

Etudes Expérimentales de Changements Atmosphériques (ESAC) Synthèse
--

Contexte Scientifique et Objectifs de Recherche

La composition de l'atmosphère terrestre évolue, suite à l'accumulation d'un nombre croissant de constituants gazeux chimiquement et radiativement actifs, émis au sol par les activités humaines. Ces émissions croissantes influencent l'ozone atmosphérique, l'équilibre radiatif de la Terre, dès lors son climat, et modifient le niveau d'oxydation de son atmosphère. Dans ce contexte, la troposphère supérieure et la basse stratosphère présentent un intérêt croissant car elles sont le siège d'échanges de gaz sources entre la troposphère et la stratosphère et contrôlent ainsi l'équilibre radiatif de l'atmosphère moyenne.

Une meilleure connaissance de la composition atmosphérique et une compréhension approfondie des processus physiques et chimiques qui prévalent dans la troposphère et la stratosphère sont essentielles pour établir l'état actuel de notre environnement, pour en comprendre les changements récents et en cours, et pour en prédire l'évolution future. Elle est également indispensable pour fournir une bonne base scientifique aux mesures réglementaires de pratiques industrielles et humaines. L'acquisition de cette connaissance nécessite des mesures troposphériques et stratosphériques coordonnées et complémentaires basées sur des observations récurrentes à partir du sol, des campagnes ciblées sur l'étude de processus et impliquant des mesures à partir d'avions et de ballons stratosphériques, ainsi que des observations globales par satellites. La capacité de télémessures précises dans la troposphère doit être améliorée. La comparaison et l'intégration des données d'observations dans des modèles numériques de l'atmosphère sont également indispensables.

Le projet ESAC avait pour but de contribuer à l'étude du comportement de l'ozone et de maintes espèces stratosphériques et troposphériques, à partir d'observations effectuées dans quatre stations situées en Europe, complétées par des mesures globales par satellites. Cette investigation incluait la surveillance à long terme et l'évaluation de mécanismes radiatifs, dynamiques et chimiques sous-jacents aux variabilités et tendances évolutives observées. Les quatre stations impliquées sont Uccle (Belgique, 50.5°N, 4.3°E), le Jungfraujoch dans les Alpes suisses (46.5°N, 8.0°E), Harestua (Norvège, 60.2°N, 10.7°E), et l'Observatoire de Haute Provence (France, 44°N, 6°E) ; toutes font partie du réseau international 'Network for the Detection of Stratospheric Change'. Le projet avait également pour but d'évaluer les possibilités d'étudier la troposphère supérieure, et d'effectuer une analyse approfondie des observations par l'instrument ATMOS à bord de navettes spatiales américaines, afin de caractériser les capacités de la télémessure infrarouge à partir de l'espace pour l'observation de la troposphère. La surveillance à long terme de la radiance spectrale UV s'est poursuivie à Uccle, en conformité avec les normes de qualité internationales. Les observations atmosphériques ont été soutenues par des travaux de modélisation numérique de l'atmosphère et par des recherches fondamentales en laboratoire qui ont permis de disposer de nouvelles données spectroscopiques et radiatives nécessaires dans l'analyse des observations et dans la modélisation.

La recherche produite dans le cadre du projet ESAC est un exemple d'effort national qui s'inscrit dans le contexte de différents programmes de recherche environnementale européens et internationaux.

Partenariat

Le projet a été réalisé par quatre groupes belges, tous impliqués dans des collaborations internationales. Il s'agit de l'Institut Royal Météorologique de Belgique, le 'Groupe Infra-Rouge de Physique Atmosphérique et Solaire' de l'Université de Liège, le 'Laboratoire de Chimie Physique Moléculaire' de l'Université Libre de Bruxelles, et l'Institut d'Aéronomie Spatiale de Belgique, ce dernier assurant la coordination du projet. Une étroite collaboration entre les partenaires a été assurée au niveau des moyens en personnel, en matériel et en instrumentation, afin de réaliser les observations et d'en assurer l'analyse et l'interprétation.

Résultats

Le projet ESAC a permis aux partenaires impliqués de poursuivre la surveillance de la composition chimique de l'atmosphère terrestre grâce aux observations effectuées aux quatre stations citées ci-avant. Les instruments utilisés à cet effet incluaient des spectromètres infrarouges par transformée de Fourier, des appareils UV-Visibles basés sur la spectroscopie d'absorption optique différentielle (DOAS), des monochromateurs UV-Visibles, entre autres du type 'Dobson' et 'Brewer', et des sondes à ozone. Des bases de données géophysiques existantes ont été étendues dans le temps et mises à jour ; le cas échéant, elles ont été réanalysées et homogénéisées. La synergie avec des données satellitaires a été évaluée et exploitée. Des données de laboratoire précises d'intérêt pour les recherches atmosphériques ont été produites dans le cadre du projet.

Observations à long terme au Jungfraujoch

Les observations systématiques de l'atmosphère terrestre au Jungfraujoch ont débuté dès 1985, avec des mesures de certains constituants remontant cependant jusqu'à la moitié des années septante et même jusqu'à 1950. Les données ainsi recueillies se sont révélées extrêmement utiles pour l'étude de la variabilité et de l'évolution à long terme d'un grand nombre de gaz ; outre l'ozone stratosphérique, ceux-ci incluent les principales espèces impliquées dans les processus de destruction de l'ozone tels que les composés halogénés, une série de gaz à effet de serre dont le méthane, le dioxyde de carbone et le protoxyde d'azote, et maints gaz sources émis au sol, dont les CFC et les HCFC d'origine anthropique. Parmi une série de résultats liés à l'évolution de l'atmosphère au-dessus du Jungfraujoch, il convient de mentionner ici :

- Le ralentissement du taux de croissance du chlore inorganique dans la stratosphère et son inversion en 1997-98. En tenant compte du temps nécessaire aux sources chlorées troposphériques pour atteindre la stratosphère moyenne, 3 à 5 ans, cette inversion est en accord avec la décroissance de la charge du chlore organique dans la troposphère observée depuis 1994. Ces observations sont en accord avec des prévisions de modèles qui prennent en compte les restrictions imposées dans l'émission des sources chlorées telles qu'imposées par le Protocole de Montréal et ses Amendements successifs.
- La poursuite de l'accroissement, mais selon un taux en léger ralentissement, du contenu du fluor inorganique dans la stratosphère. A ce stade, cette observation est qualitativement compréhensible, mais mal reproduite par les prévisions de modèles.
- La diminution, d'environ 45%, de l'abondance verticale intégrée de NO_2 au début de 1992, suite à l'augmentation de la charge en aérosols dans la stratosphère résultant de l'éruption volcanique du Mt. Pinatubo (Philippines, Juillet 1991) et son retour progressif à un niveau moyen vers la fin de 1994.
- La mise en évidence, entre 1985 et 2000, d'un accroissement moyen de $(0.6 \pm 0.2)\%/an$ de la colonne verticale de NO_2 . Cet accroissement à long terme ainsi que celui de HNO_3 ($(-0.2 \pm 0.2)\%/an$) sont difficilement conciliables avec l'accroissement de $(0.30 \pm 0.01)\%/an$ observé pour leur principal gaz source, N_2O . Cette situation résulte de la difficulté de quantifier les changements à long terme de HNO_3 dont la variabilité naturelle est importante et les effets induits par les aérosols volcaniques du Mt. Pinatubo qui ont sensiblement perturbé les bases de mesures des composés azotés.
- La détermination des taux d'accumulation des principaux gaz à effet de serre devant être contrôlés par le Protocole de Kyoto, à savoir : CO_2 ($(0.41 \pm 0.01)\%/an$), CH_4 (en diminution de $0.74\%/an$ en 1987 à $0.1\%/an$ en 2000), N_2O ($(0.30 \pm 0.01)\%/an$), SF_6 (en diminution de $14\%/an$ en 1987 à $5\%/an$ en 2000).
- L'évolution de la hauteur de la tropopause dont l'altitude semble avoir augmenté durant les années quatre-vingts et diminué durant les années nonante. Ceci est susceptible d'avoir un impact sur l'équilibre radiatif de l'atmosphère et d'expliquer en partie l'augmentation de la colonne verticale de N_2O , ainsi que la diminution, par rapport aux années quatre-vingts, du taux de décroissance de l'ozone total dans les années nonante. Une augmentation de l'ozone total a-t-elle été observée après 1994 ? La réponse à cette question ne pourra être donnée qu'après avoir poursuivi des mesures durant les prochaines années, car une telle augmentation à long terme se superpose à une variabilité inter-annuelle de l'ozone importante.

Evolution de l'ozone au-dessus d'Uccle

La série temporelle de profils verticaux d'ozone entre 0 et 35 km d'altitude, obtenus à partir de sondages radio à Uccle, couvre la période de 1969 à ce jour. Cette série a été ré-évaluée pour tenir compte d'artefacts instrumentaux et de l'évolution des conditions en fonction du temps. L'évolution des abondances de l'ozone a été revue simultanément. Les points suivants sont à souligner: à long terme, une décroissance marquée de l'abondance de l'ozone est observée en hiver et au printemps dans la basse stratosphère; l'abondance troposphérique croît en toute saison; elle augmente fortement dans la couche limite de mars à septembre, et décroît durant les autres mois. Les taux de croissance - ou de décroissance - estimés pour l'ozone au cours de l'année sont les suivants: dans la troposphère, une croissance de l'ordre de +0.35 à 0.85%/an (dépendant de l'altitude); dans la basse stratosphère, une décroissance entre -0.2 et -0.5%/an (à 15 km d'altitude). Il apparaît que la production photochimique d'ozone a crû significativement durant les dernières années.

Observations de OCIO et BrO à Harestua et à l'Observatoire de Haute Provence

L'extension des séries temporelles obtenues pour BrO à Harestua et à l'Observatoire de Haute Provence, et pour OCIO à Harestua a amélioré notre connaissance sur les variations diurnes, saisonnières et latitudinales pour les deux espèces. Des valeurs accrues de OCIO sont ponctuellement observées lors d'hivers froids, quand le "vortex" arrive jusqu'au dessus de Harestua. Les quantités les plus importantes de BrO sont observées en hiver, particulièrement dans des circonstances favorables au phénomène de "denoxification", lors desquelles la conversion de BrO en la molécule réservoir BrONO₂ est réduite.

L'exploitation en synergie des observations relatives à BrO réalisées au sol, à bord de ballons et de satellites (GOME/ERS-2) a permis de conclure qu'il existe une quantité non négligeable de BrO dans la troposphère, ceci à l'échelle globale. Ses sources doivent encore être identifiées.

Les résultats fournis par le modèle PSCBOX, couplant un modèle de transfert radiatif à un modèle photochimique de boîte, ont été comparés aux observations; cette démarche a remis en cause nos connaissances actuelles concernant la chimie des composés halogénés, car les observations obtenues pour OCIO au crépuscule, dans des conditions de faible activation du chlore, ne sont pas en accord avec les résultats du modèle PSCBOX. Des recherches complémentaires à ce sujet sont en cours.

Mesures de la radiance spectrale UV à Uccle

Une climatologie UV a été développée sur base de mesures d'irradiance spectrale UV acquises durant environ 11 ans. Les facteurs clés qui influencent la dose d'UV arrivant au sol sont l'abondance de nuages et la quantité d'ozone présents; leur impact a été étudié. A cause de leur variabilité, il est trop tôt pour pouvoir déduire une tendance fiable pour l'irradiance UV.

Une procédure opérationnelle de prévision de l'index UV a été développée et implémentée: les prévisions d'index UV sont à présent fournies au public, chaque jour durant les mois d'avril jusque septembre.

Synergie avec les données satellitaires

La cohérence et la complémentarité entre diverses données provenant de satellites, de vols ballon, de mesures au sol et in situ ont été examinées et exploitées, en particulier pour dériver une climatologie du profil de NO₂ de 0 à 70 km d'altitude, et pour la vérification d'un algorithme amélioré pour la mission ATMOS/Shuttle qui permet d'étendre les profils moléculaires vers le bas, jusque dans la troposphère libre.

Etudes de processus

Plusieurs campagnes ont été menées afin d'étudier l'ozone dans la troposphère et dans la couche limite de la planète, d'examiner la présence d'ozone et d'autres polluants (NO₂, SO₂, benzène, toluène, formaldéhyde et NO₃ nocturne) au niveau du sol dans le site urbain de Bruxelles (1997) et de connaître la

composition chimique dans la couche limite de la troposphère en été (1998) dans la région de la Jungfraujoch.

Quatre facteurs liés au bilan de l'ozone ont été identifiés dans la couche limite (qui s'étend jusqu'à une altitude moyenne de 2 km) : l'accumulation dans la couche résultant de la production locale, le transfert de la couche limite à la troposphère libre, le dépôt à la surface et l'advection horizontale. Il a été démontré que de bonnes prédictions de la concentration d'O₃ peuvent être faites en n'utilisant que des paramètres météorologiques (vitesse et direction du vent, humidité, irradiance, ...) mais que celles-ci peuvent être améliorées en incluant des estimations des concentrations de NO et NO₂.

Les mesures faites dans la région du Jungfraujoch sont essentiellement d'intérêt technique. Elles ont démontré la faisabilité d'une nouvelle méthode de mesures, la mesure différentielle d'altitude (voir plus loin). Des rapides variations de CO à l'échelle d'une heure ont été observées, en accord avec des mesures in situ locales simultanées. Il a été observé également que la concentration de C₂H₆ dans la couche limite varie considérablement de jour en jour, tandis que celles de CH₄ et N₂O sont relativement stables à l'échelle d'un mois.

Données de laboratoire

Les molécules pour lesquelles des données spectroscopiques (sections efficaces d'absorption, position de raies et intensités) nouvelles ou plus précises ont été obtenues sont : O₂ et ses complexes collisionnels O₂-X (avec X=N₂, Ar ou O₂), NO₂ et son dimère N₂O₄, H₂O et ses isotopomères HOD et D₂O, C₂H₂, OCS, HOCl, HCFC-22 et HFC-152a. Ces données ont été mesurées sous diverses conditions de température et de pression, dans les régions spectrales couvrant le proche- et moyen-IR, le visible et l'ultraviolet et en utilisant la spectroscopie par transformée de Fourier. Comparé aux études antérieures, le but était dans plusieurs cas d'acquérir des données aux pressions de températures et de concentrations proches de celles de l'atmosphère terrestre et de résoudre les désaccords existant dans la littérature. En particulier pour la molécule d'eau, il était impérieux de caractériser les très nombreuses raies faibles présentes dans la région UV afin d'évaluer leurs contributions au budget radiatif de l'atmosphère.

Progrès instrumentaux dans l'analyse et l'interprétation des données

Afin d'atteindre les objectifs du projet et d'obtenir les résultats décrits ci-dessus, plusieurs nouvelles méthodologies et diverses améliorations de méthodes existantes ont été développées. Nous avons cité plus haut la « *Prévision de l'index UV* » et la « *Mesure différentielle en altitude* ». Cette dernière permet d'acquérir des données pour une couche déterminée située entre la couche limite et la basse troposphère. Elle est basée sur des mesures simultanées de la densité de colonne faites à deux stations situées à des altitudes différentes. A partir de celles-ci, les concentrations des espèces visées dans la couche comprises entre les deux stations peuvent être déduites.

Les « *Algorithmes d'inversion verticale* » développés procurent une méthode alternative pour acquérir des informations en altitude à partir de mesures effectuées au sol. L'un d'entre eux a été développé pour être appliqué à des mesures IR faites avec un spectromètre par transformée de Fourier à haute résolution, comme celles faites au Jungfraujoch. Le principe de cette inversion repose sur la variation du profil d'une raie d'absorption avec l'altitude causée par le changement de température et de pression. Cet algorithme d'inversion a été validé extensivement pour l'ozone. Des résultats préliminaires ont été obtenus pour HCl et HF. Il sera possible dans un avenir proche de réanalyser les longues séries de mesures qui existent afin d'étudier le comportement de la composition atmosphérique à diverses altitudes sur une période passée de quelques décades.

Dans la méthode DOAS (UV/Vis), le contenu d'informations relatif à la troposphère est augmenté si l'on effectue simultanément des observations de la lumière diffusée à différents angles zénithaux (au zénith et à un angle proche de l'horizon). Cette méthode, est appelée « *DOAS off-axis method* ». De nouveaux instruments ont été construits et rendus opérationnels et des résultats préliminaires concernant le BrO et le formaldéhyde troposphériques ont été obtenus à l'Observatoire de Haute Provence.

Des développements de logiciels ont contribué à une analyse plus précise et plus aisée des spectres atmosphériques ou de laboratoire. *WinDOAS* est un logiciel avancé pour l'analyse des spectres UV-Visible DOAS ; *WSPECTRA* et *BFit* servent dans l'analyse des paramètres de raie dans les spectres de laboratoire obtenus par spectroscopie Fourier.

PSCBOX est un modèle-boîte de transfert radiatif et chimique qui a été développé pour l'interprétation géophysique d'espèces dont la concentration varie rapidement, tels OClO et BrO. Ce logiciel a contribué à une meilleure compréhension de la chimie crépusculaire du chlore et du brome dans la stratosphère.

Une nouvelle procédure a été mise au point pour la correction des mesures sondes de l'ozone. Elle tient compte de divers facteurs correctifs. En particulier, une nouvelle correction du profil d'efficacité de la pompe sonde a été introduite. La série complète des sondes effectuées à Uccle a été homogénéisée selon cette nouvelle procédure.

Il a aussi été montré que les modèles standards de référence de l'atmosphère utilisés dans la communauté scientifique sont souvent dépassés, incomplets ou manquant d'informations sur les variations saisonnières et latitudinales. A diverses occasions, de *nouveaux modèles climatologiques* ont été développés pour des applications particulières : pour l'O₃, en fonction de l'altitude de la tropopause, basé sur les sondages faits à Uccle; pour NO₂, basé sur la synergie entre les données satellitaires et celles faites au sol ; pour HF, HCl et CH₄ basé sur les données du satellite HALOE.

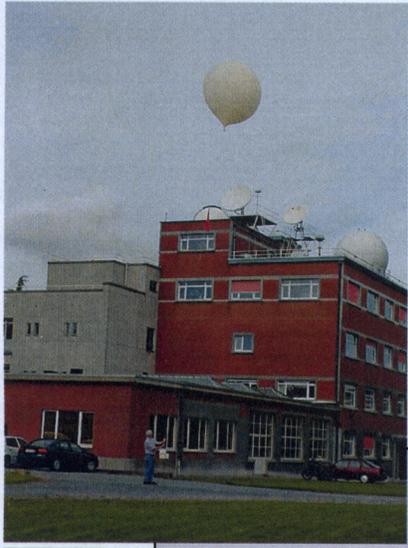
Valorisation

Les canaux habituels de dissémination des résultats ont été utilisés intensivement : publications, symposia internationaux, séminaires de travail, activité d'information publique, intégration des équipes dans divers projets européens et internationaux. Parmi ces derniers, il faut mentionner en particulier les archivages des données atmosphériques et de laboratoire dans les banques de données respectives. A partir de celles-ci les résultats deviennent accessibles à l'entière de la communauté scientifique mondiale pour une exploitation générale incluant les activités de validation des données satellitaires. Il faut mentionner également la participation de nos équipes dans des efforts internationaux appelés 'Assessment Studies', et la distribution des logiciels tel que WinDOAS à d'autres groupes de recherche.

A nouveau il a été démontré que la continuation ininterrompue de mesures à long terme soutenue par la recherche fondamentale comme les mesures en laboratoire, joue un rôle primordial dans la recherche sur les changements atmosphériques globaux focalisée sur la chimie et la dynamique de l'atmosphère et le climat terrestre.

EXPERIMENTAL STUDIES OF ATMOSPHERIC CHANGES (ESAC)

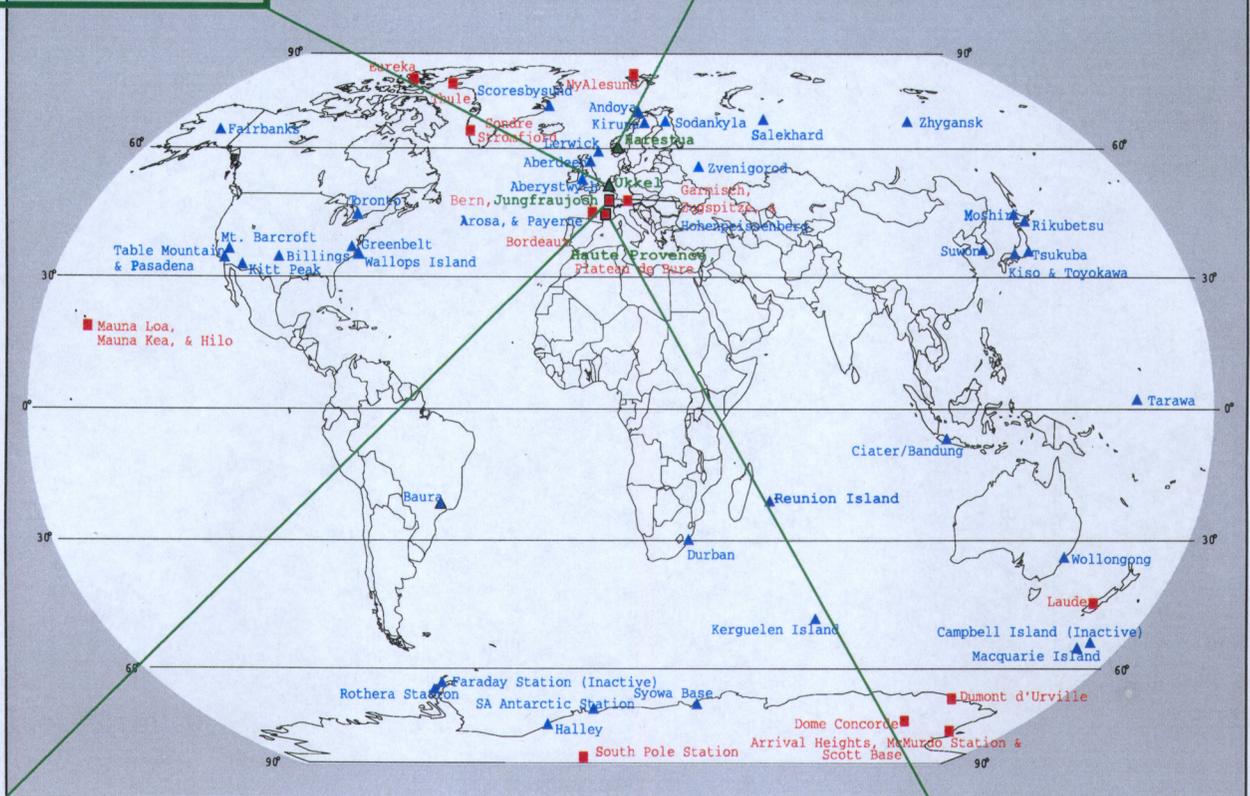
Ukkel (51.5°N, 4°E)



Harestua (60°N, 10°E)



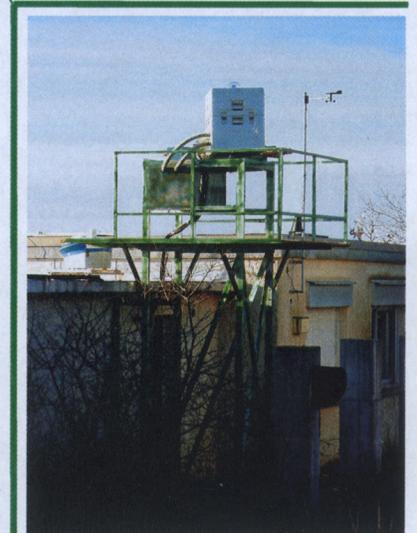
NDSC Sites



- NDSC Primary Sites
- ▲ NDSC Complementary Sites



Jungfrauoch (46.5°N, 8°E)



OHP (44°N, 6°E)