature Run et ASSIM stations sol (en vert), entre le Nature Run et ASSIM GEO TIR+VIS (en bleu), et le Nature Run et ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS (en jaune).

### 4.3.4 Résultats de la prévision de l'ozone de surface et dans la couche 0–1 km

Pour étudier le comportement des résultats de la prévision, nous allons nous intéresser à la corrélation et à l'erreur quadratique moyenne (RMS), entre l'ozone prédit par les analyses et le Nature Run, en fonction du temps (cf. Fig. 4.13).

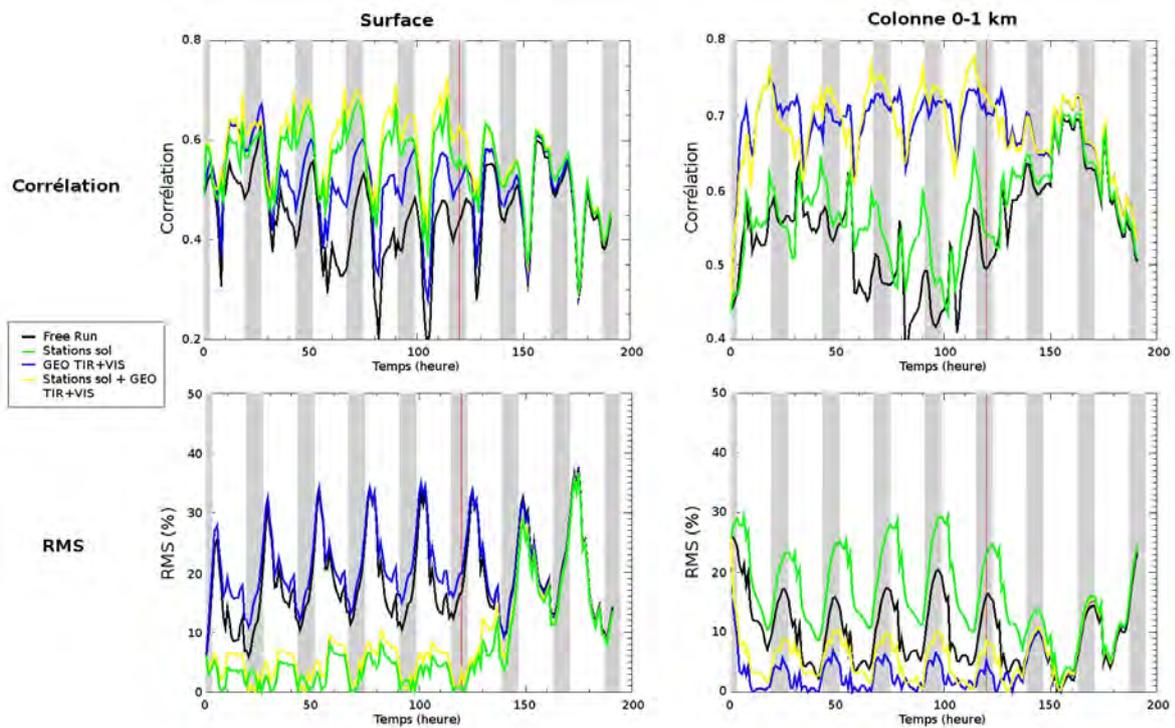


FIGURE 4.13 – Évolution temporelle de la corrélation et de l'erreur quadratique moyenne (RMS), pour la période allant de 5 au 12 Août 2003. La première colonne présente les résultats obtenus avec les valeurs à la surface, et la deuxième colonne présente les résultats obtenus avec la colonne 0-1 km. La première ligne donne les courbes de corrélation, la deuxième ligne donne les courbes de RMS. Les courbes noires représentent les résultats obtenus avec le modèle Free Run, les courbes vertes représentent les résultats obtenus avec ASSIM stations sol, les courbes bleues représentent les résultats obtenus avec ASSIM GEO TIR+VIS, et les courbes en jaune représentent les résultats obtenus avec ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS. Les zones grisées indiquent les périodes où il fait nuit. Les lignes verticales rouges représentent la date du 10 Août 2003 à 0h, date à laquelle démarre la prévision.

La figure 4.13 nous présente l'évolution temporelle de la corrélation et du RMS, à la surface et pour la colonne 0-1 km, entre les analyses et le Nature Run pendant la période du 5 au 10 Août, suivi de la prévision du 10 au 13 Août. Si l'on s'intéresse tout d'abord à la

corrélation à la surface, on peut voir que la corrélation entre le Free Run et le Nature Run varie entre des valeurs allant de 0.2 à 0.6, cependant on distingue clairement un motif dans la corrélation. En effet, pour chaque matin entre 9h et 10h on obtient un « pic négatif » de la corrélation. Ce motif est également présent dans les corrélations entre les analyses et le Nature Run. À nouveau, ce comportement de la corrélation peut s'expliquer par l'écart qui existe entre les deux modèles (MOCAGE et LOTOS-EUROS), où les cycles diurnes de l'ozone sont déphasés (cf. Fig. 4.14), en particulier lors de la formation de l'ozone, provoquant ainsi au moment de l'élévation des valeurs d'ozone un écart de corrélation entraînant les « pics négatifs ».

Si l'on compare l'apport des analyses par rapport au Free Run, on voit que ASSIM GEO TIR+VIS est capable d'apporter déjà un gain sensible à la corrélation (on gagne environ 0.1 en corrélation comparé au Free Run). ASSIM stations sol fait encore mieux puisque l'on gagne environ 0.2 en corrélation, et finalement ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS est encore légèrement meilleure que ASSIM stations sol.

Lorsque l'on passe dans la zone de la prévision, on constate que ces gains sur la corrélation chutent rapidement, ainsi au troisième jour de la prévision les corrélations des modèles issues des analyses sont égales à la corrélation du modèle Free Run. Cependant on observe tout de même lors du premier jour de prévision un gain relativement important (environ 0.1 en corrélation) grâce à ASSIM stations sol, ou ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS.

Si l'on s'intéresse aux courbes de RMS à la surface, on constate que ce dernier pour le modèle Free Run oscille entre 10 % et 30 %, et que ASSIM GEO TIR+VIS, n'est pas capable d'améliorer le RMS, voir au contraire va l'augmenter légèrement. En revanche ASSIM stations sol, ou ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS, va permettre de diminuer considérablement le RMS qui va alors osciller entre 0 % et 10 %.

Au niveau de la prévision, à nouveau le gain obtenu grâce à ASSIM stations sol (ou ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS) arrive à rester présent jusqu'à la fin du premier jour de prévision, puis au delà on retrouve le RMS du Free Run.

Si maintenant, on s'intéresse aux résultats pour la colonne 0-1 km, on constate que la corrélation de ASSIM GEO TIR+VIS (ou ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS) donne le meilleur gain de corrélation (environ 0.15 en corrélation), alors que ASSIM stations sol n'apporte qu'une contribution relativement faible (environ 0.05 en corrélation). Lors de la période de prévision, le gain s'estompe à nouveau rapidement, même si celui de ASSIM GEO TIR+VIS (ou ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS) apparaît jusqu'à l'issue du deuxième jour de prévision.

Enfin, les courbes de RMS pour la colonne 0-1 km montrent que le RMS du Free Run oscille entre 5 % et 20 %, alors que cette fois-ci, ASSIM stations sol dégrade le RMS puisqu'il oscille entre 10 % et 30 %, ASSIM GEO TIR+VIS (ou ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS) réduit sensiblement le RMS, qui va osciller entre 0 % et 5 % pour ASSIM GEO TIR+VIS, et entre 0 % et 10 % pour ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS.

La période de prévision va à nouveau détruire rapidement ce gain sur le RMS puisqu'à l'issue du premier jour de prévision, le RMS de ASSIM GEO TIR+VIS (ou ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS) devient égal au RMS du Free Run.

Le tableau 4.2 synthétise ces résultats en donnant, toujours par rapport au Nature

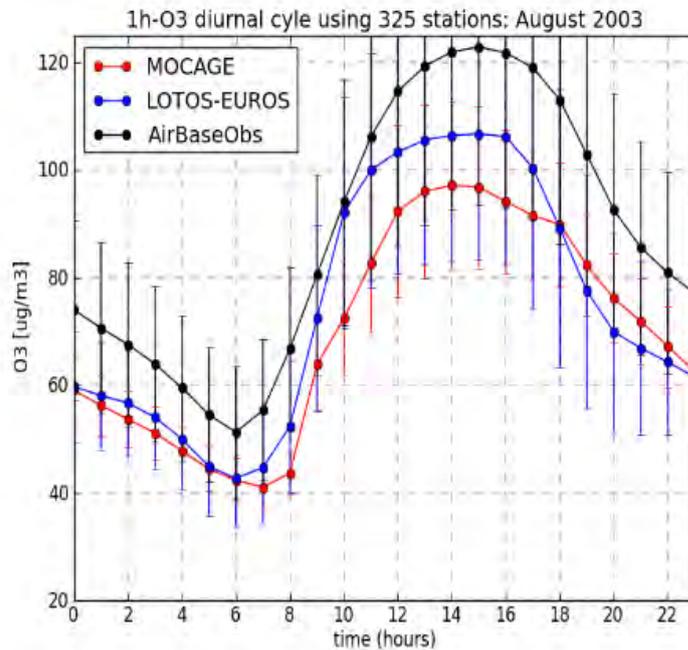


FIGURE 4.14 – Cycle diurne moyen de l’ozone de surface en Août 2003 pour le modèle MOCAGE (courbe rouge), pour le modèle LOTOS-EUROS (courbe bleue), et pour le réseau de stations sol AirBase (courbe noire). D’après Attié et al. (2013).

Run, les extrema de la corrélation et du RMS obtenus avec le Free Run et avec les analyses (ASSIM GEO TIR+VIS, ASSIM stations sol et ASSIM GEO Stations sol + GEO TIR+VIS) entre le 6 et 10 Août 2003. Et en donnant la corrélation et le RMS obtenus pour les prévisions après analyses pour les dates du 10 Août à 0h (défini comme h+1), 10 Août à 6h (défini comme h+7), 10 Août à 12h (défini comme h+13), 11 Août à 0h (défini comme h+25) et le 12 Août à 0h (défini comme h+49). Lorsqu’un système d’observations apporte une amélioration notable, c’est à dire que la corrélation du système d’observations est supérieure de 0.05 à la corrélation du Free Run, ou encore lorsque le RMS du système d’observations est inférieur de 5 % au RMS du Free Run, alors la valeur apparaît en gras dans le tableau.

Finalement, ces résultats nous montrent qu’avec l’écart actuel entre les deux modèles (MOCAGE et LOTOS-EUROS) dans les processus régissant la dynamique de l’ozone, la limite de prévisibilité est de 1 jour. C’est à dire, qu’à partir des analyses, les prévisions sont sensiblement améliorées, comparées aux prévisions du Free Run, lors du premier jour de prévision.

Également, lors du premier jour de prévision, seules les analyses ASSIM stations sol + GEO TIR+VIS sont capables de fournir des prévisions dont la corrélation et le RMS sont améliorés à la fois à la surface et dans la colonne 0–1 km.

TABLE 4.2 – Tableau résumant les extrema de la corrélation et du RMS obtenus avec le Free Run et les analyses (ASSIM GEO TIR+VIS, ASSIM stations sol et ASSIM Stations sol + GEO TIR+VIS) entre le 6 et 10 Août 2003, et donnant les valeurs de la corrélation et du RMS pour les prévisions à h+1, h+7, h+13, h+25, h+49. Les valeurs en gras représentent une amélioration notable apportée par le système d'observations, c'est à dire lorsque la corrélation du système d'observations est supérieure de 0.05 à la corrélation du Free Run, ou encore lorsque le RMS du système d'observations est inférieur de 5 % au RMS du Free Run.

|                              |                               | Extrema de l'analyse |                    | Prévision h+1 |             | Prévision h+6 |             |
|------------------------------|-------------------------------|----------------------|--------------------|---------------|-------------|---------------|-------------|
|                              |                               | Surface              | 0-1 km             | Surface       | 0-1 km      | Surface       | 0-1 km      |
| Corrélation<br>(sans unités) | Free Run                      | 0,20 à 0,64          | 0,40 à 0,64        | 0,45          | 0,50        | 0,43          | 0,54        |
|                              | GEO TIR+VIS                   | 0,27 à 0,68          | <b>0,61 à 0,75</b> | <b>0,52</b>   | <b>0,70</b> | <b>0,48</b>   | <b>0,71</b> |
|                              | Stations sol                  | <b>0,37 à 0,69</b>   | 0,43 à 0,66        | <b>0,57</b>   | 0,54        | <b>0,49</b>   | 0,54        |
|                              | Stations sol +<br>GEO TIR+VIS | <b>0,43 à 0,73</b>   | <b>0,60 à 0,78</b> | <b>0,64</b>   | <b>0,73</b> | <b>0,52</b>   | <b>0,68</b> |
| RMS<br>(en %)                | Free Run                      | 6 à 35               | 2 à 20             | 17            | 16          | 31            | 12          |
|                              | GEO TIR+VIS                   | 11 à 35              | <b>0 à 7</b>       | 20            | <b>5</b>    | 31            | <b>1</b>    |
|                              | Stations sol                  | <b>0 à 8</b>         | 9 à 30             | <b>1</b>      | 23          | <b>3</b>      | 25          |
|                              | Stations sol +<br>GEO TIR+VIS | <b>0 à 10</b>        | <b>1 à 10</b>      | <b>4</b>      | <b>8</b>    | <b>4</b>      | <b>6</b>    |

|                              |                               | Prévision h+12 |             | Prévision h+24 |             | Prévision h+48 |        |
|------------------------------|-------------------------------|----------------|-------------|----------------|-------------|----------------|--------|
|                              |                               | Surface        | 0-1 km      | Surface        | 0-1 km      | Surface        | 0-1 km |
| Corrélation<br>(sans unités) | Free Run                      | 0,55           | 0,59        | 0,48           | 0,60        | 0,53           | 0,63   |
|                              | GEO TIR+VIS                   | 0,58           | <b>0,68</b> | 0,50           | <b>0,65</b> | 0,54           | 0,66   |
|                              | Stations sol                  | <b>0,64</b>    | 0,63        | <b>0,54</b>    | 0,61        | 0,55           | 0,64   |
|                              | Stations sol +<br>GEO TIR+VIS | <b>0,64</b>    | <b>0,68</b> | <b>0,55</b>    | <b>0,65</b> | 0,55           | 0,66   |
| RMS<br>(en %)                | Free Run                      | 16             | 5           | 17             | 11          | 22             | 14     |
|                              | GEO TIR+VIS                   | 18             | <b>0</b>    | 17             | 10          | 22             | 15     |
|                              | Stations sol                  | <b>6</b>       | 11          | 13             | 14          | 21             | 16     |
|                              | Stations sol +<br>GEO TIR+VIS | <b>11</b>      | 2           | 14             | 11          | 21             | 15     |

## 4.4 Conclusions du chapitre

À travers ce chapitre nous avons mis au point un démonstrateur de chaîne d'assimilation de données nous ayant permis de réaliser une première comparaison entre les analyses et prévisions obtenues à partir d'observations de stations sol, de GEO TIR+VIS, et des deux à la fois, grâce à la méthodologie des expériences de systèmes d'observations simulés. Pour s'affranchir du problème de « consanguinité » entre le Control Run et le Nature Run nous avons utilisé deux modèles différents : MOCAGE et LOTOS-EUROS. L'étude a porté sur la période allant du 5 au 13 Août 2003 pour laquelle l'Europe a connu une forte canicule, avec des concentrations moyennes d'ozone élevées. Durant cette période, les conditions anti-cycloniques et le gradient de température sont favorables aux mesures de l'instrument GEO TIR+VIS. De plus, l'écart moyen entre les valeurs d'ozone des deux modèles est proche de l'écart qui existe entre modèle et données des stations sol, ainsi avec nos deux modèles on est capable au moins au sol de représenter une erreur entre Nature et Control Run réaliste.

Par rapport au Nature Run, les résultats de l'étude montrent que l'assimilation des données des stations sol va améliorer fortement la corrélation, le biais et le RMS à la surface, mais au contraire détériore la colonne 0–1 km. En revanche, l'assimilation des données du satellite géostationnaire GEO TIR+VIS permet d'améliorer fortement la corrélation, le biais et le RMS de la colonne 0–1 km, et de façon moindre pour les valeurs à la surface. Enfin, l'assimilation simultanée des données des stations sol et des données de GEO TIR+VIS produit les résultats les plus prometteurs puisque l'on conserve à la fois la forte amélioration de la corrélation, du biais et du RMS à la surface obtenue grâce aux stations sol, et la forte amélioration de la colonne 0–1 km obtenue grâce aux données satellites. Or, dans la modélisation de la qualité de l'air, soulignons-le, il est primordial d'obtenir la modélisation la plus performante des valeurs de l'ozone à la surface, et dans la couche limite (que l'on approche par la couche entre 0 et 1 km d'altitude), car cette couche de mélange relie la surface à la troposphère libre, où ont lieu les processus de transport à plus grandes échelles.

Enfin, les analyses permettent de fournir un état initial pour la prévision plus proche du Nature Run, on constate ainsi que la prévision à court terme en est d'autant améliorée. Cependant les différences entre les deux modèles (Control Run et Nature Run) sont importantes et le gain apporté par les analyses s'arrête à la limite de prévisibilité, qui dans notre cas est de 1 jour. À l'aide des données des stations sol et des données de l'instrument TIR et VIS à bord du satellite géostationnaire, on peut gagner ainsi un jour de prévisions d'ozone améliorées, à la fois à la surface et dans la couche 0–1 km. Ce résultat témoigne également de l'importance capitale de l'amélioration de la modélisation de l'ozone, en terme de processus, pour espérer ensuite améliorer sensiblement la prévision dans le temps, en terme des valeurs des concentrations d'ozone, grâce à l'apport des observations.





# Conclusions générales

Dans le cadre de la surveillance de la qualité de l'air (QA) et plus particulièrement du suivi spatio-temporel de l'ozone, les instruments spatiaux défilants qui appréhendent les plus basses couches de la troposphère (0–1 km) sont peu performants, voire déficients. Un capteur spatial disposant de la bande de Chappuis en plus de l'infrarouge thermique sur un satellite géostationnaire viserait à combler cette lacune. Dans ce cadre, ma thèse contribue à l'évaluation des performances d'un tel capteur en terme de restitution de l'ozone.

À cet effet, nous avons mis au point une chaîne de modélisation permettant de simuler les observations synthétiques d'un instrument à bord d'un satellite géostationnaire, que nous avons testée pour la mesure de l'ozone dans la basse troposphère pour la QA. En effet, la mesure des espèces chimiques pour la QA, en particulier de l'ozone, du fait de sa forte variabilité spatio-temporelle, implique d'avoir des instruments ayant une résolution spatiale de l'ordre de la dizaine de kilomètres, et une résolution temporelle de l'ordre de l'heure, tout en couvrant la majeure partie du globe. Ces contraintes font du satellite géostationnaire le moyen de mesure le plus adapté pour la qualité de l'air.

Le partenaire industriel de cette thèse, Airbus Defence and Space, a mis au point le concept d'un instrument géostationnaire dédié à la mesure d'espèces chimiques pour la qualité de l'air, et plus particulièrement de l'ozone et du monoxyde de carbone, en couplant une bande dans l'infrarouge thermique et dans le visible. Les performances de la bande infrarouge thermique de cet instrument, baptisé MAGEAQ, ont été étudiées précédemment, par Claeysman et al. (2011b,a). Mon travail de thèse se situe dans la continuité de ces travaux, et quantifie l'apport de la bande visible de MAGEAQ, par rapport à sa bande infrarouge thermique, pour l'évaluation de l'ozone dans le cadre d'un suivi de la QA.

Dans un premier temps, nous avons ainsi pu, à l'aide de la chaîne de modélisation développée, étudier l'impact de la polarisation sur la mesure de l'ozone faite par l'instrument simulé. Dans ce travail nous avons montré que l'ajout d'un scrambler à l'instrument n'était pas indispensable si un traitement était appliqué sur les optiques de manière à réduire l'effet de la polarisation et ainsi extraire le maximum d'information apporté par la bande visible de l'instrument. En effet, la bande visible permet alors d'améliorer la mesure de la colonne partielle d'ozone, entre 0 et 1 km d'altitude, notamment la corrélation (+0,1) et l'écart-type (-5 %), comparé aux résultats de la mesure avec la bande infrarouge thermique seule.

Dans un deuxième temps, nous avons réalisé une étude, qui a fait l'objet d'une publi-

cation (Hache et al., 2014), visant à comparer les mesures simulées de la bande infrarouge thermique de MAGEAQ (GEO TIR) avec les mesures simulées de la bande infrarouge thermique et la bande visible de MAGEAQ (GEO TIR+VIS), pour la mesure de l’ozone de surface et dans la colonne 0–1 km d’altitude. Alors que les études faites par Claeysman et al. (2011b,a) ont montré l’apport de GEO TIR, comparé à un sondeur géostationnaire dont les caractéristiques sont proches du futur instrument MTG IRS, pour la mesure de l’ozone. Les études montrent notamment la sensibilité accrue de GEO TIR pour la mesure de la colonne 0–3 km, comparée à MTG IRS. Nous avons montré dans notre étude que GEO TIR+VIS avait une sensibilité accrue à la fois à la surface et entre 0–1 km comparé à GEO TIR. Au dessus des surfaces continentales, on dispose, pour la colonne 0–1 km, en moyenne d’un DFS de 0.31 pour GEO TIR et d’un DFS de 0.40 pour GEO TIR+VIS. La bande VIS permet donc de rajouter à la bande TIR, de la sensibilité dans la colonne 0–1 km. Également, les résultats obtenus avec GEO TIR+VIS sont significativement plus proches de l’état réel que ne le sont les résultats de GEO TIR, avec au final une amélioration du taux de détection des pics d’ozone de 25 % en faveur de GEO TIR+VIS. Ces résultats mettent en avant la nécessité d’ajouter la bande du visible à la bande infrarouge thermique pour pouvoir réaliser les mesures de l’ozone pour la qualité de l’air les plus précises possibles.

Dans un troisième temps, nous nous sommes cette fois-ci intéressés à l’apport des observations de MAGEAQ dans le système d’observations global, pour la mesure de l’ozone pour la qualité de l’air. Nous avons pour cela simulé les observations des stations sol, et les avons assimilées dans le modèle MOCAGE pour représenter l’état actuel des analyses. Puis, en suivant la méthodologie d’une expérience de systèmes d’observations simulés, nous les avons comparées avec les analyses obtenues avec les observations de GEO TIR+VIS, et les analyses obtenues avec les deux systèmes d’observations à la fois (stations sol + GEO TIR+VIS). Nous avons alors montré que GEO TIR+VIS permettait d’apporter une information significative au sol, même si cette information est moindre que celle donnée par les stations sol. Également GEO TIR+VIS apporte une information considérable dans la colonne 0–1 km, améliorant d’autant la modélisation, contrairement aux stations sol incapable d’avoir de l’information sur la verticale et donc de corriger les modèles au dessus de la surface. Au final, les résultats les plus prometteurs ont été obtenus avec l’apport combiné des observations des stations sol et de GEO TIR+VIS. Ces deux types d’observations se combinent idéalement et permettent d’améliorer à la fois sensiblement la surface et la colonne 0–1 km. C’est ainsi à partir de la combinaison de ces deux systèmes d’observations que l’on obtient les meilleures prévisions à la fois pour la surface et la colonne 0–1 km. La limite de prévisibilité dans notre système est de 1 jour. En effet, on a identifié la présence de différences importantes entre le modèle Control Run, dans lequel on assimile les observations, et le modèle Nature Run, qui nous sert à modéliser la réalité. Notamment une différence dans les processus ayant lieu entre 0 et 1 km et un déphasage des cycles diurnes, si bien que le gain sur la prévisibilité de l’ozone dans notre expérience de systèmes d’observations simulés n’excède pas 1 jour.

Ce travail de thèse est un jalon supplémentaire sur le chemin qui conduit aux observations d’un satellite géostationnaire, et de la mesure et prévision de l’ozone pour la qualité de l’air. L’énorme potentiel des satellites géostationnaires, pour la mesure de la composition

atmosphérique, et la mesure de la qualité de l'air, qui commence tout juste à être exploité grâce à l'apparition d'instruments de mesures hyperspectraux de plus en plus performants, va enrichir considérablement dans les années à venir nos connaissances sur l'atmosphère et la qualité de l'air. Cependant le coût d'une plateforme géostationnaire est conséquent, et pour éviter d'amères déconvenues il est souhaitable de simuler, comme dans ce travail de thèse, du mieux possible, les observations d'un tel instrument et d'estimer ainsi sa capacité à remplir les objectifs qui lui sont confiés. De plus, l'amélioration continue de la modélisation d'un système d'observation satellite fournit par la suite un bénéfice sur ses mesures, car la mesure par télédétection passe par la simulation de ces systèmes d'observations.

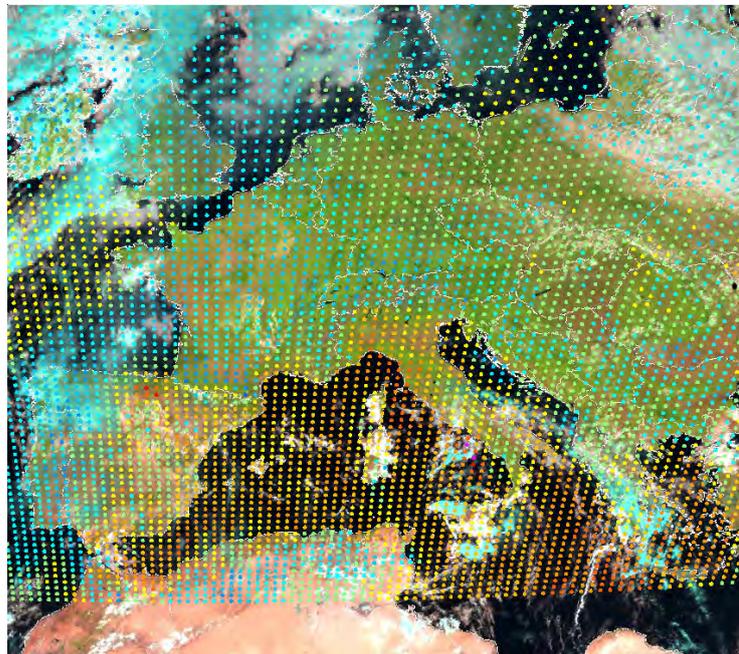


FIGURE 4.15 – Illustration d'un champ d'ozone de surface tel qu'il pourrait être mesuré par l'instrument MAGEAQ. Les couleurs vont du bleu pour les valeurs les plus faibles (10 ppbv), au rouge pour les valeurs les plus fortes (90 ppbv).



# Perspectives

La chaîne de modélisation développée durant ce travail de thèse se base sur des hypothèses, faites à chaque stade de la modélisation. L'une des perspectives principales de ce travail de thèse repose sur l'amélioration de la modélisation autour de ces hypothèses, pour permettre ainsi de simuler des observations plus proches de la réalité, et quantifier au mieux l'apport de l'instrument MAGEAQ dans la mesure de l'ozone pour la qualité de l'air (QA).

**1. Modélisation des nuages et des aérosols :** le premier des axes d'améliorations de la modélisation concerne ainsi la prise en compte des nuages et des aérosols. En effet, leurs impacts sont considérables sur le rayonnement, en particulier visible, perturbant ainsi d'autant la mesure de l'ozone par l'instrument dans la bande visible. De plus, il existe un lien étroit entre les aérosols (des particules fines) et l'ozone à la surface, où l'on retrouve souvent des concentrations élevées des deux, lors d'épisode de pollution due à la photochimie. Améliorer la modélisation des aérosols, et leurs prises en compte dans l'inversion, contribueraient ainsi à améliorer les mesures de l'ozone, mais aussi des aérosols, pour la qualité de l'air.

**2. Modélisation des propriétés des surfaces :** le second axe d'amélioration concerne la modélisation des propriétés des surfaces. En effet, que ce soit pour la bande visible avec l'albédo, ou encore la bande infrarouge thermique avec l'émissivité, il serait bénéfique pour la qualité des mesures, d'utiliser des bases de données et une modélisation plus précises des propriétés des surfaces. De plus, il faudrait également prendre en compte, pour la bande visible, les signatures spectrales de la végétation, et utiliser des modèles de surface pour modéliser précisément la réflectance, notamment avec des fonctions de distribution de la réflectance bidirectionnelle.

**3. Modélisation de la polarisation :** enfin, le dernier axe d'amélioration de la modélisation concerne la polarisation. Malgré le scrambler placé devant l'instrument, la polarisation va parasiter la mesure. Or, améliorer la modélisation en prenant en compte les aérosols et des modèles de surfaces plus précis va impacter le niveau de polarisation du rayonnement en sortie de l'atmosphère. L'évaluation de la sensibilité de la mesure à ce niveau de polarisation est importante puisqu'elle permet de définir la qualité requise pour le scrambler de l'instrument, et donc le coût de ce dernier. De plus, les propriétés des aérosols peuvent être mesurées à partir de l'information portée par la polarisation, prendre en compte la polarisation pourrait ainsi permettre d'envisager la mesure des aérosols, également très importante

pour la qualité de l'air.

Les travaux réalisés en assimilation, ayant abouti à la mise au point d'une expérience de systèmes d'observations simulés (OSSE), ouvrent d'autres perspectives.

**4. Amélioration de l'OSSE sur l'apport de MAGEAQ comparé au système d'observations global pour la mesure de l'ozone pour la QA :** En effet, les OSSEs sont des outils particulièrement puissants pour étudier les capacités de mesures d'instruments à bord de satellites, et les comparer avec d'autres moyens d'observations. L'OSSE réalisée dans ce travail de thèse est perfectible, et gagnerait à intégrer des systèmes d'observations mieux représentés (résolution spatiale, couverture spatiale, ...). Il serait souhaitable d'étendre la période des observations sur plusieurs mois, et de couvrir différentes situations climatiques. Également, intégrer de nouveaux types d'observations, comme les sondes ballons ou encore les satellites défilants, et ainsi nous rapprocher du système d'observations global, nous permettrait de renforcer les conclusions sur l'apport d'un instrument, comme MAGEAQ, à bord d'un satellite géostationnaire, comparé au système d'observations global, pour la mesure de l'ozone pour la qualité de l'air.

**5. Vers une OSSE globale :** Finalement, il serait utile d'ajouter à l'OSSE les futurs sondeurs géostationnaires en préparation en Europe, comme par exemple les instrument IRS et Sentinel-4 UVN qui vont être lancé à bord de la plateforme MTG, pour les comparer à l'instrument MAGEAQ. Mais plus généralement encore, prendre en compte dans l'OSSE tous les futurs sondeurs géostationnaires, à l'échelle du globe, ce qui permettrait d'évaluer le bénéfice d'une constellation de satellite géostationnaire pour la mesure des espèces chimiques pour la qualité de l'air, et pour sa prévision.





# Annexe A

## Liste des acronymes

- 3D-FGAT** : three dimensional First Guess at Appropriate Time
- 3D-VAR** : three dimensional VARiational
- 4D-VAR** : four dimensional VARiational
- AASQA** : Associations Agréées de la Surveillance de la Qualité de l’Air
- ADEME** : Agence De l’Environnement et de la Maîtrise de l’Energie
- ADOMOCA** : Assimilation de DONnées dans des MODèles de Chimie Atmosphérique
- AIRS** : Atmospheric InfraRed Sounder
- AQ** : Air Quality
- AMT** : Atmospheric Measurement Techniques
- AVKs** : AVeraging Kernels
- BLUE** : Best Linear Unbiased Estimation
- BRDF** : Bidirectional Reflectance Distribution Function
- CEA** : Commissariat à l’Energie Atomique et aux énergies alternatives
- CEN** : Comité Européen de Normalisation
- CEPMMT** : Centre Européen de Prévision Météorologiques à Moyen Terme
- CERFACS** : Centre Européen de Recherche et de Formation Avancée en Calcul Scientifique
- ChArMEx** : Chemistry Aerosol Mediterranean Experiment
- CLA** : Couche Limite Atmosphérique
- CNES** : Centre National d’Etudes Spatiales
- CNRM** : Centre National de Recherches Météorologiques
- COVs** : Composés Organiques Volatils
- CTM** : Chemistry Transport Model
- DARI** : Demande d’Attribution de Ressources Informatiques
- DFS** : Degrees of Freedom for Signal
- EE-8** : Earth Explorer-8
- EMD** : Ecole des Mines de Douai
- ESA** : European Space Agency
- EUMETSAT** : EUropean organisation for the exploitation of METeorological SATellites
- EUROS** : EUropean Operational Smog
- FWHM** : Full Width at Half Maximum

**GCM** : General Circulation Model  
**GEMS** : Geostationary Environmental Monitoring Spectrometer  
**GENCI** : Grand Équipement National de Calcul Intensif  
**GEO** : Geostationary Earth Orbit  
**GEO-CAPE** : GEOstationary Coastal and Air Pollution Events mission  
**GeoFIS** : Geostationary Fourier Imaging Spectrometer  
**GEO-KOMPSAT** : GEOstationary KOrea Multi-Purpose SATellite  
**GeoTroPE** : Geostationary Tropospheric Pollution Explorer  
**GMES** : Global Monitoring for Environment and Security  
**GOME** : Global Ozone Monitoring Experiment  
**GOS** : Global Observing System  
**IASI** : Interféromètre Atmosphérique de Sondage dans l’Infrarouge  
**IDRIS** : Institut du Développement et des Ressources en Informatique Scientifique  
**INERIS** : Institut National de l’Environnement industriel et des RISques  
**IQAs** : Indice de la Qualité de l’Air simplifié  
**IRS** : InfraRed Sounder  
**ISOTROP** : Impact of Spaceborne Observations on TROPospheric composition analysis and forecast  
**KARI** : Korea Aerospace Research Institute  
**KIT** : Karlsruhe Institute of Technology  
**KOPRA** : Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm  
**LAURE** : Loi sur l’Air et l’Utilisation Rationnelle de l’Energie  
**LCSQA** : Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l’Air  
**LEFE** : Les Enveloppes Fluides et l’Environnement  
**LEO** : Low Earth Orbit  
**LiDAR** : Light Detection And Ranging  
**LNE** : Laboratoire National d’Essais  
**LOTOS** : LOng Term Ozone Simulation  
**MACC** : Monitoring Atmospheric Composition and Climate  
**MAGEAQ** : Monitoring the Atmosphere from Geostationary orbit for European Air Quality  
**MOCAGE** : MOdèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle  
**MOZAIC** : Measurement of OZone and water vapour by AIrbus in-service airCraft  
**MTG** : Meteosat Third Generation  
**NCAR** : National Center for Atmospheric Research  
**NIR** : Near InfraRed  
**OHP** : Observatoire de Haute Provence  
**OMI** : Ozone Monitoring Instrument  
**OMS** : Organisation Mondiale de la Santé  
**OSes** : Observing System Experiments  
**OSSEs** : Observing System Simulated Experiments  
**PALM** : Projet d’Assimilation par Logiciel Multi-méthodes  
**PM** : Particulate Matter  
**QA** : Qualité de l’Air  
**RACM** : Regional Atmospheric Chemistry Mechanism

---

**RADAR** : RAdio Detection And Ranging  
**RMS** : Root Mean Square error  
**RTM** : Radiative Transfer Model  
**SNR** : Signal to Noise Ratio  
**SZA** : Solar Zenith Angle  
**TEMPO** : Tropospheric Emissions : Monitoring of Pollution  
**TES** : Tropospheric Emission Spectrometer  
**TGCC** : Très Grand Centre de Calcul  
**TIR** : Thermal InfraRed  
**TRAQA** : TRAnsport à longue distance et Qualité de l'Air  
**UV** : UltraViolet  
**UVN** : Ultraviolet/Visible/Near-infrared  
**VIS** : VISible  
**VZA** : View Zenith Angle  
**VLIDORT** : Vector LInearized Discrete Ordinate Radiative Transfer



## Annexe B

### Les grandes dates de la qualité de l'air

- 1661  : John Evelyn, écrivain et chroniqueur anglais, dans son célèbre tract « Fumifugium or The Inconvenience of the Air and Smoke or London Dissipated », décrit l'état de l'air de Londres : « Alors que l'air est pur et serein dans tous les autres lieux, il est ici éclipsé par de tels nuages de soufre que le soleil lui-même, qui éclaire partout ailleurs, est à peine capable de le pénétrer ou de le disperser... ».
- 1667  : John Evelyn remarque le mauvais état des marbres d'Arundel, signalant ainsi l'effet corrosif de la pollution acide de Londres sur la chaux et le marbre.
- 1763  : Description de la pollution atmosphérique à Paris par le Begne de Presles, médecin de Jean-Jacques Rousseau : « Paris a une atmosphère particulière en tout temps, excepté pendant les grands vents. Cette atmosphère est formée par un air rendu très pesant par la quantité de corpuscules ou exhalaisons qu'il soutient et que leur poids empêche de s'élever fort haut : c'est ce que forme le nuage dont Paris paraît couvert et enveloppé dans le temps le plus serein lorsque l'on regarde la ville d'un peu loin. Les brouillards que l'on éprouve si souvent à Paris pendant l'automne et l'hiver qui ont si mauvaise odeur, qui font mal aux yeux, à la gorge, excitent la toux, causent des fluxions... ».
- 1810  : Décret impérial (du 15 octobre 1810) relatif aux manufactures et ateliers qui répandent une odeur insalubre ou incommode.
- 1852  : Robert Angus Smith, chimiste écossais, démontre pour la première fois, le lien entre les pluies acides et la pollution atmosphérique dans la ville de Manchester.
- 1860  : Début de la mesure de la concentration d'ozone en surface sur des centaines de sites.
- 1872  : Robert Angus Smith publie son livre « Air and Rain : the beginnings of a Chemical Climatology », présentant ses analyses de la chimie des pluies atmosphériques et utilisant pour la première fois le terme « pluies acides ». Sa découverte lui

vaut par la suite le sobriquet du « père des pluies acides ».

- 1883  : Description de la forte pollution atmosphérique à Lille par A. Ladureau, directeur du laboratoire de l'état et de la Station agronomique du Nord, dans les *Annales de la Chimie - Physique* : « L'air que l'on respire à Lille laisse dans l'arrière-bouche le goût particulier [...] qui caractérise la présence de l'acide sulfureux [...]. Il provoque des enrouements, des maladies de la gorge, des irritations locales et des bronchites [...], il attaque les instruments métalliques, les rideaux et les tentures, les toitures en zinc.
  
- 1917  : Loi (du 19 décembre 1917) relative aux établissements dangereux, insalubres et incommodes (texte à l'origine de la législation sur les installations classées).
  
- 1932  : Loi (du 20 avril 1932) tendant à la suppression des fumées industrielles (dite loi Morizet) introduisant, pour la première fois dans la législation française, la notion de pollution atmosphérique.
  
- 1948  : Épisode de smog « tueur » (smoke + fog = smog ou pollution photochimique) en octobre à Donora, petite ville industrielle au sud de Pittsburgh (Pennsylvanie), provoquant la mort par asphyxie de 18 personnes. Au total, 6 000 des 14 000 habitants ont souffert de troubles respiratoires pendant les cinq jours de l'épisode.
  
- 1952  : Épisode de smog à Londres du 5 au 9 décembre, provoquant la mort de plus de 4 000 personnes dans les semaines qui suivirent suite à ses effets nocifs sur les voies respiratoires. Il est jugé comme étant le pire épisode de pollution atmosphérique dans l'histoire du Royaume-Uni. La cause de ce smog intense est une période de grand froid antérieure à l'épisode, couplé à des conditions anticycloniques, à l'absence de vent et à de fortes concentrations de SO<sub>2</sub> (7 fois plus fortes que celle de l'année précédente pendant la même période), de particules et de suies résultant de la combustion accrue de charbon à des fins de chauffage pour faire face au grand froid.
  
- 1954  : Création d'une Commission interministérielle pour l'étude de la pollution atmosphérique.
  
- 1956  : Première loi sur l'air propre (Clean Air Act).
  
- 1961  : Loi n°61-842 (du 2 Août) sur la lutte contre les pollutions atmosphériques et les odeurs.
  
- 1962  : Deuxième épisode de smog à Londres (6 décembre) : 750 morts des suites de troubles respiratoires.

- 1963  : Première loi sur l'air propre (US clean Air Act) autorisant l'élaboration d'un programme national de lutte contre la pollution atmosphérique et la recherche sur les techniques de réduction.
- 1967  : Loi sur la qualité de l'air (Air Quality Act) prévoyant le renforcement des activités de recherche sur les inventaires d'émissions, des techniques de surveillance et de lutte contre la pollution atmosphérique.
- 1968  : Le scientifique suédois Svant Odén conclut que les précipitations devenaient plus acides en Suède du fait d'une augmentation des émissions de SO<sub>2</sub> en provenance d'autres pays, mettant ainsi en évidence, pour la première fois, le phénomène des pluies acides. Il fait le lien entre ces pluies et l'acidification des rivières observée en Norvège.
- 1968  : Création par l'OMM du réseau de surveillance de la pollution atmosphérique de fond (Background Air Pollution Monitoring Network ou BAPMoN).
- 1970  : Renforcement de la loi sur l'air propre, autorisant l'adoption de la réglementation fédérale et des états fédéraux visant à limiter les émissions atmosphériques de sources fixes et mobiles.
- 1971  : Création, au sein de la Commission Environnement de l'OCDE, d'un Groupe sectoriel Gestion de l'air (Sector Group on Air Management).
- 1972  : Lors de la première conférence des Nations Unies sur l'environnement (Stockholm), de nouvelles preuves de l'acidification des lacs en Suède sont présentées dans une étude de cas intitulée « Pollution de l'air au-delà des frontières nationales. L'impact sur l'environnement du soufre dans l'air et les précipitations ».
- 1972  : Lancement par l'OCDE d'un programme sur le transport à longue distance des polluants atmosphériques avec la participation de 11 pays membres (dont la France).
- 1972  : Lancement d'un ambitieux programme de recherche norvégien (SNFS) sur la précipitation acide et ses effets sur les forêts et les poissons.
- 1974  : Décret n°74-415 (du 13 mai) relatif au contrôle des émissions polluantes dans l'atmosphère et à certaines utilisations de l'énergie thermique.
- 1976  : Lancement du Programme concerté de surveillance continue et d'évaluation du transport à longue distance des polluants atmosphériques en Europe (EMEP).

- 1979  : Convention sur la pollution atmosphérique transfrontalière à longue distance (dit Convention de Genève), adoptée sous l'égide de la Commission Économique pour l'Europe des Nations Unies (CEE-NU).
- 1980  : Directive 80/779/CEE concernant des valeurs limites et des valeurs guides de qualité atmosphérique pour le SO<sub>2</sub> et les particules en suspension.
- 1980  : Finalisation du programme de recherche norvégien SNFS montrant l'acidification généralisée des rivières et des lacs en Norvège et une forte baisse des stocks de poissons dans ces écosystèmes aquatiques.
- 1981  : Création de l'Agence pour la Qualité de l'Air (AQA).
- 1982  : Directive 82/884/CEE sur une valeur limite pour le plomb contenu dans l'atmosphère.
- 1984  : Protocole sur le financement du programme EMEP (adopté dans le cadre de la Convention de Genève).
- 1984  : Directive 84/360/CEE relative à la lutte contre la pollution atmosphérique en provenance des installations industrielles.
- 1985  : Premier protocole sur le soufre (Protocole de Helsinki, adopté dans le cadre de la Convention de Genève).
- 1985  : Mise en place du programme communautaire CORINAIR (CORe INventory of AIR Émissions in Europe) par la commission européenne visant à aider les États membres à développer les inventaires d'émission nationaux cohérents, comparables et transparents.
- 1985  : Directive 85/203/CEE concernant les normes de qualité de l'air pour le NO<sub>2</sub>.
- 1987  : Première édition des lignes directrices en matière de qualité de l'air pour l'Europe, publiée par l'OMS. Le rapport évalue les risques sanitaires de 28 polluants atmosphériques.
- 1989  : Fusion des réseaux mondiaux d'observation de l'OMM, GO3OS et BAP-MoN, pour créer l'Observation de l'atmosphère mondiale (Global Atmosphere Watch ou GAW) pour surveiller la composition de l'atmosphère.

- 1990  : Création de l'ADEME (Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Énergie), loi n°90-1130.
- 1991  : Protocole sur les COVNM (Protocole de Genève, adopté dans le cadre de la Convention de Genève).
- 1992  : Création d'un groupe de travail sur les inventaires d'émission (Task Force on Emission Inventories ou TFEI) par la CEE-NU.
- 1992  : Directive 92/72/CE sur la pollution de l'air par l'ozone.
- 1994  : Second protocole sur le soufre (Protocole d'Oslo, adopté dans le cadre de la convention de Genève).
- 1995  : Publication de l'inventaire CORINAIR 1985 (Inventaire des émissions de SO<sub>2</sub>, de NO<sub>x</sub> et de COV dans la Communauté européenne en 1985), ouvrant la voie à la réalisation d'inventaires réguliers, uniques et cohérents, associant tous les pays européens. Cette tâche est confiée à l'agence européenne pour l'environnement (AEE).
- 1996  : Directive 96/61/CE sur la prévention et la réduction intégrées de la pollution (IPPC).
- 1996  : Directive 96/62/CE sur l'évaluation et la gestion de la qualité de l'air ambiant.
- 1996  : Loi n°96-1236 (du 30 décembre) sur l'air et l'utilisation rationnelle de l'énergie.
- 1997  : Création du Conseil National de l'Air (CNA).
- 1998  : Protocole d'Aarhus sur les métaux lourds et les polluants organiques persistants (POP).
- 1999  : Protocole sur la réduction de l'acidification, de l'eutrophisation et de l'ozone troposphérique (Protocole de Göteborg, adopté dans le cadre de la Convention de Genève).
- 1999  : Directive 1999/13/CE relative à la réduction des émissions de COV dues à l'utilisation de solvants organiques dans certaines activités et installations.
- 1999  : Directive 1999/30/CE relative à la fixation de valeurs limites pour le SO<sub>2</sub>, le NO<sub>2</sub> et les NO<sub>x</sub>, les particules et le plomb.

- 2000  : Seconde édition des lignes directrices en matière de qualité de l'air pour l'Europe, publiée par l'OMS. Le rapport évalue les risques sanitaires de 35 polluants atmosphériques.
- 2000  : Directive 2000/59/CE concernant les valeurs limites pour le benzène et le CO.
- 2000  : Création de la fédération ATMO qui regroupe l'ensemble des associations agréées de surveillance de la qualité de l'air (AASQA).
- 2001  : Programme « Air pur pour l'Europe » (CAFE).
- 2001  : Création de l'Observatoire de la Qualité de l'Air Intérieur (OQAI).
- 2002  : Directive 2002/3/CE relative à l'ozone dans l'air ambiant.
- 2003  : Programme national de réduction des émissions de polluants atmosphériques (SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, COV, NH<sub>3</sub>).
- 2003  : Canicule de l'été 2003 durant laquelle des épisodes de pollution particulièrement aigus ont eu lieu. Roselyne Bachelot, ministre de l'écologie présente alors le « Plan Air » destiné à prévenir les épisodes de pollution.
- 2003  : Lancement du système PREV'AIR visant à diffuser quotidiennement via Internet des prévisions et cartographies de la qualité de l'air établies à partir des simulations numériques.
- 2004  : Lancement du Registre européen des émissions de polluants (EPER).
- 2004  : Directive 2004/107/CE sur l'arsenic, le cadmium, le mercure, le nickel et les HAP.
- 2005  : Stratégie thématique sur la pollution de l'air.
- 2006  : Arrêté (du 29 décembre 2006) relatif au Système national d'inventaires des émissions de polluants atmosphériques (SNIEPA).
- 2008  : Directive 2008/50/CE sur la qualité de l'air ambiant et un air pur pour l'Europe (directive CAFE).

- 2009  : Loi Grenelle 1, décline en programme les engagements du « Grenelle de l'Environnement » et les traduit dans un cadre juridique.
- 2010  : Directive 2010/75/UE sur les émissions industrielles (refonte de la directive IPPC).
- 2010  : Loi Grenelle 2, décline la loi Grenelle I par objectif, chantier, et secteur.
- 2010  : Plan particules, il prévoit des mesures pour atteindre une baisse de 30 % des particules à l'horizon 2015 dans les secteurs de l'industrie, du chauffage domestique et tertiaire, des transports, de l'agriculture et en cas de pics de pollution. Des zones d'actions prioritaires pour l'air (ZAPA) sont expérimentées pour une durée de 3 ans, afin de restreindre la circulation des véhicules les plus polluants dans les agglomérations où se posent des problèmes de qualité de l'air.
- 2011  : Premières Assises Nationales de la Qualité de l'Air (à Paris).



## Annexe C

# Impact de la qualité de l'air sur la santé et l'environnement

Dans cette annexe nous allons présenter les différents impacts que peuvent avoir les polluants, vus dans la section 1.3, sur la santé humaines, mais également sur l'environnement. À la suite de quoi nous présenterons une estimation des coûts induits par ces effets sur la santé et l'environnement.

### C.1 Interaction entre les polluants et l'organisme humain

Les hommes respirent en moyenne 12 000 litres d'air par jour (soit  $12 m^3$ ). Si l'on étudie les interactions entre les polluants atmosphériques et l'organisme humain, la voie respiratoire apparaît donc comme la voie d'entrée principale de ces polluants atmosphériques (cf. Fig. C.1). Ils peuvent provoquer l'irritation des muqueuses des voies aériennes et participent à une augmentation de certaines pathologies comme l'asthme. La majorité des gaz atmosphériques ainsi respirés atteignent le fond des poumons, tandis que les particules y pénètrent plus ou moins profondément selon leur taille (cf. Fig. C.1). D'après de récentes études toxicologiques, les cellules épithéliales respiratoires exposées à des particules diesel sont sujettes à une réponse inflammatoire induite de façon importante par les composés organiques adsorbés à la surface des particules (programmes de recherche PRIMEQUAL, 2000). En outre, le caractère cancérigène de ces particules a été démontré (Straif et al., 2013).

De manière plus marginale, on peut parler de l'interaction entre les polluants atmosphériques et l'organisme en passant par la voie digestive ou par la voie cutanée. En effet, les polluants atmosphériques retombent dans l'eau, sur le sol ou les végétaux, pouvant ainsi contaminer des produits que nous ingérons par la suite. On retrouve par exemple des dioxines issues de certains processus de combustion, des pesticides, ou encore des métaux lourds, dans le lait de vache. Également, concernant la voie cutanée, quelques éléments toxiques, tels que ceux contenus dans certains insecticides, peuvent traverser la peau pour pénétrer dans l'organisme, et provoquer des pathologies.

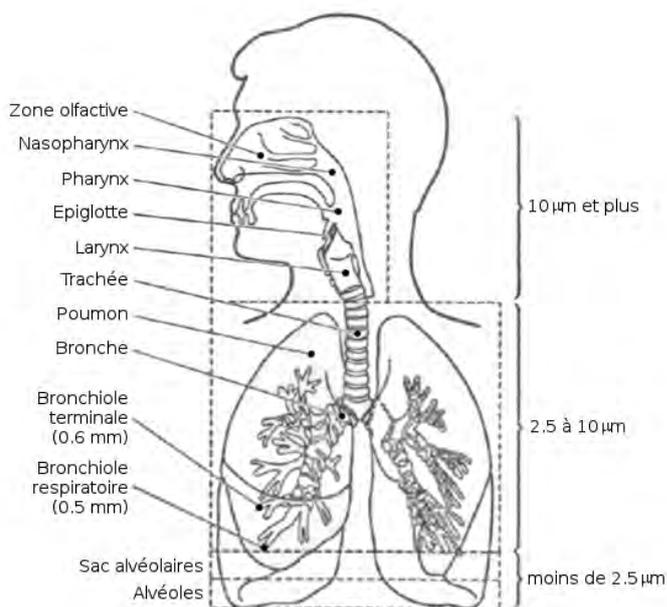


FIGURE C.1 – Illustration de l'appareil respiratoire de l'homme, et représentation de la pénétration par les particules fines en fonction de leurs tailles. D'après la présentation de Momas I., lors des deuxièmes assises nationales de la qualité de l'air, du 23 et 24 octobre 2013, à Paris.

## C.2 Les effets des polluants sur la santé

Parce que de manière générale les polluants atmosphériques interagissent avec l'organisme via les voies respiratoires, nous allons ici ne considérer que les effets des polluants sur la santé via les voies aériennes. On présentera dans un premier temps les effets symptomatiques des principaux polluants sur l'organisme, puis les résultats issus d'études épidémiologiques. Enfin, les chiffres, issue des rapports de l'Organisation Mondiale de la Santé (OMS), concernant l'impact de la qualité de l'air sur la santé humaine, seront présentés. En annexe D sont donnés le lexique et les définitions des termes médicaux utilisés dans cette section.

### C.2.1 Effets symptomatiques des polluants

Pour chacun des 6 principaux polluants atmosphériques, le  $\text{SO}_2$ , le  $\text{NO}_2$ , le CO, les COVs, les particules fines et l'ozone troposphérique, des études médicales ont été réalisées afin de déterminer leurs effets symptomatiques :

Le dioxyde de soufre ( $\text{SO}_2$ ) est un irritant qui cause principalement une constriction des bronches et une accentuation de l'asthme (Nadel et al., 1965). L'exposition importante au  $\text{SO}_2$  peut provoquer différents symptômes, dépendant de la durée et du niveau

d'exposition au  $\text{SO}_2$  et des individus (Andersen et al., 1974), allant jusqu'à des atteintes respiratoires obstructives sévères, voire des bronchiolites oblitérantes ou des œdèmes pulmonaires hémorragiques rapidement mortels. Après une exposition accidentelle au  $\text{SO}_2$ , il est donc indispensable de contrôler la fonction pulmonaire. Une exposition à des doses plus faibles provoque une irritation des muqueuses entraînant rhinite, laryngite, bronchite et conjonctivite. Les sujets souffrant d'affection respiratoire, l'asthme notamment, présentent une plus grande sensibilité aux expositions même faibles au  $\text{SO}_2$  (Devalia et al., 1994). Cette sensibilité s'accroît avec l'activité physique.

Les autres effets sur la santé sont liés à la transformation du  $\text{SO}_2$  en acide au contact de l'eau, qui peut alors provoquer de forte irritation cutanée, et en cas de contact oculaire, les vapeurs peuvent causer une conjonctivite alors que le liquide va causer des brûlures cornéennes entraînant la perte de la vue par opacification cornéenne. Le contact avec les muqueuses digestives peut provoquer des brûlures de la cavité buccale, de l'œsophage et de l'estomac.

Plus spécifiquement relié aux épisodes de pollution atmosphérique au  $\text{SO}_2$ , on constate une augmentation de l'incidence de pharyngite et de bronchite chronique, qui peut s'accompagner d'emphysème et d'une altération de la fonction pulmonaire en cas d'exposition importante et prolongée. Ces effets néfastes sur les poumons sont accrus par la présence de particules fines dans l'air, par le tabagisme et par l'effort physique. L'inhalation de  $\text{SO}_2$  durant les épisodes de pollution de l'air peut aggraver un asthme préexistant et les maladies pulmonaires inflammatoires ou fibrosantes.

Les oxydes d'azote ( $\text{NO}_x$ ) sont des oxydants qui provoquent des lésions inflammatoires des voies aériennes (Tze-Ming et al., 2007). La faible hydrosolubilité des oxydes d'azote leurs permet de pénétrer profondément l'appareil respiratoire, pouvant occasionner des dégâts sur les cellules alvéolaires et les cellules épithéliales ciliées des poumons (Devalia et al., 1993). De plus son absorption dans le sang, et sa forte affinité pour le fer présent dans l'hémoglobine conduit à la transformation de l'hémoglobine en méthémoglobine, entraînant alors une hypoxie des tissus.

L'intoxication aigüe aux oxydes d'azote évolue généralement rapidement, d'une irritation plus ou moins intense des muqueuses oculaires et respiratoires avec larmoiement, toux, dyspnée et nausées possibles jusqu'au développement d'un œdème pulmonaire associé à une détresse respiratoire. Si l'intoxication n'est pas fatale, à l'issue de l'épisode, elle peut être suivie par l'apparition d'une bronchiolite oblitérante entraînant des séquelles fonctionnelles importantes liées à la fibrose ou l'emphysème.

Le monoxyde de carbone (CO), tout comme les oxydes d'azote, est très peu soluble dans l'eau et atteint rapidement les alvéoles pulmonaires. Il traverse alors les membranes alvéolo-capillaires et se dissout dans le sang, en raison de la présence de l'hémoglobine. En effet, l'hémoglobine possède une forte affinité pour le CO (environ 200 à 250 fois supérieure à celle pour l'oxygène) et forme alors une combinaison stable (mais réversible) appelée la carboxyhémoglobine (HbCO). Le CO inhibe ainsi la liaison de l'oxygène à l'hémoglobine ce qui diminue la libération d'oxygène dans les tissus et provoque l'hypoxie. Les organes et tissus à forte consommation en oxygène sont les plus sensibles à cette hypoxie : cœur, cerveau, muscles squelettiques, ainsi que le fœtus. Le CO est éliminé par ventilation pulmonaire,

après arrêt de l'exposition, la demi-vie de l'HbCO est d'environ 4 heures.

Une intoxication au CO provoque des céphalées, nausées, une hypotension, hypothermie, une tachycardie réflexe, fatigues, voire même convulsions, perte de conscience, et la mort pour les intoxications les plus sévères. Des troubles neurologiques irréversibles, syndrome parkinsonien, surdit  de perception, polyn vrites, troubles du comportement, peuvent appara tre imm diatement apr s l'intoxication ou apr s un d lai allant de quelques jours   3   4 semaines.  galement, ces accidents peuvent laisser des s quelles cardiaques comme le trouble de la repolarisation, ou l'infarctus du myocarde.

Lors d'expositions   des faibles concentrations de CO, les populations   risques du fait d'une susceptibilit  plus forte sont les personnes pr sentant des pathologies cardiovasculaires, les femmes enceintes ainsi que le f tus, les enfants, et les personnes pr sentant des pathologies pulmonaires obstructives (Townsend and Maynard, 2002).

Les Compos s Organiques Volatils (COVs), tels que les hydrocarbures, le benz ne, les ald hydes, etc... ont des effets tr s divers allant de la simple nuisance olfactive, des troubles respiratoires,   des effets beaucoup plus graves tels les troubles du syst me nerveux, ou encore la leuc mie dans le cas du benz ne. De plus certains COVs, comme le 1,3-butadi ne, sont  galement des canc rig nes av r s.

L'ensemble des r sultats obtenus jusqu'  pr sent mettent en  vidence le danger que repr sente certaines familles de COVs, comme celle des compos s aromatiques. En effet, les benz ne, tolu ne, xyl ne (BTX) et nombre de leurs d riv s sont capables d'agir   plusieurs niveaux sur la sant  : dans la modification de la r ponse immune lors d'une exposition maternelle, dans l'apparition de la sensibilisation, dans l'augmentation du risque d'asthme ou de sympt mes respiratoires. La famille des terp nes, quant   elle, a  t  associ e   une alt ration de la r ponse bronchique. D'ailleurs, d'autres  tudes exp rimentales ont montr  que ces substances, notamment suite   des r actions oxydatives avec l'ozone, forment des d riv s sous forme de gaz ou d'a rosols qui poss dent des propri t s irritantes particuli rement puissantes. Enfin, la famille des alcanes serait impliqu e dans le d veloppement de l'atopie et de la sensibilisation.

Les particules fines, tout comme pour les COVs, forment un ensemble h t rog ne. Parmi les particules fines inhalables on distingue deux populations : Les particules de diam tre inf rieur   10 microns (et sup rieur   2,5 microns), appel es PM10. Et les particules fines, de diam tre inf rieur   2,5 microns, appel es PM2.5. Ces particules sont majoritairement  mises lors de la combustion et sont responsables d'effets sur l'appareil respiratoire et sur l'appareil cardiovasculaire. En effet, elles sont   l'origine de pathologies pulmonaires, comme l'asthme et la broncho-pneumopathie chronique obstructive. Plus les particules sont fines et plus elles sont capables de rentrer profond ment dans les bronches (cf. Fig. C.1), cr ant une inflammation (Pope and Dockery, 2006). En r ponse, les bronches s' paississent et s cr tent des glaires qui rendent difficile la circulation de l'air et provoquent des difficult s respiratoires.  galement, le passage des tr s fines particules   travers la paroi des bronches jusque dans la circulation sanguine conduit    paissir le sang, qui a alors plus de risques de coaguler, entra nant des risques cardiovasculaires.

De plus, les particules fines ont  t  reconnues comme responsables de cancers du poumon par l'Organisation Mondiale de la Sant  (OMS) en 2012. Il a  t  d montr  que l'exposition

aux particules fines était néfaste à la fois sur des périodes d'une journée comme sur des périodes beaucoup plus longue comme par exemple sur une année. Les personnes souffrant d'asthme, d'une maladie cardiovasculaire, d'une maladie respiratoire comme une broncho-pneumopathie chronique, ainsi que les enfants et les personnes âgées sont les plus sensibles aux effets néfastes sur la santé des particules fines.

L'ozone ( $O_3$ ) est un puissant oxydant qui provoque à son contact une inflammation des muqueuses oculaires et pulmonaires. Les particules d'ozone peuvent pénétrer jusqu'aux alvéoles pulmonaires entraînant une inflammation et une hyper-réactivité bronchique, déclenchant alors des crises d'asthme et un encombrement bronchique (Hillel et al., 1989). L'ozone a une odeur acre facilement détectable même à faible concentration. Les symptômes d'une intoxication à l'ozone sont des céphalées, des troubles de l'acuité visuelle, irritations oculaires et naso-pharyngées, et une atteinte des poumons se traduisant par la toux, des douleurs du thorax et une dyspnée.

Dans les formes d'intoxications les plus aiguës, une atteinte rénale à type de néphrite est possible, ainsi que la formation d'œdèmes pulmonaires aigus. L'ozone n'est pas considéré comme cancérigène, mais il forme avec les particules fines les 2 principaux polluants ayant le plus d'impacts sur la santé, dans les pays développés, notamment à cause des épisodes de pollution due à la photochimie.

À titre indicatif, outre les polluants mentionnés ci-dessus, d'autres polluants plus spécifiques, issus d'activités particulières tels que l'industrie, l'incinération d'ordures ménagères, etc..., impactent également la santé humaine. Notamment, les métaux lourds (plomb, cadmium, manganèse, nickel, arsenic, ...) et les dioxines, pouvant entraîner des troubles cardiovasculaires mais également du système nerveux.

## C.2.2 Études épidémiologiques

Afin de mieux cerner l'impact sur la santé des épisodes de pollutions atmosphériques, des centaines d'études épidémiologiques ont été conduites dans le monde pour essayer de mettre en évidence la corrélation qui existe entre le nombre de décès, d'hospitalisation ou de consultation médicale en fonction des indicateurs de la pollution atmosphérique (les particules fines, l'ozone, le  $NO_2$ , le  $SO_2$ ).

Concernant les effets sanitaires qui surviennent à court terme, de quelques minutes à quelques semaines, après une exposition aux polluants, l'ensemble des études réalisées a produit des résultats convergents, montrant que l'exposition aux polluants, notamment les particules en suspension et l'ozone, est associée, comme l'on pouvait s'y attendre, à un impact sur la mortalité et sur les hospitalisations.

En effet, pour les particules fines, aux États-Unis, l'analyse multiville de l'étude NM-MAPS (National Morbidity, Mortality, and Air Pollution Study) a estimé que, pour une augmentation des niveaux de particules fines de  $50 \mu g/m^3$ , la mortalité due à des effets respiratoires augmentait de 25 % et la mortalité due à des effets cardiovasculaires augmentait de 11 %. En Europe, l'étude APHEA (Air Pollution and Health : A European Approach)

a montré qu'en moyenne, pour une augmentation des niveaux de particules fines de  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , la mortalité due à des effets respiratoires augmentait de 4 % et la mortalité due à des effets cardiovasculaires augmentait de 2 % (Katsouyanni et al., 1997). Cependant les résultats étaient très hétérogènes entre les villes de l'Europe de l'Ouest et de l'Europe de l'Est, donnant un risque plus élevé sur les villes de l'Ouest alors que la pollution y est plus faible.

De plus, une étude sur la mort subite du nourrisson à Taïwan a démontré que celle-ci était corrélée avec l'indicateur de visibilité optique lors des phénomènes de pollution. Une autre étude européenne, APHEIS, a révélé que plus de 800 décès anticipés (3 pour 100 000 habitants) pourraient être évités si l'exposition à court terme aux particules PM10 dans 19 villes européennes était réduite de  $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Rien qu'en France, pour une telle réduction dans 7 villes du Programme de Surveillance Air et Santé (PSAS), plus de 200 décès pourraient être potentiellement évités.

Également, pour l'ozone, une augmentation de la mortalité a été constatée à des concentrations moyennes d'ozone (maximum quotidien sur une heure) allant de 20 à 75 ppb (soit 40 à  $150 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ), et ce pour une grande variété de conditions climatiques, de mélanges de polluants et de zones d'étude. Il a été estimé qu'une hausse de la mortalité de 0,4 % survenait pour chaque augmentation de 10 ppb (soit  $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) de la concentration d'ozone.

En France, le Programme de Surveillance Air et Santé (PSAS), coordonné par l'Institut de Veille Sanitaire (InVS), se charge des études portant sur plusieurs villes de France métropolitaine, et notamment, dans la région Île-de-France, la surveillance des effets aigus de la pollution urbaine sur la santé est assurée par les études ERPURS (Évaluation des Risques de la Pollution URbaine pour la Santé).

Plus récemment, parallèlement à la mise en évidence d'effets aigus sur le court terme de la pollution atmosphérique urbaine, des études ayant réalisé le suivi à long terme de populations ont permis de documenter les effets de l'exposition chronique aux polluants, notamment l'effet des particules fines et de l'ozone sur la mortalité totale et cardiovasculaire. Les résultats des premières études nord-américaines, publiées au début des années 1990 ont été confortés depuis par plusieurs travaux européens, dont l'enquête PAARC (Pollution Atmosphérique et Affections Respiratoires Chroniques) en France. Ces études ont montré que l'exposition chronique aux particules fines conduisait sur le long terme à une augmentation de la probabilité de développer des cancers du poumon, une augmentation des troubles pulmonaires et de la mortalité cardiovasculaire. Alors que l'exposition chronique à l'ozone conduisait à l'augmentation de la mortalité cardiovasculaire, à une diminution de la fonction pulmonaire et à l'augmentation de troubles asthmatiformes.

L'exposition aux polluants n'a donc pas seulement un effet à court terme sur la partie de la population la plus fragile, elle a aussi un impact significatif sur l'espérance de vie en général. Les résultats des études à long terme suggèrent d'ailleurs que ces effets sont prépondérants par rapport aux effets aigus de la pollution. La figure C.2 représente la diminution de l'espérance de vie en Europe attribuable à la mauvaise qualité de l'air, en

particulier pour les niveaux d'émissions anthropiques de PM 2.5 lors de l'année 2000. On se rend bien compte sur cette figure que, du fait de la variabilité spatio-temporelle des sources de polluants et des épisodes de pollution atmosphérique, tous les citoyens européens ne sont pas égaux, et que dans les régions les plus touchées par une mauvaise qualité de l'air, la diminution de l'espérance de vie est loin d'être négligeable puisqu'elle atteint 3 ans.

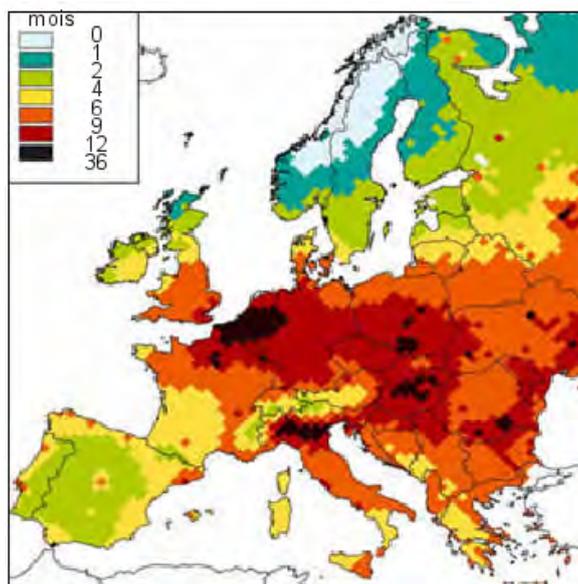


FIGURE C.2 – Carte représentant la diminution de l'espérance de vie en mois en Europe dû à la qualité de l'air, et plus particulièrement pour les niveaux d'émissions de PM 2.5 d'origine anthropique de l'année 2000. D'après les résultats du programme Clean Air For Europe (CAFE), 2005 (<http://ec.europa.eu/environment/archives/cafe/general/keydocs.htm>).

Enfin, l'analyse de toutes ces données épidémiologiques ne permet pas de déceler de seuil de pollution atmosphérique au dessous duquel il n'existerait pas d'effet significatif sur la mortalité au sein de la population. Tout se passe comme si, même à des niveaux très faibles de pollution, il y avait encore dans la population suffisamment de personnes sensibles pour qu'un effet soit mis en évidence (Brunekreef and Holgate, 2002). La prévention des effets sur la santé de la pollution atmosphérique urbaine ne peut donc pas uniquement reposer sur la prévision des pics de pollution, mais elle doit viser aussi à réduire les niveaux moyens de fond des polluants, afin de réduire l'exposition de l'ensemble de la population et espérer ainsi un bénéfice significatif sur la santé publique.

### C.2.3 Les chiffres de l'organisation mondiale de la santé

L'Organisation Mondiale de la Santé (OMS), est une institution spécialisée de l'Organisation des Nations unies (ONU) pour la santé publique. Selon sa constitution, l'OMS a

pour objectif d'amener tous les peuples du monde au niveau de santé le plus élevé possible, la santé étant définie comme un « état de complet bien-être physique, mental et social et ne consistant pas seulement en une absence de maladie ou d'infirmité ». Pour se faire, l'OMS s'investit dans tous les domaines de la santé, et contribue à la classification internationale des maladies, à l'assistance et à l'amélioration du niveau sanitaire des pays les moins avancés, à la prévention, surveillance, et à la mise en place de mesures sanitaires pour endiguer les épidémies, à la recherche sur les maladies, pathologies, et leurs traitements, au recueil et à la diffusion des données sanitaires des états membres, etc...

L'OMS s'est investie dans la thématique de la qualité de l'air, et en plus d'étudier les différents impacts, à courts et long termes de la qualité de l'air, l'OMS a également établi des directives concernant les concentrations, pour les principaux polluants, à ne pas dépasser. En effet, l'OMS se base sur l'évaluation des données actuelles de la qualité de l'air par des experts pour définir des directives, applicables dans le monde entier, concernant les particules fines, l'ozone, le dioxyde d'azote et le dioxyde de soufre, afin de minimiser leurs impacts sur la santé. Rien que dans le cas des particules fines, l'OMS indique qu'en réduisant leur concentration de 70 à 20  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  on pourrait réduire le nombre de décès liés à la pollution atmosphérique d'environ 15 %.

Les dernières directives en date de l'OMS sont données dans le tableau C.1. Si les directives sont données en termes de concentrations moyennes quotidiennes et annuelles, c'est pour tenir compte des effets aigus à court terme et des effets à long terme. En effet, la pollution de l'air a un effet cumulatif dans l'organisme.

TABLE C.1 – Directives de l'OMS concernant les valeurs de référence à ne pas dépasser pour les différents polluants atmosphériques.

|                 |  |
|-----------------|--|
| PM2.5           | 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne annuelle<br>25 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne sur 24 heures        |
| PM10            | 20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne annuelle<br>50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne sur 24 heures        |
| O <sub>3</sub>  | 100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne sur 8 heures   |
| NO <sub>2</sub> | 40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne annuelle<br>200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne sur 1 heure         |
| SO <sub>2</sub> | 20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne sur 24 heures<br>500 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne sur 10 minutes |

L'OMS a estimé qu'en 2012, plus de 3,7 millions de personnes sont mortes prématurément dans le monde du fait de la pollution atmosphérique, que ce soit dans les villes comme

dans les zones rurales (cf. Fig. C.3). Ce sont les personnes vivant dans les pays à revenu faible ou intermédiaire qui doivent supporter le plus le fardeau de la pollution de l'air, avec 88 % des décès survenant dans ces pays là, sachant que c'est dans la région du Pacifique Ouest et l'Asie du Sud-Est que se concentre la plus grande partie de ces décès.

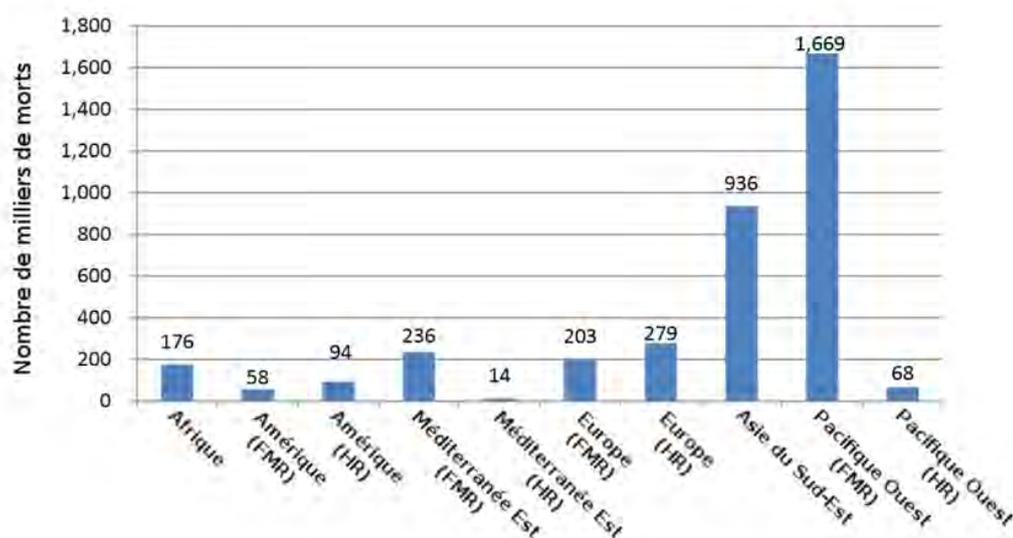


FIGURE C.3 – Nombres de morts attribués à la pollution atmosphérique dans les différentes régions du monde. Ces résultats font la distinction également entre les pays dont les revenus sont faibles ou moyens (FMR), et les pays avec un haut revenu (HR). D'après l'OMS (<http://www.who.int/>).

De plus, près de 80 % (sur les 3,7 millions) de ces décès étaient dus à des maladies coronariennes et infarctus, alors que 14 % des décès étaient dus à des maladies pulmonaires obstructives chroniques ou infections respiratoires aiguës. Enfin 6 % des décès étaient dus à des cancers du poumon (cf. Fig. C.4).

Également d'après l'OMS, rien que dans la région européenne, l'exposition aux particules fines diminuerait l'espérance de vie de chaque personne en moyenne de presque un an, principalement en raison du risque accru de maladies cardiovasculaire et respiratoire, ainsi que de cancer de poumon (cf. Fig. C.2). Elle a estimé que l'espérance de vie pourrait être augmentée d'environ 22 mois dans les villes les plus polluées d'Europe si la concentration de PM<sub>2.5</sub> à long terme était réduite de manière à atteindre la valeur de la directive annuelle. Entre autres, plus de 40 millions de personnes vivant dans les 115 plus grandes villes de l'Union européenne sont exposées à des niveaux de qualité de l'air dépassant les directives de l'OMS pour au moins un des polluants. Enfin, la pollution à l'ozone entraîne des difficultés respiratoires, déclenche les symptômes de l'asthme, et cause des maladies pulmonaires et cardiaques, qui serait à l'origine d'environ 21 000 décès prématurés par an.

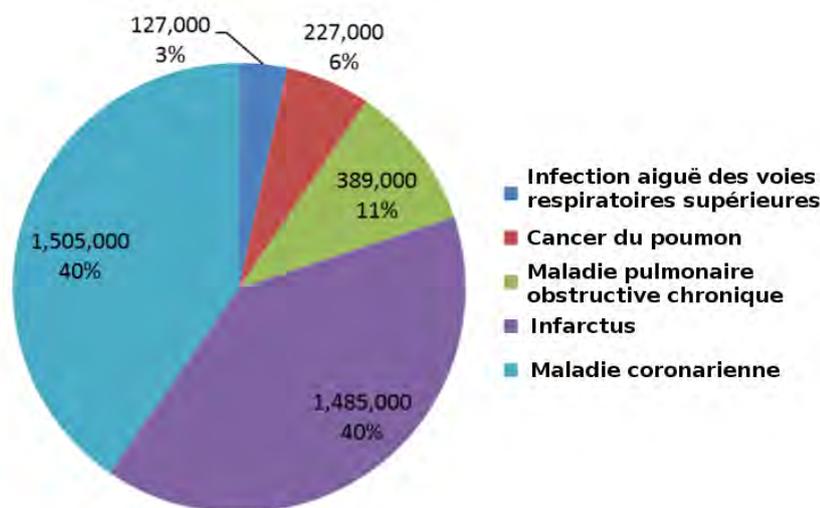


FIGURE C.4 – Répartition en pourcentage des différentes causes de décès par rapport au nombre de morts attribués à la pollution atmosphérique. D'après l'OMS (<http://www.who.int/>).

## C.3 Les effets des polluants sur l'environnement

La pollution atmosphérique ne s'arrête pas qu'aux effets sur la santé de l'homme, il faut également prendre en compte son impact sur l'environnement qui, à son tour, va avoir un effet sur l'homme. Plusieurs aspects de cette pollution ont déjà été énoncés dans les sections précédentes, on peut notamment citer la formation de pluies acides, le dépôt des polluants et contamination des sols, le stress oxydatif subi par la végétation, etc. Nous allons maintenant étudier plus en détails les principaux impacts sur l'environnement d'une mauvaise qualité de l'air.

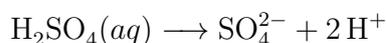
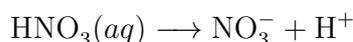
### C.3.1 Les pluies acides

Les pluies acides ont été identifiées pour la première fois au 19<sup>ème</sup> siècle, par l'anglais Robert Angus Smith, qui a mesuré les niveaux d'acidité élevés dans les pluies qui tombaient sur les régions industrielles de l'Angleterre comparé aux niveaux d'acidité beaucoup plus faibles dans les zones côtières les moins polluées. Cependant, ce n'est que lorsque les biologistes ont remarqué la forte diminution des populations de poissons dans des lacs en Norvège, au nord-est des États-Unis et au Canada, dans les années 1950 et 1960, que l'on entreprit des travaux de recherche pour déterminer les causes de ces pluies acides.

L'atmosphère contient des acides naturels, comme le  $\text{CO}_2$  (un acide faible), l'acide nitrique produit par les  $\text{NO}_x$  naturels (foudre, incendie, émission naturelle du sol), l'acide sulfurique produit suite à l'oxydation du dioxyde de soufre naturel (volcans et émission de la biosphère). Également, de façon moindre, l'atmosphère contient des bases naturelles

comme l'ammoniac ( $\text{NH}_3$ ) émis par la biosphère, et le carbonate de calcium ( $\text{CaCO}_3$ ) issu des poussières du sol en suspension. Tout cela conduit à avoir des pluies naturellement acides, avec un pH allant de 5 à 7. Le terme pluies acides, se réfère lui, aux pluies dont les valeurs de pH sont inférieures à 5, ce qui n'arrive généralement que lorsque de grandes quantités de pollution sont injectées dans l'atmosphère par l'homme.

Les principaux composants de ces pluies acides sont l'acide sulfurique et l'acide nitrique. Comme indiqué dans la section 1.3, ces acides se forment lorsque le  $\text{SO}_2$  et les  $\text{NO}_x$  sont oxydés dans l'atmosphère, qui en se dissolvant dans l'eau des nuages, vont se dissocier et libérer l'ion  $\text{H}^+$  suivant les réactions :



Bien que l'activité humaine, et en grande partie l'agriculture, libère également de grandes quantités d'ammoniac dans l'atmosphère, qui est une base pouvant neutraliser dans l'atmosphère les pluies acides en convertissant l'ion  $\text{H}^+$  en ion ammonium ( $\text{NH}_4^+$ ), le bénéfice de cette neutralisation reste illusoire car l'ion  $\text{NH}_4^+$ , une fois déposé sur le sol et consommé par la biosphère libère l'ion  $\text{H}^+$ .

Les pluies acides ont relativement peu d'effet sur l'environnement sur la plus grande partie du globe terrestre, car une fois déposé sur le sol, l'acidité est rapidement neutralisée par les bases présentes naturellement. Par exemple, l'océan contient une grande quantité d'ions carbonate ( $\text{CO}_3^{2-}$ ), et de nombreuses régions sur Terre ont des sols et des roches alcalines telles que le calcaire. Mais dans les zones ayant peu de capacité de neutralisation de l'acide, ces pluies provoquent des ravages sur les plantes, les sols, les cours d'eau, et les lacs. Par exemple, en Amérique du Nord, le nord-est des États-Unis et l'est du Canada sont particulièrement sensibles aux pluies acides, car ils ont des sols minces reposant sur un socle granitique, qui ne peut pas neutraliser l'acidité.

L'acidité élevée dans les lacs et les rivières corrode la matière organique, notamment les branchies des poissons et attaque leurs squelettes de carbonate de calcium. La figure C.5 donne les niveaux d'acidité que les organismes d'eau douce communs peuvent tolérer pour vivre et se reproduire avec succès. Également, l'acide peut dissoudre des métaux toxiques comme l'aluminium dans les sédiments du sol, rendant leur absorption possible par les plantes et les animaux, et entraînant l'intoxication de ces derniers. Enfin, les pluies acides augmente le lessivage des éléments nutritifs des sols forestiers, affaiblissant ainsi les plantes, et réduisant leurs capacités à surmonter d'autres contraintes comme la sécheresse, le stress oxydatif (cf. annexe C.3.4), ou l'infestation par des parasites.

Grâce à une politique de contrôle et de diminution de la pollution atmosphérique, notamment renforcé dans les années 1990 pour les émissions de  $\text{SO}_2$  et des  $\text{NO}_x$ , les pluies acides et leurs effets ont diminué dans le monde. Cependant, l'impact des dépôts acides sur l'environnement est un problème cumulatif, en particulier en érodant au fil du temps la capacité des sols à neutraliser l'acidité jusqu'à l'épuisement, l'acidité peut alors avoir



FIGURE C.5 – Carte représentant la tolérance à l'acidité des organismes d'eau douce communs. Tiré du site [www.epa.gov](http://www.epa.gov) de l'agence pour la protection de l'environnement des États-Unis.

des conséquences dramatiques sur l'écosystème. Il est donc essentiel pour l'environnement de continuer à diminuer les voies d'entrée de l'acide, à commencer par les émissions de polluants.

### C.3.2 L'eutrophisation

L'eutrophisation est la modification et la dégradation d'un milieu aquatique, lié en général à un apport excessif de substances nutritives tel que l'azote (provenant surtout des nitrates agricoles et des eaux usées, et secondairement de la pollution automobile), et le phosphore (provenant surtout des phosphates et des eaux usées). Cet apport augmente la production d'algues et d'espèces aquatiques, généralement associé aussi à une augmentation de la turbidité, privant le fond et la colonne d'eau de lumière, cela conduisant à rendre le milieu hypoxique puis anoxique.

En effet, le dépôt de nitrate d'ammonium fertilise les écosystèmes en fournissant de l'azote, qui peut être directement absorbé par les organismes vivants. La pollution par l'azote est transporté par les rivières et les cours d'eau jusqu'à la mer, où elle contribue à la prolifération d'algues qui appauvrissent l'oxygène dissous dans les eaux côtières. La surcharge en élément nutritif crée des zones mortes dans des régions côtières du monde entier, tels que le golfe du Mexique ou la baie de Chesapeake aux États-Unis. Les principales sources de cette pollution par les nutriments proviennent des eaux de ruissellement agricole et des dépôts atmosphériques.

L'eutrophisation peut survenir dans n'importe quel milieu aquatique, et en particulier, dans les eaux dormantes ou à débits faibles tels que les mares, les lacs, étangs, les estuaires, les golfes, les baies, etc... L'eutrophisation peut se décomposer en quelques étapes :

1. Des nutriments phosphorés et azotés sont déversés en grande quantité dans le milieu

aquatique.

2. Les eaux ainsi enrichies permettent la multiplication rapide d'espèces aquatiques (efflorescence algale, ou bloom), en particulier la prolifération d'algue ou de cyanobactéries, difficilement éliminable par les organismes présents dans l'écosystème. Ces algues et cyanobactéries vont à leur mort se minéraliser et tomber au fond du milieu aquatique.
3. La décomposition de la matière organique morte favorise la croissance des bactéries hétérotrophes qui consomment de l'oxygène dissout. De plus, le développement éventuel de plantes flottantes vont empêcher le passage de la lumière donc la photosynthèse dans les couches d'eau inférieures, et gêner également les échanges avec l'atmosphère. La consommation d'oxygène devient alors supérieure à la production d'oxygène.
4. Le milieu devient alors hypoxique puis anoxique, favorable à l'apparition de composés réducteurs et de gaz délétères tels que les thiols, méthane, etc...
5. Il peut en résulter la mort d'organismes aquatiques aérobies comme les insectes, les crustacés, les poissons, mais aussi les végétaux, dont la décomposition, consommatrice d'oxygène, amplifie le déséquilibre.

Les inconvénients majeurs liés à l'eutrophisation sont la diminution de la biodiversité, les pertes de ressources alimentaires, et la diminution de la qualité de l'eau en tant que ressource. Afin d'enrayer ce phénomène il devient essentiel de contrôler nos émissions dans l'atmosphère, et notamment de passer à une agriculture moins intensive et plus ciblée en ce qui concerne l'injection d'engrais azotés.

### C.3.3 Le dépôt des métaux lourds

Un autre phénomène lié à la pollution atmosphérique issue des activités humaines est le dépôt de métaux lourds dans l'environnement et notamment du mercure (Hg). Le mercure est un composé toxique très volatile qui a été fortement utilisé et émis dans l'atmosphère par les hommes, au cours du dernier siècle. Lorsque des matériaux contenant du mercure sont brûlés, comme par exemple la combustion du charbon ou l'incinération des déchets, le mercure est libéré dans l'atmosphère sous forme de gaz : soit sous sa forme élémentaire  $\text{Hg}^0$ , soit sous sa forme oxydée bivalente  $\text{Hg}^{2+}$ . La forme oxydée est soluble dans l'eau et forme par exemple du  $\text{HgCl}_2$ , qui est alors facilement déposé dans la zone proche de l'émission du mercure. En revanche,  $\text{Hg}^0$  n'est pas soluble dans l'eau et doit d'abord être oxydé en  $\text{Hg}^{2+}$  avant d'être déposé. Cette oxydation se déroule dans l'atmosphère sur une échelle de temps d'un an, suffisamment longue pour que le mercure puissent être transporté dans le monde entier par la circulation atmosphérique. Le dépôt de mercure est donc un problème de pollution mondial.

L'accumulation du mercure dans la biosphère, du fait des émissions anthropiques, a été mise en évidence à partir de carottes de glace et de sédiments réalisées en Antarctique, au Groenland, et à l'Ouest des États-Unis. Ces carottes indiquent que les concentrations pré-industrielles de mercure dans l'atmosphère ont varié entre 1 à 4 nanogrammes par litre, mais que depuis les 150 dernières années, les valeurs de mercure ont atteint jusqu'à 20

nanogrammes par litre.

La figure C.6 montre le cycle du mercure au sein de la biosphère. Le mercure oxydé une fois déposé peut à nouveau être converti en  $\text{Hg}^0$  et ré-émis dans l'atmosphère ainsi de façon répétée. Comme la ré-émission du mercure est sensible à la température, le mercure a au final tendance à s'accumuler dans les régions les plus froides du globe, comme l'Arctique. Un effet plus pervers du mercure oxydé est qu'une fois déposé il peut aussi être converti par des bactéries en méthylmercure organique, qui est alors facilement absorbé dans les tissus vivants, et peut notamment entrer directement dans l'organisme des poissons par la peau et les branchies. Cette accumulation dans les tissus vivants est d'autant plus important que l'on se situe haut dans la chaîne alimentaire. Il est donc peu recommandé de consommer des quantités importantes de grandes espèces de poissons prédateurs, tel que les requins et l'espadon, surtout pour les populations les plus sensibles comme les jeunes enfants et les femmes en âge de procréer, sous peine de subir les effets d'une intoxication au mercure.

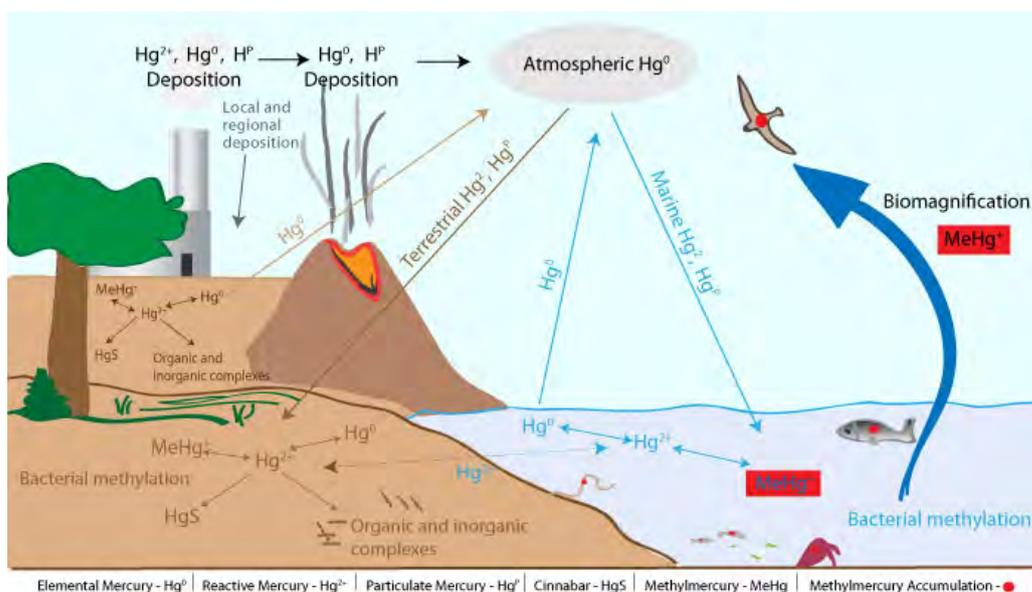


FIGURE C.6 – Schéma du cycle biogéochimique du mercure. D'après le site [www.learner.org](http://www.learner.org).

En effet, le mercure est fortement toxique, et notamment il interfère avec le cerveau et le système nerveux central. L'expression « fou comme un chapelier », et le personnage du chapelier fou dans Alice au pays des merveilles de Lewis Carroll, sont basées sur des symptômes communs parmi les chapeliers du 19<sup>ème</sup> siècle, qui après avoir inhalé des vapeurs de mercure du fait de l'utilisation de solution de nitrate de mercure pour traiter les fourrures, développés des tremblements musculaires graves, une élocution déformée, et des hallucinations. Plus récemment, les médecins ont signalé des symptômes de type vertige et trouble de la vision, chez des patients ayant mangé des quantités importantes de poissons

contenant une haute teneur en mercure, comme par exemple le thon.

Ce sont les pays développés d'Amérique du Nord et d'Europe qui sont largement responsables de l'accumulation mondiale du mercure dans l'environnement au cours du siècle passé. En réponse à la menace environnementale, depuis les 20 dernières années, ces pays ont fortement réduit leurs émissions, cependant en parallèle, l'émergence de nouveaux pays, notamment l'Asie, s'est déroulé en association avec une augmentation rapide des émissions de mercure. Actuellement il est donc difficile de savoir comment la charge mondiale de mercure va évoluer au cours des prochaines décennies. En outre, du fait que le mercure soit susceptible d'être transporté à l'échelle mondiale et que ce soit un polluant cumulatif au sein de l'environnement, la perspective d'endiguer cette forme de pollution ne passera que par la création et le respect d'accords globaux visant à stopper les émissions nouvelles de mercure.

### C.3.4 Le stress oxydatif subi par la végétation

Enfin le dernier impact environnemental lié à la pollution atmosphérique est le stress oxydatif subi par la végétation. En effet, la plupart des végétaux sont sensibles à l'ozone, mais cette sensibilité s'exprime à des degrés très différents d'une espèce à l'autre et même entre individus d'une même espèce. Les études expérimentales montrent que les espèces les plus vulnérables sont le blé, le soja, la laitue, l'oignon, la tomate, le tournesol et certaines légumineuses comme le haricot.

L'ozone est un oxydant puissant, qui réagit directement avec les composés chimiques présents à la surface des cellules végétales (parois et membranes). Les produits issus de ces réactions sont encore mal connus, mais certains peuvent également être toxiques pour les plantes. De plus, les plantes réalisent des échanges avec l'atmosphère au niveau de leurs feuilles, grâce à de minuscules orifices présents à la surface des épidermes (les stomates), permettant à la pollution atmosphérique de diffuser vers l'intérieur de la feuille. L'impact est d'autant plus important que la quantité de polluant absorbée par la feuille est grande, donc il dépend de la concentration en polluant dans l'air et du degré d'ouverture des stomates (qui est contrôlé par de nombreux facteurs physiques et physiologiques comme le rayonnement solaire, la température, l'humidité de l'air, l'état hydrique, etc.).

On distingue deux types d'impacts sur les végétaux :

- Les dégâts foliaires. Ce sont les manifestations les plus spectaculaires de ce type de pollution. Il apparaît sur la surface des feuilles des tâches ou des nécroses. On les observe habituellement après un « pic » de pollution à l'ozone. Cependant, l'impact sur le fonctionnement des plantes reste limité si seulement une faible proportion de la surface des feuilles est endommagée. Il existe des variétés de trèfle et de tabac très sensibles à l'ozone, où des nécroses apparaissent à la surface de leurs feuilles après quelques heures d'exposition à l'ozone, même à des concentrations relativement modestes (de l'ordre de 25 ppb, soit  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ). Ces variétés sont couramment utilisées lors d'opérations de biosurveillance de la qualité de l'air.

- Les dommages. Ce sont des perturbations du métabolisme des végétaux sans dégâts apparents, mais qui conduisent à une diminution de la croissance ou de la productivité des cultures. Les principaux dommages sont dûs à la réduction de la photosynthèse et l'augmentation de la respiration pour fournir l'énergie nécessaire à la réparation des tissus abîmés par l'ozone.

Ainsi, la sénescence des plantes (phénomène de vieillissement par lequel les feuilles jaunissent, sèchent et finissent par mourir) est exacerbée sous l'effet de l'ozone, les feuilles vieillissant plus vite, leur photosynthèse est donc moins longtemps efficace et conduit ainsi à une diminution de la croissance et de la production des plantes. La différence entre les capacités des végétaux pour résister aux effets de l'ozone, dépend le plus souvent de leurs capacités à mettre en œuvre des mécanismes de détoxication. Le stress oxydatif est responsable de la diminution de la biodiversité végétale, et de sa biomasse. Là aussi, l'homme a un rôle à jouer pour protéger l'environnement, en réduisant les émissions de précurseurs de l'ozone (Fuhrer et al., 1997; Ashmore, 2005).

## C.4 Le coût économique de la qualité de l'air

Une conséquence de l'impact de la pollution de l'air sur la santé et sur l'environnement, est le coût économique associé qui doit être supporté par chaque nation. En effet, il est évident que la pollution atmosphérique engendre des surcoûts sur le système de la santé et sur la production agricole, elle est également liée à la dégradation précoce d'infrastructures urbaines, et à un manque à gagner du fait de la diminution de l'activité quotidienne (arrêt de travail, hospitalisation, décès prématurés). Cependant, à cause de la diversité et de la complexité des effets associés à la pollution atmosphérique, établir une estimation de ce coût est un exercice difficile.

Pour que les gouvernements puissent prendre des mesures adaptées vis à vis de la pollution atmosphérique, il leur faut évaluer de façon la plus fiable possible à combien se chiffrent les pertes économiques liées aux effets de la mauvaise qualité de l'air. Plusieurs organismes ont réalisé des estimations de ces coûts, notamment ceux sanitaires, les sources d'erreurs les plus importantes étant liées à la valorisation monétaire de la mortalité et de la morbidité.

En effet, l'évaluation monétaire de la mortalité passe par l'évaluation quantitative des bénéfices liés à une réduction de la mortalité, soit en prenant en compte le nombre de décès prématurés, soit en prenant en compte la diminution de l'espérance de vie. Dans le cas du nombre de décès prématurés, on prend en compte la valeur d'une vie statistique, aussi appelée valeur d'évitement d'un décès, qui fait référence à l'effort que la collectivité est prête à consentir pour réduire les probabilités de décès. En France, le rapport Boiteux en 2001 donne, pour la pollution de l'air, une valeur d'évitement d'un décès de 504 000 euros. En ce qui concerne l'augmentation de l'espérance de vie, il faut évaluer l'effort que la collectivité est prête à consentir pour augmenter l'espérance de vie d'une année. Le programme de recherche européen Needs a évalué cette somme à 41 000 euros par année de vie.

De même pour l'évaluation monétaire de la morbidité, le rapport Boîteux évalue les coûts de morbidité à 30 % du coût de mortalité attribuable à la pollution de l'air, ce qui rend le coût de la morbidité étroitement dépendant du coût de la mortalité. Tandis que les valeurs de la Commission européenne sont basées sur une valorisation monétaire des différentes composantes de coûts de morbidité, comme les coûts liés à la maladie, les coûts liés à la perte de productivité, et les coûts intangibles, c'est à dire ceux liés à la souffrance, l'anxiété, les problèmes des autres, etc...

Au final, plusieurs rapports ont vu le jour, donnant un ordre d'idée des pertes économiques liées à la pollution atmosphérique. L'AFSSET (L'Agence Française de Sécurité Sanitaire de l'Environnement et du Travail) en 2007 a estimé l'impact économique de la qualité de l'air sur la santé humaine, par rapport à ce que paye la Sécurité Sociale en France. Elle a estimé que la Sécurité Sociale en France payerait entre 300 et 1300 millions d'euros par an uniquement à cause des pathologies induites par la mauvaise qualité de l'air. De plus, en 2005, le programme « Air pur pour l'Europe » (CAFE) estimait que les émissions de polluants atmosphériques régionaux, dans tous les secteurs de l'économie de l'Europe des 25, étaient responsables de dommages à la santé humaine et l'environnement d'une valeur de 280 à 794 milliards d'euros. Enfin, un rapport de l'Agence Européenne pour l'Environnement (AEE) intitulé « Revealing the costs of air pollution from industrial facilities in Europe » (« Présentation des coûts de la pollution atmosphérique provenant d'établissements industriels en Europe ») évalue les coûts du préjudice pour la santé et l'environnement induits par les polluants générés par les établissements industriels, en se basant sur les dernières données publiques du registre européen des rejets et des transferts de polluants. Ce rapport estime que le coût des dommages en 2009, imputables aux émissions des établissements industriels est de l'ordre de 102 à 169 milliards d'euros. Outre l'estimation des coûts des dommages causés par les polluants atmosphériques régionaux « traditionnels » (par exemple les oxydes d'azote, le dioxyde de soufre, les particules, etc.) fondée sur l'approche du programme CAFE, ce rapport de l'AEE estime également les coûts des dommages causés par les émissions de métaux lourds, des micropolluants organiques et du CO<sub>2</sub>, un gaz à effet de serre. Toujours selon l'AEE, les préjudices sur la santé et l'environnement induits par la pollution atmosphérique générée par l'ensemble des moyens de transport routier, s'élèveraient à hauteur d'environ 100 milliards d'euros, sachant qu'entre 43 et 46 milliards d'euros seraient causés uniquement par les poids lourds.

Même si l'incertitude actuelle sur le coût économique que représente la pollution atmosphérique reste assez importante, il n'en demeure pas moins que ce coût est prohibitif. À mesure que la recherche progresse dans la compréhension des causes et effets d'une mauvaise qualité de l'air, on est plus à même d'obtenir des évaluations de plus en plus exactes sur les coûts économiques supportés, tout comme pour évaluer les secteurs d'activités les plus préjudiciables. Actuellement, il est impossible de nier les enjeux sociétaux et économiques que représentent la qualité de l'air, les gouvernements se doivent d'investir, ne serait-ce qu'une fraction de ce qu'ils dépensent déjà à cause de la pollution atmosphérique, dans une politique visant à réduire, voire à supprimer, les émissions de polluants anthropiques, et ce afin de pouvoir obtenir un niveau de qualité de l'air satisfaisant et durable.



## Annexe D

# Lexique et définitions du vocabulaire médical

- Atopie : Désigne une susceptibilité pour un individu à présenter des signes cliniques lors du contact avec des allergènes, généralement inoffensifs pour le reste de la population.
- Bronchite : Inflammation de la muqueuse bronchique tapissant les voies respiratoires qui s'accompagne de sécrétions et d'une toux avec expectoration.
- Bronchiolite oblitérante : Bouchons du tissu fibreux dans les bronchioles respiratoires, les canaux alvéolaires et les alvéoles, en général associés à une réaction inflammatoire des poumons.
- Broncho-pneumopathie : Affection pulmonaire associant une atteinte des bronches et du tissu pulmonaire, quelle soit aiguë (infectieuse bactérienne ou virale..., toxique...) ou chronique.
- Cellule épithéliale ciliée : Cellules cylindriques hautes de 0.04 à 0.06 mm tapissant la muqueuse bronchique et permettant de filtrer les particules entrantes dans les voies respiratoires.
- Cephalée : Mal de tête.
- Conjonctivite : Inflammation de la membrane qui recouvre la face antérieure de l'oeil et l'intérieur des paupières. Elle entraîne une rougeur du blanc de l'œil et de l'intérieur des paupières.
- Détresse respiratoire : État critique caractérisé par un dysfonctionnement pulmonaire et une réduction importante de la capacité d'échanges gazeux des poumons, entraînant une dysfonction de l'oxygénation du sang.

- Dyspnée : Difficulté respiratoire.
- Emphysème : Maladie pulmonaire caractérisée par la destruction de la paroi des alvéoles.
- Fibrose : Altération du tissu pulmonaire dont les alvéoles sont enserrées et étouffées par des fibres.
- Hémoglobine : Protéine dont la principale fonction est le transport du dioxygène dans l'organisme humain et chez les autres vertébrés. L'hémoglobine se trouve essentiellement à l'intérieur des globules rouges du sang.
- Hypotension : Diminution de la pression artérielle.
- Hypothermie : Diminution de la température corporelle ne permettant plus à l'organisme d'assurer correctement les fonctions vitales.
- Hypoxie : Désigne l'inadéquation entre les besoins tissulaires en oxygène et les apports.
- Infarctus du myocarde : Nécrose (mort de cellules) d'une partie du muscle cardiaque lié à un défaut d'oxygénation de ce dernier.
- Laryngite : Inflammation du larynx, organe situé au niveau de la gorge, après la jonction du pharynx. Le larynx est l'intermédiaire entre le pharynx et la trachée et abrite les cordes vocales.
- Leucémie : Cancer des cellules de la moelle osseuse responsables de la production des cellules sanguines conduisant à une prolifération anormale et excessive de précurseurs des globules blancs, bloqués à un stade de différenciation, qui finit par envahir complètement la moelle osseuse puis le sang.
- Membrane alvéolo-capillaire : Membrane permettant les échanges gazeux de dioxygène et de dioxyde de carbone entre le sang et les alvéoles pulmonaires, au niveau cellulaire.
- Méthémoglobine : Oxydation de l'ion ferreux de l'hémoglobine en ion ferrique. L'ion ferrique est incapable de transporter le dioxygène, qui ne peut de ce fait être distribué aux tissus.
- Néphrite : Inflammation du rein provoquant l'accumulation dans le sang de toxines.

- Œdème pulmonaire : Affection pulmonaire lié à l'inondation ou l'accumulation brutale de liquides dans les poumons (alvéoles ou espaces interstitiels pulmonaires). Cet état est responsable de troubles des échanges gazeux et peut entraîner une insuffisance respiratoire.
- Pharyngite : Inflammation du pharynx, zone carrefour entre les voies aériennes et les voies digestives.
- Polynévrite : Atteinte des nerfs périphériques.
- Rhinite : Irritation et inflammation (aiguë ou chronique) des muqueuses de la cavité nasale.
- Tachycardie réflexe : Accélération du rythme cardiaque.
- Trouble de la repolarisation : Anomalie électrique de l'électrocardiogramme caractérisant un problème cardiaque.



# Annexe E

## Les différents processus modélisés dans les modèles de chimie transport

Le principe général de fonctionnement d'un CTM repose sur la résolution d'une équation différentielle décrivant l'évolution dans l'espace et le temps de la concentration chimique. Si l'on reprend la section 1.2.2, on peut décomposer l'évolution de la concentration d'une espèce chimique selon 4 processus majeurs que les CTMs vont modéliser, à savoir le transport, les émissions, le dépôt, et la chimie.

### E.1 Équation d'advection-diffusion

Si l'on s'intéresse tout d'abord au transport, on peut le représenter selon un terme général d'advection :

$$\frac{\partial \tilde{c}_i}{\partial t} = -\nabla \cdot (\tilde{c}_i \tilde{\mathbf{u}}) \quad (\text{E.1})$$

où  $\tilde{c}_i$  représente la concentration de l'espèce chimique  $i$  et  $\tilde{\mathbf{u}}$  représente la vitesse du fluide (c'est à dire les vents).

En utilisant la décomposition de Reynolds qui permet de séparer une variable instantanée en une valeur moyenne et une fluctuation, on peut décomposer la vitesse du fluide en un terme moyen  $\mathbf{u}$  et des perturbations de moyenne nulle  $\mathbf{u}'$ , tel que  $\tilde{\mathbf{u}} = \mathbf{u} + \mathbf{u}'$ , et de la même manière pour la concentration de l'espèce chimique on obtient  $\tilde{c}_i = c_i + c'_i$ . Au final, en moyennant l'équation (E.1), cette dernière devient :

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = -\nabla \cdot (c_i \mathbf{u}) - \nabla \cdot (\overline{c'_i \mathbf{u}'})$$

et à l'aide de l'équation de continuité, on peut faire l'approximation :

$$\overline{c'_i \mathbf{u}'} \simeq -\rho K \nabla \frac{c_i}{\rho}$$

ce qui nous permet de réécrire l'équation (E.1) :

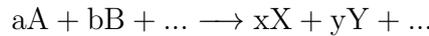
$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = -\nabla \cdot (c_i \mathbf{u}) + \nabla \cdot (\rho K \nabla \frac{c_i}{\rho}) \quad (\text{E.2})$$

où  $K$  est la matrice des coefficients de diffusion turbulente, et  $\rho$  la densité du fluide.

Ainsi le transport de l'espèce chimique dépend d'un terme d'advection,  $-\nabla \cdot (c_i \mathbf{u})$ , et d'un terme de diffusion turbulente  $\nabla \cdot (\rho K \nabla \frac{c_i}{\rho})$ .

## E.2 Équation chimique

En ce qui concerne les réactions chimiques, si l'on reprend la formulation générale on a :



Or le principe de conservation de la masse totale implique que, pour une variation  $dn_i$  du nombre de mole de chaque constituant  $i$ , on ait :

$$dn_A = \frac{a}{b} dn_B = -\frac{a}{x} dn_X = -\frac{a}{y} dn_Y$$

Et si l'on suit la variation du nombre de mole sur un intervalle de temps  $dt$  cela nous donne :

$$-\frac{1}{a} \frac{dn_A}{dt} = -\frac{1}{b} \frac{dn_B}{dt} = \frac{1}{x} \frac{dn_X}{dt} = \frac{1}{y} \frac{dn_Y}{dt}$$

On peut alors remplacer les coefficients stoechiométriques  $a, b, \dots$  par des coefficients stoechiométriques algébriques  $\nu_a, \nu_b, \dots$  ( $\nu_i$  pour l'espèce  $i$ ), en prenant par convention  $\nu_i$  négatif pour les réactifs et  $\nu_i$  positif pour les produits de la réaction. On peut ainsi définir le taux de conversion  $J$  d'une réaction donnée selon :

$$J = \frac{1}{\nu_i} \frac{dn_i}{dt}$$

Ce qui nous permet d'exprimer la vitesse  $v$  d'une réaction chimique, qui est par définition le taux de conversion par unité de volume  $V$ , ainsi :

$$v = J/V = \frac{1}{V} \left( \frac{1}{\nu_i} \frac{dn_i}{dt} \right) = \frac{1}{\nu_i} \frac{dc_i}{dt} \quad (\text{E.3})$$

On retrouve ainsi que la variation de la concentration chimique de l'espèce  $i$  dans le temps est fonction de la vitesse des réactions chimiques produisant ou détruisant  $i$ .

La détermination des vitesses de réaction  $v$  est réalisée de façon expérimentale, et conduit souvent à trouver une relation de la forme :

$$v = k c_A^n c_B^m \dots \quad (\text{E.4})$$

où  $k$  est la constante cinétique de la réaction et les nombres  $n, m, \dots$  sont les ordres partiels de la réaction respectivement par rapport aux composés  $A, B, \dots$ . Généralement les ordres partiels de la réaction sont des nombres entiers ou des fractions de nombres entiers, inférieurs à 3. La constante cinétique de la réaction  $k$  est spécifique à une réaction donnée et

est souvent dépendante de la température et de la pression.

On ajuste généralement la variation de la constante cinétique  $k$  avec la température  $T$  à l'aide de relation telle que la loi d'Arrhenius :

$$k = Ae^{-\left(\frac{E_a}{RT}\right)} \quad (\text{E.5})$$

où :

- $E_a$  est un paramètre propre à la réaction, baptisé l'énergie d'activation d'Arrhénius.
- $R$  est la constante des gaz parfaits.
- $A$  est également un paramètre propre à la réaction, appelé facteur pré-exponentiel d'Arrhénius (ou encore facteur de fréquence).

L'équation (E.5) approxime généralement  $A = \text{constante}$  ce qui est valable tant que  $E_a \gg RT$ . Cependant lorsque  $E_a$  est faible, ou lorsqu'on étudie la réaction sur une plage de température trop importante, il faut prendre en compte la dépendance de  $A$  avec la température. On utilise alors généralement la forme :

$$k = BT^n e^{-\left(\frac{E_a}{RT}\right)} \quad (\text{E.6})$$

où cette fois-ci,  $E_a$ ,  $B$ , et  $n$  sont des constantes indépendantes de  $T$ .

Lors de réactions à 3 corps (cf. section 1.3.2,  $A + B + M \rightarrow AB + M$ ), l'espèce inerte ( $M$ ) ne sert qu'à transférer de l'énergie pour stabiliser la réaction sans pour autant réagir. On peut par conséquent expliciter la dépendance avec la pression en utilisant la loi des gaz parfaits :

$$c_M = \frac{\rho}{RT}$$

Et l'étude de la constante cinétique de la réaction  $k$  débouche sur l'expression, couramment utilisé, de Troe, qui nous permet de relier la pression à la vitesse de réaction avec :

$$k = \frac{k_0 c_M}{1 + \left(\frac{k_0 c_M}{k_\infty}\right)} \times F \quad (\text{E.7})$$

avec :

$$F = F_c^{(1 + \log^2\left(\frac{k_0 c_M}{k_\infty}\right))^{-1}}$$

où  $F_c$ ,  $k_0$ , et  $k_\infty$  sont 3 paramètres propres à la réaction considérée.

Enfin dans le cas des réactions photochimiques, ou photolyse (cf. section 1.3.2,  $A + h\nu \rightarrow B + C$ ), on peut relier la vitesse de réaction au nombre de photons absorbés en suivant une relation analogue à la loi de Beer-Lambert :

$$v = F_\lambda \sigma_\lambda \phi_\lambda c_i$$

où :

- $F_\lambda$  est le flux de photon de longueur d'onde  $\lambda$  parvenant dans le volume d'étude. Il est calculé à partir de modèles de transfert radiatif.

- $\sigma_\lambda$  est la section efficace d'absorption de l'espèce chimique  $i$  à la longueur d'onde  $\lambda$  considérée.
- $\phi_\lambda$  est la fraction des molécules excitées  $i$  conduisant à la photodissociation.

Il existe également bien d'autres relations pour tenir compte d'autres types de réactions chimiques spécifiques, comme par exemple l'agrégation et la formation d'aérosols, la nucléation, ...

Au final, tous ces différents paramètres ( $A$  et  $E_a$  pour la loi d'Arrhénius ;  $F_c$ ,  $k_0$  et  $k_\infty$  pour la loi de Troe ;  $\sigma_\lambda$  et  $\phi_\lambda$  pour la photolyse...) sont obtenus à partir d'expérimentation en laboratoire. La prise en compte de la chimie dans les modèles se fait généralement en considérant un certain nombre d'espèces chimiques et les réactions chimiques associées à ces espèces, pour chacune des réactions le modèle recalcule la vitesse de réaction en utilisant les paramètres et la loi associée, et toutes ces vitesses de réactions alimentent le système d'équations différentielles à résoudre. Dans la suite on simplifiera la notation du système d'équations différentielles correspondant aux réactions chimiques affectant l'espèce chimique  $i$  en :  $\chi_i(c)$ .

### E.3 Le dépôt

L'atmosphère, et l'évolution de sa composition chimique, est également étroitement reliée à la surface de la Terre, que ce soit par la biosphère, les océans ou directement le sol. En effet, les espèces chimiques peuvent être transférées à travers ces différentes interfaces suivant des mécanismes de dépôt (transfert de l'atmosphère vers la surface) ou d'émissions (transfert de la surface vers l'atmosphère).

Comme nous l'avons vu à la section 1.2.2.4, on peut distinguer deux types de dépôts :

- Le dépôt sec, issu des processus d'absorption des constituants chimiques au niveau de la surface par le sol, la végétation, etc.
- Le dépôt humide, issu des processus de lessivage dans l'atmosphère.

Le dépôt sec est couramment modélisé à partir d'un modèle résistif linéaire, pour lequel on décrit l'évolution de la concentration entre les altitudes  $z_1$  et  $z_2$  par :

$$c_i(z_1) - c_i(z_2) = R_{tot} F_z \quad (\text{E.8})$$

où  $R_{tot}$  est le paramètre résistif du dépôt, appelé résistance totale ; et  $F_z$  est le flux vertical de dépôt de l'espèce chimique  $i$ .

Par convention, on considère que le flux de dépôt est négatif et que la concentration de surface est nulle, ce qui nous donne :

$$R_{tot}(z) = -\frac{c_i(z)}{F_z} = \frac{1}{v_d(z)}$$

où  $v_d$  représente la vitesse de dépôt.

La résistance totale (ou la vitesse de dépôt) intègre ainsi les effets de tous les processus de dépôt sec. En général on considère que  $R_{tot} = R_a + R_b + R_c$ , avec  $R_a$  un terme de résistance aérodynamique,  $R_b$  un terme de résistance de la sous-couche laminaire, et  $R_c$  un terme de résistance de surface. Si l'on étudie plus amplement ces termes de résistance, on a :

- $R_a$  représente la résistance due au transfert vertical d'un gaz dans la couche de surface atmosphérique. On peut la modéliser par :  $R_a(z) = \frac{\mathbf{u}(z)}{\mathbf{u}_*^2}$  avec  $\mathbf{u}_*$  la vitesse de friction découlant du cisaillement du vent.
- $R_b$  représente la résistance associée au transfert de gaz à travers la couche quasi-laminaire en contact avec la surface. On a recours à la paramétrisation pour la décrire et on emploie généralement la relation :  $R_b = \frac{2}{k\mathbf{u}_*} \left( \frac{Sc}{Pr} \right)^{\frac{2}{3}}$  où  $Pr = 0.72$  est le nombre de Prandtl,  $Sc = \frac{\nu}{D_x}$  est le nombre de Schmidt ( $\nu$  et  $D_x$  sont respectivement la viscosité cinématique du fluide et la diffusivité du gaz), et  $k = \frac{2\pi n}{\mathbf{u}}$  est le nombre d'onde donné par l'hypothèse de Taylor ( $n$  représente la fréquence de l'écoulement).
- Enfin  $R_c$  représente la résistance globale de la surface à l'absorption ou à la destruction du gaz. Souvent très complexe à déterminer, elle dépend fortement du type de surface considérée. Par exemple dans le cas de surface végétale, on la représente par :  $R_c = \left[ \frac{1}{R_{stm}+R_m} + \frac{1}{R_{ext}} + \frac{1}{R_{inc}+R_{sol}} \right]^{-1}$  avec  $R_{stm}$  la résistance des stomates,  $R_m$  la résistance du tissu des feuilles (mésophylle),  $R_{ext}$  la résistance des cuticules et de la surface extérieure des feuilles,  $R_{inc}$  la résistance à l'écoulement sous la canopée,  $R_{sol}$  la résistance du sol.

Le dépôt humide est modélisé généralement suivant 3 processus distincts :

- La nucléation, c'est à dire lorsque les particules servent de noyaux de condensation pour la formation de gouttelettes.
- L'interaction entre les particules/gaz et les gouttelettes dans les nuages.
- L'entraînement des particules /gaz, présents sous le nuage, vers le sol lors de précipitations.

Le dépôt humide est très efficace (comparativement au dépôt sec) mais il ne survient que sur des régions spatio-temporelles bien déterminées. On estime qu'ainsi sur tout le globe le dépôt sec  $\sim$  dépôt humide.

Par la suite, dans la représentation mathématique de l'évolution de la concentration nous exprimerons la modélisation du dépôt lié à l'espèce chimique  $i$  sous la forme de la variable  $S_i$ .

## E.4 Les sources d'émissions

Enfin la modélisation des processus d'émissions se fait généralement en distinguant les émissions biogéniques et anthropogéniques. Parmi les émissions biogéniques on distingue les

émissions océaniques (principalement des hydrocarbures non méthanique, de l'hydrogène sulfuré, du sulfure de diméthyle, des aérosols sulfatés, ...), les émissions de la végétation (COV, hydrocarbures, hydrocarbures oxygénés), les émissions de méthane provenant du sol (par méthanisation bactérienne), les émissions de composés azotés, les émissions des volcans, la combustion naturelle de la biomasse et l'érosion éolienne. Les émissions biogéniques sont généralement des émissions diffuses.

Pour les émissions anthropogéniques on distingue la combustion de biomasse anthropique, la combustion de combustibles fossiles, les émissions du secteur industriel et les émissions du secteur tertiaire. Les émissions anthropogéniques sont généralement des émissions localisées, rejetées soit au sol (trafic routier), soit en hauteur (cheminées d'usine), qui ont le plus souvent une température supérieure à celle de l'air environnant favorisant leur élévation dans la couche limite atmosphérique. Les émissions anthropogéniques suivent l'activité humaine et sont donc plus importantes en journée.

La modélisation des émissions consiste en la donnée des quantités émises en chaque point du modèle, à chaque instant, pour chaque composant chimique. On passe alors par la réalisation de bases de données d'émissions (cadastres d'émissions) créées à partir de mesures, de leur extrapolation, et de la paramétrisation des différents processus d'émissions. Comme pour les processus de dépôt, l'amélioration de la modélisation des émissions passe par la compréhension plus fine des interactions entre la surface et l'atmosphère, et la réalisation de vastes campagnes de mesures pour disposer de cadastres plus précis. L'enjeu sur ces cadastres est d'autant plus important que la modélisation globale de la chimie-transport dans l'atmosphère se fait à des échelles spatio-temporelles de plus en plus fines. Actuellement les cadastres d'émissions couramment utilisés au niveau international sont les inventaires IGAC/GEIA et EDGAR, ou encore pour l'Europe les inventaires issus du programme EMEP, ou du projet GENEMIS.

Par la suite, dans la représentation mathématique de l'évolution de la concentration nous exprimerons la modélisation des émissions liées à l'espèce chimique  $i$  sous la forme de la variable  $E_i$ .

## E.5 L'équation du transport réactif

Finalement, l'équation générale que doit résoudre les modèles de chimie-transport est l'équation dite du transport réactif :

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = -\nabla \cdot (c_i \mathbf{u}) + \nabla \cdot (\rho K \nabla \frac{c_i}{\rho}) + \chi_i(c) + E_i - S_i \quad (\text{E.10})$$

# Annexe F

## Liste des publications et conférences

- **Hache E.**, J-L. Attié, C. Tourneur, P. Ricaud, L. Coret, W.A. Lahoz, L. El Amraoui, B. Josse, P. Hamer, J. Warner, X. Liu, K. Chance, M. Höpfner, R. Spurr, V. Natraj, S. Kulawik, A. Eldering, and J. Orphal, (2014), The added value of a visible channel to a geostationary thermal infrared instrument to monitor ozone for air quality. *Atmos. Meas. Tech.*, 7, 2185-2201, 2014, doi :10.5194/amtd-7-2185-2014.
- **Hache E.**, J-L. Attié, C. Tourneur, P. Ricaud, L. Coret, W.A. Lahoz, L. El Amraoui, B. Josse, P. Hamer, J. Warner, X. Liu, K. Chance, M. Höpfner, R. Spurr, V. Natraj, S. Kulawik, A. Eldering, and J. Orphal : Added value of a geostationary thermal infrared and visible instrument to monitor ozone for air quality. *European Geosciences Union*, Vienne, 28 Avril - 2 Mai 2014.
- Lahoz W.A., J-L. Attié, R. Abida, L. El Amraoui, **E. Hache**, P. Ricaud, V-H. Peuch, J. Orphal, Monitoring Air Quality : the Role of OSSEs in Determining the Future Global Observing System, *ESA Living Planet Symposium*, Edimbourg, 9-13 Septembre 2013.
- Attié J-L., R. Abida, L. El Amraoui, **E. Hache**, P. Ricaud, V-H. Peuch, W.A. Lahoz, J. Orphal, Evidence of added values to the modeling system from specific air quality satellite missions, *DACA Conference-13 DAVOS*, Switzerland, July 2013.
- **Hache E.** : Restitution de l’ozone dans la couche limite. Viabilité du concept MAGEAQ. *POGEQA (Plateforme d’observation géostationnaire pour la qualité de l’air) Conference*, Toulouse, 26-28 Juin 2013.
- EL Amraoui L., J-L. Attié, E. Jaumouillé, F. Ravetta, G. Ancellet, P. Durand, F. Dulac, P. Ricaud, B. Sic, **E. Hache** : An overview of Modelling Activities during the TRAQA Pre-CHARMEX Campaign. *European Geosciences Union*, Vienne, 7-12 Avril 2013.

- **Hache E.**, J-L. Attié, W.A. Lahoz, L. El Amraoui, C. Tourneur, L. Coret, M. Höpfner, X. Liu, V. Natraj, S. Kulawik, and A. Eldering, Evaluation of the added value provided by ozone measurements from an instrument onboard a Geostationary satellite : The thermal infrared and visible contribution. *AGU Conference, 2012, Fall meeting*, San Francisco, USA.
  
- Attié J-L., L. El Amraoui, P. Ricaud, **E. Hache**, R. Dupont, E. Jaumouillé, V. Marecal, W. Lahoz, V-H. Peuch, T. Von Clarmann, J. Orphal, Observing simulated system experiments to qualify an Air Quality satellite mission, *39th COSPAR Scientific Assembly*, Mysore, India, 14-22 July 2012.





# Bibliographie

- Andersen, I., Lundqvista, G. R., Jensen, P. L., and F., P. D. : Human Response to Controlled Levels of Sulfur Dioxide, *Archives of Environmental Health : An International Journal*, 28, 31–39, 1974.
- Ashmore, M. R. : Assessing the future global impacts of ozone on vegetation, *Plant, Cell & Environment*, 28, 949–964, 2005.
- Atlas, R. M. : Observing system simulation experiments : Methodology, examples and limitations, *CGC/WMO Workshop, Geneva 7-9 April, WMO TD No. 868, W.M.O., Geneva, Switzerland, 1997.*
- Attié, J.-L., Abida, R., El Amraoui, L., Segers, A., Ricaud, P., Curier, L., and Eskes, H. : Impact of Spaceborne Observations on Tropospheric Composition Analysis and Forecast (ISOTROP), *Description of Nature runs used in ISOTROP OSSEs*, 10, 2013.
- Baron, P. and De La Noe, J. : Développement et validation du code MOLIERE : Chaîne de traitement des mesures micro-ondes du Satellite Odin = Development and validation of MOLIERE code : Data processing of micro-wave measurements from the Odin satellite, *Thèse, Université de Bordeaux*, 1, p. 223, 1999.
- Bazalgette Courrèges-Lacoste, G., Ahlers, B., Guldemann, B., Short, A., Veihelmann, B., and Stark, H. : The Sentinel-4/UVN instrument on-board MTG-S, 2007.
- Bechtold, P., Bazile, E., Guichard, F., Mascart, P., and Richard, E. : A Mass-flux Convection Scheme for Regional and Global Models, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 127, 869–886, 2001.
- Bencherif, H., El Amraoui, L., Sernane, N., Massart, S., Charyulu, D. V., Hauchecorne, A., and Peuch, V.-H. : Examination of the 2002 major warming in the southern hemisphere using ground-based and Odin/SMR assimilated data : stratospheric ozone distributions and tropic/mid-latitude exchange, *Can. J. Phys.*, 85, 1287–1300, 2007.
- Bousserez, N., Attie, J. L., Peuch, V. H., Michou, M., Pfister, G., Edwards, D., Emmons, L., Mari, C., Barret, B., Arnold, S. R., Heckel, A., Richter, A., Schlager, H., Lewis, A., Avery, M., Sachse, G., Browell, E. V., and Hair, J. W. : Evaluation of the MOCAGE Chemistry Transport Model during the ICARTT/ITOP Experiment, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 112, 2007.

- Brasseur, G. P., Prinn, R. G., and Alexander, A. P. : Atmospheric Chemistry in a Changing World, Eds. Springer-Verlag, p. 300 pp, 2003.
- Brion, J., Chakir, A., Daumont, D., Malicet, J., and Parisse, C. : High-resolution laboratory absorption cross section of O<sub>3</sub> : Temperature effect, *Chemical Physics Letters*, 213, 610–612, 1993.
- Brion, J., Chakir, A., Charbonnier, J., Daumont, D., Parisse, C., and Malicet, J. : Absorption spectra measurements for the Ozone molecule in the 350–830 nm region, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 30 (2), 291–299, 1998.
- Brunekreef, B. and Holgate, S. : Air Pollution and Health, *Lancet*, 360, 1233–1242, 2002.
- Buis, S., Piacentini, A., and Déclat, D. : PALM : a computational framework for assembling high-performance computing applications, *Concurrency Computat. : Pract. Exper.*, 18, 231–245, 2006.
- Burrows, J. P., Bergametti, G., Bovensmann, H., Flaud, J.-M., Orphal, J., Noël, S., Monks, P., Corlett, G., Goede, A. P., von Clarmann, T., Steck, T., Fischer, H., and Friedl-Vallon, F. : The Geostationary Tropospheric Pollution Explorer (GeoTROPE) Mission : Objectives and Requirements, *Advances in Space Research*, 34, 682–687, 2004.
- Carli, B., Aubertin, G., Birk, M., Carlotti, M., Castelli, E., Ceccherini, S., D’Alba, L., Dehn, A., De laurentis, M., Dinelli, B. M., Dudhia, A., Fehr, T., Fischer, H., Flaud, J. M., Funke, B., Gessner, R., Höpfner, M., Kiefer, M., Lopez-Puertas, M., Oelhaf, H., Perron, G., Kleinert, A., Mosner, P., Niro, F., Raspollini, P., Remedios, J., Ridolfi, M., Sembhi, H., Sgheri, L., von Clarmann, T., Wagner, G., and Weber, H. : The Global Picture of the Atmospheric Composition Provided by MIPAS on ENVISAT, in : *IEEE International Symposium on Geoscience and Remote Sensing IGARSS*, pp. 1860–1863, 2012.
- Cathala, M. L. : Assimilation de mesures chimiques d’ozone au niveau de la tropopause dans un Modèle de Chimie-Transport Global, Thèse, Université Paul Sabatier, 1, 2004.
- CEOS : A Geostationary Satellite Constellation for Observing Global Air Quality : An International Path Forward. CEOS Atmospheric Composition Constellation, version 4, 41 pp, URL [www.ceos.org/images/ACC/AC\\_Geo\\_Position\\_Paper\\_v4.pdf](http://www.ceos.org/images/ACC/AC_Geo_Position_Paper_v4.pdf), 2011.
- Chance, K., Liu, X., Suleiman, R. M., Flittner, D. E., Al-Saadi, J., and Janz, S. J. : Tropospheric emissions : Monitoring of pollution (TEMPO), *Earth Observing Systems XVIII, Proc. SPIE 8866*, 88 660D, 2013.
- Claeyman, M., Attie, J.-L., Peuch, V.-H., El Amraoui, L., Lahoz, W. A., Josse, B., Joly, M., Barre, J., Ricaud, P., Massart, S., Piacentini, A., von Clarmann, T., Höpfner, M., Orphal, J., Flaud, J.-M., and Edwards, D. P. : A Thermal Infrared Instrument onboard a Geostationary Platform for CO and O<sub>3</sub> Measurements in the Lowermost Troposphere : Observing System Simulation Experiments (OSSE), *Atmospheric Measurement Techniques*, 4, 1637–1661, 2011a.

- Claeyman, M., Attie, J.-L., Peuch, V.-H., El Amraoui, L., Lahoz, W. A., Josse, B., Ricaud, P., von Clarmann, T., Höpfner, M., Orphal, J., Flaud, J.-M., Edwards, D. P., Chance, K., Liu, X., Pasternak, F., and Cantie, R. : A Geostationary Thermal Infrared Sensor to Monitor the Lowermost Troposphere : O<sub>3</sub> and CO retrieval studies, *Atmospheric Measurement Techniques*, 4, 297–317, 2011b.
- Clerbaux, C., Boynard, A., Clarisse, L., George, M., Hadji-Lazaro, J., Herbin, H., Hurtmans, D., Pommier, M., Razavi, A., Turquety, S., Wespes, C., and Coheur, P. F. : Monitoring of Atmospheric Composition using the Thermal Infrared IASI/MetOp Sounder, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9, 6041–6054, 2009.
- Cooper, O. R., Parrish, D. D., Stohl, A., Trainer, M., Nédélec, P., Thouret, V., Cammas, J. P., Oltmans, S. J., Johnson, B. J., Tarasick, D., Leblanc, T., McDermid, I. S., Jaffe, D., Gao, R., Stith, J., Ryerson, T., Aikin, K., Campos, T., Weinheimer, A., and Avery, M. A. : Increasing springtime ozone mixing ratios in the free troposphere over western North America, *Nature*, 463, 344–348, 2010.
- Cuesta, J., Eremenko, M., Liu, X., Dufour, G., Cai, Z., Höpfner, M., von Clarmann, T., Sellitto, P., Foret, G., Gaubert, B., Beekmann, M., Orphal, J., Chance, K., Spurr, R., and Flaud, J. M. : Satellite Observation of Lowermost Tropospheric Ozone by Multispectral Synergism of IASI Thermal Infrared and GOME-2 Ultraviolet Measurements over Europe, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 9675–9693, 2013.
- Curier, R., Timmermans, R., Calabretta-Jongen, S., Eskes, H., Segers, A., Swart, D., and Schaap, M. : Improving ozone forecasts over Europe by synergistic use of the LOTOS-EUROS chemical transport model and in-situ measurements, *Atmospheric Environment*, 60, 217–226, 2012.
- Daget, N. : Revue des méthodes d'assimilation, Technical report CERFACS, 1, 2007.
- Daumont, M., Brion, J., Charbonnier, J., and Malicet, J. : Ozone UV spectroscopy. I : Absorption cross-sections at room temperature, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 15 (2), 145–155, 1992.
- Deeter, M., Edwards, D., Gille, J., and Drummond, J. : Sensitivity of MOPITT observations to carbon monoxide in the lower troposphere, *Journal of Geophysical Research*, 112, D24306, 2007.
- Devalia, J. L., Campbell, A. M., Sapsford, R. J., Rusznak, C., Quint, D., Godard, P., Bousquet, J., and J., D. R. : Effect of Nitrogen Dioxide on Synthesis of Inflammatory Cytokines Expressed by Human Bronchial Epithelial Cells In Vitro, *American Journal of Respiratory Cell and Molecular Biology*, 9, 271–278, 1993.
- Devalia, J. L., Rusznak, C., Herdman, M. J., Trigg, C. J., Davies, R. J., and Tarraf, H. : Effect of nitrogen dioxide and sulphur dioxide on airway response of mild asthmatic patients to allergen inhalation, *The Lancet*, 344, 1668–1671, 1994.
- Dimet, F.-X. L. and Talagrand, O. : Variational algorithms for analysis and assimilation of meteorological observations : theoretical aspects, *Tellus*, 38A, 97–110, 1986.

- Divakarla, M., Barnet, C., Goldberg, M., Maddy, E., Irion, F., Newchurch, M., Liu, X., Wolf, W., Flynn, L., Labow, G., Xiong, X., Wei, J., and Zhou, L. : Evaluation of Atmospheric Infrared Sounder ozone profiles and total ozone retrievals with matched ozonesonde measurements, ECMWF ozone data, and Ozone Monitoring Instrument retrievals, *J. Geophys. Res.*, 113, D15, 2008.
- Dominici, F., Peng, R. D., Barr, C. D., and Bell, M. L. : Protecting Human Health From Air Pollution Shifting From a Single-pollutant to a Multipollutant Approach, *Epidemiology*, 21, 187–194, 2010.
- Edwards, D. P., Arellano Jr., A. F., and Deeter, M. N. : A satellite observation system simulation experiment for carbon monoxide in the lowermost troposphere, *J. Geophys. Res.*, 114, D14 304, 2009.
- El Amraoui, L., Peuch, V.-H., Ricaud, P., Massart, S., Semane, N., Teyssède, H., Cariolle, D., and Karcher, F. : Ozone loss in the 2002–2003 Arctic vortex deduced from the assimilation of Odin/SMR O<sub>3</sub> and N<sub>2</sub>O measurements : N<sub>2</sub>O as a dynamical tracer, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 134, 217–228, 2008.
- El Amraoui, L., Attié, J.-L., Semane, N., Claeyman, M., Peuch, V.-H., Warner, J., Ricaud, P., Cammas, J.-P., Piacentini, A., Cariolle, D., Massart, S., and Bencherif, H. : Midlatitude stratosphere-troposphere exchange as diagnosed by MLS O<sub>3</sub> and MOPITT CO assimilated fields, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 2175–2194, 2010.
- Fischer, M., Birk, M., Blom, C., Carli, B., Carlotti, M., von Clarmann, T., Delbouille, L., Dudhia, A., Ehhalt, D., Endemann, M., Flaud, J.-M., Gessner, R., Kleinert, A., Koopmann, R., Langen, J., Lopéz-Puertas, M., Mosner, P., Nett, H., Oelhaf, H., Perron, G., Remedios, J., Ridolfi, M., Stiller, G., and Zander, R. : MIPAS : an Instrument for Atmospheric and Climate Research, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8, 2151–2188, 2008.
- Fischer, R. A. : *Statistical Methods for Research Workers*, Oliver and Boyd, Edinburgh, 1925.
- Fishman, J., Bowman, K. W., Burrows, J. P., Richter, A., Chance, K. V., Edwards, D. P., Martin, R. V., Morris, G. A., Pierce, R. B., Ziemke, J. R., Al-Saadi, J. A., Creilson, J. K., Schaack, T. K., and Thompson, A. M. : Remote Sensing of Tropospheric Pollution from Space, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 89, 805–821, 2008.
- Flaud, J., Orphal, J., Bergametti, G., Deniel, C., von Clarmann, T., Friedl-Vallon, F., Steck, T., Fischer, H., Bovensmann, H., Burrows, J., Carlotti, M., Ridolfi, M., and Palchetti, L. : The Geostationary Fourier Imaging Spectrometer (GeoFIS) as part of the Geostationary Tropospheric Pollution Explorer (GeoTroPE) Mission : Objectives and Capabilities, in : *Trace Constituents in the Troposphere and Lower Stratosphere*, edited by Burrows, JP and Thompson, AM, vol. 34 of *Advances in Space Research*, pp. 688–693, 2nd World Space Congress/34th COSPAR Scientific Assembly, HOUSTON, TX, Oct 10-19, 2002, 2004.

- Fu, D., Worden, J. R., Liu, X., Kulawik, S. S., Bowman, K. W., and Natraj, V. : Characterization of Ozone Profiles Derived from Aura TES and OMI Radiances, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 3445–3462, 2013.
- Fuhrer, J., Skärby, L., and Ashmore, M. R. : Critical levels for ozone effects on vegetation in Europe, *Environmental Pollution*, 97, 91–106, 1997.
- Gandin, L. S. : Objective Analysis of Meteorological Fields, *Gidrometeorologich eskoe Izdatel 'sivo*, 1, 1963.
- Gelb, A. : Applied Optimal Estimation, Academic Press, New York, 1974.
- Giorgi, F. and Chameides, W. : Rainout lifetimes of highly soluble aerosols and gases as inferred from simulations with a general circulation model, *J. Geophys. Res.*, 91, 14 367–14 376, 1986.
- Gorshelev, V., Serdyuchenko, A., Weber, M., Chehade, W., and Burrows, J. P. : High spectral resolution ozone absorption cross-sections - Part 1 : Measurements, data analysis and comparison with previous measurements around 293 K, *Atmospheric Measurement Techniques*, 7, 609–624, doi :10.5194/amt-7-609-2014, 2014.
- Hache, E., Attié, J.-L., Tourneur, C., Ricaud, P., Coret, L., Lahoze, W. A., El Amraoui, L., Josse, B., Hamer, P., Warner, J., Liu, X., Chance, K., Höpfner, M., Spurr, R., Natraj, V., Kulawik, S., Eldering, A., and Orphal, J. : The added value of a visible channel to a geostationary thermal infrared instrument to monitor ozone for air quality, *Atmos. Meas. Tech.*, 7, 2185–2201, 2014.
- Hanel, R. A., Schlachman, B., Rogers, D., and Vanous, D. : Nimbus 4 Michelson Interferometer, *Applied Optics*, 10, 1376–1382, 1971.
- Hillel, S. K., Devlin, R. B., Graham, D. E., Mann, R., McGee, M. P., Horstman, D. H., Kozumbo, W. J., Becker, S., House, D. E., McDonnell, W. F., and Bromberg, P. A. : Ozone-induced Inflammation in the Lower Airways of Human Subjects, *American Review of Respiratory Disease*, 139, 407–415, 1989.
- Hollingsworth, A., Engelen, R. J., Textor, C., Benedetti, A., Boucher, O., Chevallier, F., Dethof, A., Elbern, H., Eskes, H., Flemming, J., Granier, C., Kaiser, J. W., Morcrette, J.-J., Rayner, P., Peuch, V.-H., Rouil, L., Schultz, M. G., Simmons, A. J., and Consortium, G. : Toward a Monitoring and Forecasting System for Atmospheric Composition : The GEMS Project, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 89, 1147+, 2008.
- Holloway, A. M. and Wayne, R. P. : *Atmospheric Chemistry*, Springer, 2010.
- Höpfner, M., Stiller, G. P., Kuntz, M., von Clarmann, T., Echle, G., Funke, B., Glatthor, N., Hase, F., Kemnitzer, H., and Zorn, S. : The Karlsruhe Optimized and Precise Radiative Transfer Algorithm, Part II : Interface to Retrieval Applications, *Optical Remote Sensing of the Atmosphere and Clouds*, vol. 3501, 186–195, 1998.

- IGACO : The Changing Atmosphere : An Integrated Global Atmospheric Chemistry Observation theme for the IGOS Partnership. ESA SP-1282, GAW Rep 159, WMO/TD-1235, 72 pp, URL <ftp://ftp.wmo.int/Documents/PublicWeb/arep/gaw/gaw159.pdf>, 2004.
- Ignaccolo, R., Ghigo, S., and Giovenali, E. : Analysis of air quality monitoring networks by functional clustering, *Environmetrics*, 19, 672–686, 2008.
- Jacob, D. J. : Heterogeneous chemistry and tropospheric ozone, *Atmos. Env.*, 34, 2131–2159, 2000.
- Josse, B., Simon, P., and Peuch, V. : Radon Global Simulations with the Multiscale Chemistry and Transport Model MOCAGE, *Tellus Series B-Chemical and Physical Meteorology*, 56, 339–356, 2004.
- Kalman, R. E. : A new approach to linear filtering and prediction problems, *J. Basis. Eng.*, 82D, 35–45, 1960.
- Kalman, R. E. and Bucy, R. S. : New results in linear filtering and prediction theory, *J. Bas. Eng.*, 83, 95–107, 1961.
- Katsouyanni, K., Touloumi, G., Spix, C., Schwartz, J., Balducci, F., Medina, S., Rossi, G., Wojtyniak, B., Sunyer, J., Bacharova, L., P., S. J., Ponka, A., and Anderson, H. R. : Short term effects of ambient sulphur dioxide and particulate matter on mortality in 12 European cities : results from time series data from the APHEA project, *BMJ*, 314, 1658–1667, 1997.
- Koelemeijer, R., de Haan, J., and Stammes, P. : A Database of Spectral Surface Reflectivity in the Range 335–772 nm Derived from 5.5 Years of GOME Observations, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 108, 2003.
- Kranenburg, R., Hendriks, C., Schaap, M., and Segers, A. : Source apportionment using LOTOS-EUROS : module description and evaluation, *Geosci. Model Dev.*, 6, 721–733, 2013.
- Kroon, M., De Haan, J. F., Veeffkind, J. P., Froidevaux, L., Wang, R., Kivi, R., and Hakkarainen, J. J. : Validation of operational ozone profiles from the Ozone Monitoring Instrument, *J. Geophys. Res.*, 116, D18, 2011.
- Laan, E., de Vries, J., Kruizinga, B., Visser, H., Levelt, P., van den Oord, G., Maelkki, A., Leppelmeier, G., and Hilsenrath, E. : Ozone Monitoring with the OMI Instrument, in : *Imaging Spectrometry VI. Proceedings of the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE)*, edited by Descour, MR and Shen, SS, vol. 4132, pp. 334–343, Conference on Imaging Spectrometry VI, SAN DIEGO, CA, JUL 31-AUG 02, 2000, 2000.
- Lahoz, W., Brugge, R., Jackson, D., Migliorini, S., Swinbank, R., Lary, D., and Lee, A. : An Observing System Simulation Experiment to Evaluate the Scientific Merit of Wind and Ozone Measurements from the Future SWIFT Instrument, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 131, 503–523, 2005.

- Lahoz, W. A., Errera, Q., Swinbank, R., and Fonteyn, D. : Data assimilation of stratospheric constituents : a review, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 5745–5773, 2007.
- Lahoz, W. A., Peuch, V. H., Orphal, J., Attie, J. L., Chance, K., Liu, X., Edwards, D., Elbern, H., Flaud, J. M., Claeys, M., and El Amraoui, L. : Monitoring Air Quality from Space : The Case for the Geostationary Platform, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 93, 221–233, 2012.
- Landgraf, J. and Hasekamp, O. P. : Retrieval of Tropospheric Ozone : The Synergistic Use of Thermal Infrared Emission and Ultraviolet Reflectivity Measurements from Space, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 112, 2007.
- Lautie, N. : I. Traitement des mesures satellitaires sub-millimétriques effectuées par ODIN/SMR ; Restitution non-linéaire de la vapeur d'eau. II. Etude strato-mésosphérique de HCN au moyen de mesures micro-ondes., Thèse, Université Pierre et Marie Curie, 1, p. 216, 2003.
- Lee, S., Hong, Y., Song, C.-K., Lee, J., Choi, W.-J., Kim, D., Moon, K.-J., and Kim, J. : Plan of Korean Geostationary Environment Satellite over Asia-Pacific Region, *Geophysical Research Abstracts*, Abstract EGU-2010-7595-1, URL <http://meetingorganizer.copernicus.org/EGU2010/EGU2010-7595-1.pdf>, 2010.
- Lefevre, F., Brasseur, G., Folkins, I., Smith, A., and Simon, P. : Chemistry of the 1991–1992 Stratospheric Winter - 3-Dimensional Model Simulations, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 99, 8183–8195, 1994.
- Levenberg, K. : A method for the solution of certain nonlinear problems in least squares, *Quart. Appl. Math.*, 2, 164, 1944.
- Lions, J.-L. : Contrôle optimal de systèmes gouvernés par des équations aux dérivées partielles, DUNOD, 1, 1968.
- Liu, X., Chance, K., Sioris, C. E., and Kurosu, T. P. : Impact of using different ozone cross sections on ozone profile retrievals from Global Ozone Monitoring Experiment (GOME) ultraviolet measurements, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7, 3571–3578, doi :10.5194/acp-7-3571-2007, 2007.
- Liu, X., Chance, K., Sioris, C., Spurr, R., Kurosu, T., Martin, R., and Newchurch, M. : Ozone Profile and Tropospheric Ozone Retrievals from the Global Ozone Monitoring Experiment : Algorithm Description and Validation, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 110, 2005.
- Louis, J. : Parametric Model of Vertical Eddy Fluxes in the Atmosphere, *Boundary-Layer Meteorology*, 17, 187–202, 1979.
- Malicet, J., Daumont, D., Charbonnier, J., Parisse, C., Chakir, A., and Brion, J. : Ozone UV spectroscopy. II. Absorption cross-sections and temperature dependence, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 21 (3), 263–273, 1995.

- Manders, A., Schaap, M., and Hoogerbrugge, R. : Testing the capability of the chemistry transport model LOTOS-EUROS to forecast PM10 levels in the Netherlands, *Atmospheric Environment*, pp. 4050–4059, 2009.
- Mari, C., Jacob, D. J., and Bechtold, P. : Transport and scavenging of soluble gases in a deep convective cloud, *J. Geophys. Res.*, 105, 22 255–22 267, 2000.
- Marquardt, D. : An Algorithm for Least-Squares Estimation of Nonlinear Parameters, *Journal of the Society for Industrial and Applied Mathematics*, 11, 431–441, 1963.
- Martin, R. V. : Satellite Remote Sensing of Surface Air Quality, *Atmospheric Environment*, 42, 7823–7843, 2008.
- Massart, S., Cariolle, D., and Peuch, V.-H. : Towards an improvement of the atmospheric ozone distribution and variability by assimilation of satellite data, *C. R. Geosci.*, 337, 1305–1310, 2005.
- Massart, S., Piacentini, A., Cariolle, D., El Amraoui, L., and Semane, N. : Assessment of the quality of the ozone measurements from the Odin/SMR instrument using data assimilation, *Can. J. Phys.*, 85, 1209–1223, 2007.
- Massart, S., Clerbaux, C., Cariolle, D., Piacentini, A., Turquety, S., and Hadji-Lazaro, J. : First steps towards the assimilation of IASI ozone data into the MOCAGE-PALM system, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5073–5091, 2009.
- Masutani, M., Schlatter, T. W., Errico, R. M., Stoffelen, A., Andersson, E., Lahoz, W. A., Woollen, J. S., David Emmit, G., Riishojgaard, L.-P., and Lord, S. J. : Observing System Simulation Experiments, in *Data Assimilation : Making Sense of Observations*, W. A. Lahoz, B. Khatattov, R. Ménard, Eds. Springer, July, 2010.
- Masutani, M., Woollen, J. S., Lord, S. J., Emmitt, G. D., Kleespies, T. J., Wood, S. A., Greco, S., Sun, H., Terry, J., Kapoor, V., Treadon, R., and Campana, K. A. : Observing System Simulation Experiments at the National Centers for Environmental Prediction, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 115, 2010.
- McNair, L., Harley, R., and Russell, A. : Spatial Inhomogeneity in Pollutant Concentrations, and their Implications for Air Quality Model Evaluation, *Atmospheric Environment*, 30, 4291–4301, 1996.
- Michou, M. : Modélisation du dépôt sec et des émissions d'espèces chimiques d'intérêt pour la qualité de l'air et pour la composition de la troposphère, Thèse, Université Paul Sabatier, 1, 2005.
- Michou, M. and Peuch, V.-H. : Surface exchanges in the MOCAGE multiscale Chemistry and Transport Model, *Water Res.*, 15, 173–203, 2002.
- Michou, M., Laville, P., Serca, D., Fotiadi, A., Bouchou, P., and Peuch, V.-H. : Measured and modeled dry deposition velocities over the ESCOMPTE area, *Atmos. Res.*, 47, 89–116, 2004.

- Ministère de l'Écologie et du Développement Durable : Bilan : Pollution par l'ozone au cours de l'été 2003, 2003.
- Mues, A., Kuenen, J., Hendriks, C., Manders, A., Segers, A., Scholz, Y., Hueglin, C., Builtjes, P., and Schaap, M. : Sensitivity of air pollution simulations with LOTOS-EUROS to temporal distribution of anthropogenic emissions, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 939–955, 2014.
- Munro, R. : Future EUMETSAT satellite missions, URL [http://earth.eo.int/workshops/Volcano/files/EUMETSAT\\_Future\\_Missions\\_Rose\\_Munro.pdf](http://earth.eo.int/workshops/Volcano/files/EUMETSAT_Future_Missions_Rose_Munro.pdf), 2011.
- Nadel, J. A., Salem, H., Tamplin, B., and Tokiwa, Y. : Mechanism of bronchoconstriction during inhalation of sulfur dioxide, *Journal of Applied Physiology*, 20, 164–167, 1965.
- Natraj, V., Liu, X., Kulawik, S., Chance, K., Chatfield, R., Edwards, D. P., Eldering, A., Francis, G., Kurosu, T., Pickering, K., Spurr, R., and Worden, H. : Multi-Spectral Sensitivity Studies for the Retrieval of Tropospheric and Lowermost Tropospheric Ozone from Simulated Clear-Sky GEO-CAPE Measurements, *Atmospheric Environment*, 45, 7151–7165, 2011.
- Noe, N. : Etude de fonctions de distribution de la réflectance bidirectionnelle, Thèse, Université Jean Monnet de Saint-Etienne, 1, p. 174, 1999.
- Orphal, J., Bergametti, G., Beghin, B., Hébert, J.-P., Steck, T., and Flaud, J.-M. : Monitoring tropospheric pollution using infrared spectroscopy from geostationary orbit, *Comptes Rendus Physique*, 6, 888–896, 2005a.
- Orphal, J., Bergametti, G., Beghin, B., Hébert, P., Steck, T., and Flaud, J. : Monitoring Tropospheric Pollution using Infrared Spectroscopy from Geostationary Orbit, *Comptes Rendus Physique*, 6, 888–896, 2005b.
- Peuch, V.-H., Attié, J.-L., Claeysman, M., El Amraoui, L., Ricaud, P., Semane, N., Massart, S., Piacentini, A., Cariolle, D., Flaud, J.-M., Bergametti, G., Cantié, R., Pasternak, F., Lehors, L., von Clarmann, T., Höpfner, M., and Orphal, J. : Data Assimilation Experiments within the POGQA Project, *Eos, Trans. Amer. Geophys. Union*, 90 (Fall Meeting Suppl.), Abstract A51M-05, 2009.
- Peuch, V.-H., Orphal, J., Attié, J.-L., Chance, K. V., Liu, X., Edwards, D., Elbern, H., Flaud, J.-M., Lahoz, W., Beekmann, M., Bergametti, G., Dufour, G., Eremenko, M., Brasseur, G., Buchmann, B., Builtjes, P., Carlotti, M., Ridolfi, M., Claeysman, M., Ricaud, P., von Clarmann, T., Höpfner, M., Vogel, B., Dudhia, A., El Amraoui, L., Joly, L., Josse, B., Eldering, A., Funke, B., Hov, O., Jacob, D., Kasai, Y., Kurosu, T. P., de Mazière, M., Ménard, R., Menut, L., Palmer, P., Poisson, N., Rouil, L., Saiz-Lopez, A., Tanre, D., Warner, J., Cantié, R., Desmazières, Y., Maliet, E., and Pasternak, F. : MAGEAQ : Monitoring the Atmosphere from Geostationary Orbit for European Air Quality, *Earth Explorer Opportunity Mission EE-8 Proposal*, ESA, 185 pp, 2010.

- Pisso, I., Real, E., Law, K. S., Legras, B., Bousserez, N., Attié, J.-L., and Schlager, H. : Estimation of mixing in the troposphere from Lagrangian trace gas reconstructions during long-range pollution plume transport, *J. Geophys. Res.*, 114, D19 301, 2008.
- Pope, C. A. and Dockery, D. W. : Health Effects of Fine Particulate Air Pollution : Lines that Connect, *Journal of the Air Waste Management Association*, 56, 709–742, 2006.
- Rabier, F., Järvinen, H., Kilnder, E., Mahfouf, J.-F., and Simmons, A. : The ECMWF operational implementation of four-dimensional variational assimilation. part i : Experimental results with simplified physics, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 126, 1143–1170, 2000.
- Ricaud, P., Attié, J.-L., Teyssèdre, H., El Amraoui, L., Peuch, V.-H., Matricardi, M., and Schluessel, P. : Equatorial total column of nitrous oxide as measured by IASI on MetOp-A : Implications for transport processes, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 3947–3956, 2009.
- Richter, A., Wittrock, F., Weber, M., and P., B. J. : Evaluating the potential of GOME-2 ozone column retrievals in the Chappuis bands, in : EGU General Assembly 2012, held 22-27 April, 2012 in Vienna, Austria., p.1747, 2012.
- Rodgers, C. D. : *Inverse Methods for Atmospheric Sounding : Theory and Practice*, World Scientific, 2000.
- Rothman, L. S., Jacquemart, D., Barbe, A., Chris Benner, D., Birk, M., Brown, L. R., Carleer, M. R., Chackerian Jr., C., Chance, K., Coudert, L. H., Dana, V., Devi, V. M., Flaud, J.-M., Gamache, R. R., Goldman, A., Hartmann, J.-M., Jucks, K. W., Maki, A. G., Mandin, J.-Y., Massie, S. T., Orphal, J., Perrin, A., Rinsland, C. P., Smith, M. A. H., Tennyson, J., Tolchenov, R. N., Toth, R. A., Vander Auwera, J., Varanasi, P., and Wagner, G. : The HITRAN 2004 Molecular Spectroscopic Database, *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 96, 139–204, 2005.
- Rothman, L. S., Gordon, I. E., Barbe, A., Chris Benner, D., Bernath, P. F., Birk, M., Boudon, V., Brown, L. R., Campargue, A., Champion, J.-P., Chance, K., Coudert, L. H., Dana, V., Devi, V. M., Fally, S., Flaud, J.-M., Gamache, R. R., Goldman, A., Jacquemart, D., Kleiner, I., Lacome, N., Lafferty, W. J., Mandin, J.-Y., Massie, S. T., N., M. S., E., M. C., Moazzen-Ahmadi, N., Naumenko, O. V., Nikitin, A. V., Orphal, J., Perevalov, V. I., Perrin, A., Predoi-Cross, A., Rinsland, C. P., Rotger, M., Simeckova, M., Smith, M. A. H., Sung, K., Tashkun, S. A., Tennyson, J., Toth, R. A., Vandaele, A. C., and Vander Auwera, J. : The HITRAN 2008 Molecular Spectroscopic Database, *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 110 (9-10), 533–572, 2009.
- Rouïl, L., Honoré, C., Vautard, R., Beekmann, M., Bessagnet, B., Malherbe, L., Meleux, F., Dufour, A., Elichegaray, C., Flaud, J.-M., Menut, L., Martin, D., Peuch, A., Peuch, V.-H., and Poisson, N. : An Operational Forecasting and Mapping System for Air Quality in Europe, *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 90, 73–83, 2008.
- Sasaki, Y. K. : An objective analysis based on the variational method, *J. Met. Soc. Japan*, II(36), 77–88, 1958.

- Sasaki, Y. K. : Some basic formalisms in numerical variational analysis, *Mon. Wea. Rev.*, 98, 875–883, 1970.
- Schaap, M., Sauter, F., Timmermans, R., Roemer, M., Velders, G., Beck, J., and Builtjes, P. : The LOTOS-EUROS model : description, validation and latest developments, *Int. J. Environment and Pollution*, 32, 270–290, 2008.
- Schutgens, N. and Stammes, P. : A Novel Approach to the Polarization Correction of Spaceborne Spectrometers, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 108, 2003.
- Sellitto, P., Dufour, G., Eremenko, M., Cuesta, J., Forêt, G., Gaubert, B., Beekmann, M., Peuch, V.-H., and Flaud, J.-M. : Monitoring the lowermost tropospheric ozone with thermal infrared observations from a geostationary platform : performance analyses for a future dedicated instrument, *Atmos. Meas. Tech.*, 7, 391–407, 2014.
- Semane, N., Peuch, V.-H., El Amraoui, L., Bencherif, H., Massart, S., Cariolle, D., Attié, J.-L., and Abidab, R. : An observed and analysed stratospheric ozone intrusion over the high Canadian Arctic UTLS region during the summer of 2003, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 133, 171–178, 2007.
- Solberg, S., Hov, S., Sovde, A., Isaksen, I. S. A., Coddeville, P., De Backer, H., Forster, C., Orsolini, Y., and Uhse, K. : European surface ozone in the extreme summer 2003, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 113, D7, 2008.
- Spurr, R. : Linearized pseudo-spherical scalar and vector discrete ordinate radiative transfer models for use in remote sensing retrieval problems, *Light Scattering Reviews*, pp. 229–275, 2008.
- Spurr, R., de Haan, J., van Oss, R., and Vasilkov, A. : Discrete-Ordinate Radiative Transfer in a Stratified Medium with First-Order Rotational Raman Scattering, *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 109, 404–425, 2008.
- Spurr, R. J. D. : VLIDORT : A Linearized Pseudo-Spherical Vector Discrete Ordinate Radiative Transfer Code for Forward Model and Retrieval Studies in Multilayer Multiple Scattering Media, *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 102, 316–342, 2006.
- Stiller, G., von Clarmann, T., Funke, B., Glatthor, N., Hase, F., Höpfner, M., and Linden, A. : Sensitivity of Trace Gas Abundances Retrievals from Infrared Limb Emission Spectra to Simplifying Approximations in Radiative Transfer Modelling, *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 72, 249–280, 2002.
- Stockwell, W., Kirchner, F., Kuhn, M., and Seefeld, S. : A New Mechanism for Regional Atmospheric Chemistry Modeling, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 102, 25 847–25 879, 1997.
- Stoffelen, A., Marseille, G. J., Bouttier, F., Vasiljevic, D., Haan, S. D., and Cardinali, C. : ADM-Aeolus Doppler wind lidar observing system simulation experiment, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 619, 1927–1948, 2006.

- Straif, K., Cohen, A., and Samet, J. : Air Pollution and Cancer, IARC Scientific Publication N°161, 2013.
- Stull, R. B. : An Introduction to Boundary Layer Meteorology, Kluwer Academic Publishers, 1988.
- Timmermans, R. M. A., Schaap, M., Elbern, H., Siddans, R., Tjemkes, S., Vautard, R., and Builtjes, P. : An Observing System Simulation Experiment (OSSE) for Aerosol Optical Depth from Satellites, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 26, 2673–2682, doi :10.1175/2009JTECHA1263.1, 2009.
- Tjemkes, M. A., Patterson, T., Rizzi, R., Shephard, M. W., Clough, S. A., Matricardi, M., Haigh, J., Höpfner, M., Payan, S., Trotsenko, A., Scott, N., Rayer, P., Taylor, J. P., Clerbaux, C., Strow, L. L., DeSouza-Machado, S., Tobin, D., and Knuteson, R. : The ISSWG line-by-line intercomparison experiment, *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, Vol. 77, No. 4, 433–453, 2003.
- Townsend, C. L. and Maynard, R. L. : Effects on health of prolonged exposure to low concentrations of carbon monoxide, *Occup. Environ. Med.*, 59, 708–711, 2002.
- Tze-Ming, C., Gokhale, J., Shofer, S., and Kuschner, W. G. : Outdoor Air Pollution : Nitrogen Dioxide, Sulfur Dioxide, and Carbon Monoxide Health Effects, *American Journal of the Medical Sciences*, 333, 249–256, 2007.
- Urban, J., Baron, P., Lautie, N., Schneider, N., Dassas, K., Ricaud, P., and De La Noe, J. : Moliere (v5) : A versatile forward- and inversion model for the millimeter and sub-millimeter wavelength range, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 83, 529–554, 2004.
- Vlemmix, T., Eskes, H. J., Piters, A. J. M., Kelder, H., and Levelt, P. F. : MAX-DOAS tropospheric nitrogen dioxide column measurements compared with the LOTOS-EUROS air quality model, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 11, 28 895–28 944, 2011.
- Wesely, M. L. : Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, *Atmospheric Environment*, 23, 1293–1304, 1989.
- Williamson, D. L. and Rasch, P. J. : Two-dimensional semi-lagrangian transport with shape-preserving interpolation, *Mon. Wea. Rev.*, 117, 102–129, 1989.
- Worden, H. M., Logan, J. A., Worden, J. R., Beer, R., Bowman, K., Clough, S. A., Eldering, A., Fisher, B. M., Gunson, M. R., Herman, R. L., Kulawik, S. S., Lampel, M. C., Luo, M., Megretskaja, I. A., Osterman, G. B., and Shephard, M. W. : Comparisons of Tropospheric Emission Spectrometer (TES) Ozone Profiles to Ozonesondes : Methods and Initial Results, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 112, 2007a.
- Worden, J., Liu, X., Bowman, K., Chance, K., Beer, R., Eldering, A., Gunson, M., and Worden, H. : Improved Tropospheric Ozone Profile Retrievals using OMI and TES Radiances, *Geophysical Research Letters*, 34, 2007b.

- Yumimoto, K. : Impacts of geostationary satellite measurements on CO forecasting : An observing system simulation experiment with GEOS-Chem/LETKF data assimilation system, *Atmospheric Environment*, 74, 123–133, 2013.
- Zoogman, P., Jacob, D. J., Chance, K., Liu, X., Lin, M., Fiore, A., and Travis, K. : Monitoring high-ozone events in the US Intermountain West using TEMPO geostationary satellite observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 6261–6271, 2014.
- Zoogman, P., Jacob, D. J., Chance, K., Zhang, L., Le Sager, P., Fiore, A. M., Eldering, A., Liu, X., Natraj, V., and Kulawik, S. S. : Ozone Air Quality Measurement Requirements for a Geostationary Satellite Mission, *Atmospheric Environment*, 45, 7143–7150, 2011.