

# AGACC I – Résultats

## Exploitation avancée de mesures au sol pour l'étude de la chimie atmosphérique et du climat

DUREE DU PROJET  
15/12/2005 – 31/12/2010

BUDGET  
588.317€

### MOTS CLES

Changement de la composition atmosphérique ; tendances ; surveillance ; télédétection ; spectrométrie depuis le sol ; radiosondages ; gaz à effet de serre ; chimie troposphérique ; changement climatique

### CONTEXTE

Nous vivons à une époque où les activités humaines provoquent des changements importants à l'environnement atmosphérique, avec des conséquences locales et mondiales sur les écosystèmes. Ces changements dans la composition de l'atmosphère ont un impact sur notre climat par le biais de mécanismes de rétroaction chimiques et dynamiques; souvent ils affectent également la qualité de l'air et la santé de la biosphère. La surveillance et la connaissance de ces changements ainsi que de leurs conséquences sont fondamentales dans la mise en place d'actions adéquates, afin d'atténuer les changements écologiques et de s'y adapter. En outre, après la mise en œuvre de mesures de régulation comme le Protocole de Montréal, il est nécessaire de vérifier leur efficacité. Ceci ne peut être réalisé qu'à l'aide de méthodes de détection adaptées à la surveillance fiable à long terme d'une série de paramètres géophysiques clés.

Ainsi le projet AGACC contribue au développement de nouvelles connaissances fondamentales quant à la composition atmosphérique et ses changements, en se basant sur une surveillance avancée depuis le sol, en combinaison avec des données de modélisation et d'origine satellitaire. Les résultats sont intégrés dans des programmes de recherche internationaux en cours.

### OBJECTIFS

L'objectif général est d'améliorer et étendre les capacités de détection depuis le sol pour un certain nombre d'espèces cibles liées au climat, et d'analyser les observations antérieures et actuelles afin d'en déduire de nouvelles connaissances en ce qui concerne la composition atmosphérique, sa variabilité ainsi que les changements à long terme. En dépit de l'essor d'une flotte toujours plus performante de satellites d'observation de la Terre, des mesures depuis le sol restent indispensables afin (1) de garantir l'homogénéité et la qualité des données ainsi que leur continuité à long terme, et (2) de soutenir à long terme les programmes de calibration et de validation de données satellitaires.

### CONCLUSIONS

Un premier gaz cible est la vapeur d'eau atmosphérique, gaz en trace exerçant une influence clé sur le climat et la météorologie. La vapeur d'eau est également le plus important des gaz à effet de serre dans l'atmosphère terrestre. Sa quantité et sa distribution verticale changent, mais pourquoi et comment ? En particulier dans la haute troposphère et la basse stratosphère, les effets radiatifs liés à des changements en vapeur d'eau sont significatifs et devraient être quantifiés. La mesure de la vapeur d'eau est un sujet de recherche intense depuis plusieurs années. C'est un défi majeur en raison du large gradient vertical de la concentration de la vapeur d'eau entre le sol et la stratosphère. Une autre complication provient du fait que les variabilités spatiale et temporelle de la concentration en vapeur d'eau sont très importantes. Par exemple, nous avons déterminé que l'échelle temporelle des variations de la colonne totale de vapeur d'eau mesurées au Jungfraujoch est de l'ordre de quelques minutes.

Dans le cadre du projet AGACC, nous avons exploré diverses techniques expérimentales permettant de mesurer la concentration de la vapeur d'eau dans l'atmosphère, avec un accent particulier sur la détermination de la colonne totale mais aussi de la distribution verticale depuis la troposphère jusqu'à la basse stratosphère.

L'inversion de profils verticaux et de colonnes totales de vapeur d'eau par spectroscopie d'absorption FTIR a été étudiée, avec des résultats prometteurs, à trois stations aux caractéristiques différentes disposant chacune de données corrélatives adéquates pour la vérification : Uccle (niveau de la mer, latitude moyenne), l'île de la Réunion (niveau de la mer, latitude tropicale) et le Jungfraujoch (altitude élevée, latitude moyenne). En particulier au Jungfraujoch, il a été démontré que la précision des mesures FTIR de la colonne intégrée de vapeur d'eau (IWV) est de l'ordre de 2%. Nous avons également démontré notre capacité à inverser des isotopologues individuels de la vapeur d'eau, puis à détecter leurs variations journalières et diurnes. Ceci devrait nous permettre dans une étape ultérieure d'analyser le rôle de la vapeur d'eau quant à son impact sur le bilan radiatif, la circulation globale, la précipitation, etc. Pour la vapeur d'eau et ses isotopologues, nous avons également commencé à exploiter des données FTIR au sol en synergie avec l'instrument satellitaire IASI, ceci afin d'exploiter entièrement le potentiel de l'instrumentation existante.

## AGACC I – Résultats

Exploitation avancée de mesures au sol pour l'étude de la chimie atmosphérique et du climat

Pour les radiosondages à Uccle, une méthode de correction a été mise en place avec succès, avec pour résultat l'établissement d'une série temporelle homogène et fiable de 1990 à 2008 permettant de déduire les tendances dans l'humidité de la haute troposphère (UTH) ainsi que certaines caractéristiques de la tropopause. Jusqu'en septembre 2001, on observe une UTH en hausse, accompagnée d'une descente et d'un réchauffement de la tropopause jusqu'au point tournant suivi d'une ascension et d'un refroidissement. Les changements dans la haute troposphère après septembre 2001 peuvent être expliqués par le réchauffement de la surface et, consécutivement, un soulèvement des masses d'air par convection. Les observations de l'abondance totale en vapeur d'eau effectuées au Jungfraujoch ne montrent pas de tendance significative sur la période 1988 – 2010. Cependant, nous avons détecté des tendances significatives saisonnières, positives en été, négatives en hiver. A Uccle, nous avons effectué une comparaison quantitative statistique entre des mesures de vapeur d'eau intégrée (IWV) obtenues par les techniques FTIR, CIMEL et GPS ainsi que par intégration de données (corrigées) de radiosondage. Ce travail est important afin de mieux caractériser les différents capteurs, dans le but d'une exploitation combinée des données.

*Un deuxième composé cible est l'aérosol atmosphérique.* Il existe une grande variété dans les aérosols d'origine naturelle et anthropogénique. Leur incidence sur les propriétés optiques de l'atmosphère est une des raisons de leur importance. En particulier, des études précédentes ont démontré que les aérosols ont un impact sur la quantité de la radiation nocive UV-B reçue à la surface de la Terre. Le dernier rapport IPCC a également souligné que le forçage radiatif provoqué par les aérosols atmosphériques figure parmi les incertitudes les plus importantes dans la détermination du forçage radiatif total de l'atmosphère. De meilleures capacités de surveillance des propriétés des aérosols peuvent ainsi améliorer notre compréhension et la prévision des processus atmosphériques ainsi que leur évolution, en particulier de l'UV-B et des changements climatiques.

Dans le consortium AGACC, plusieurs techniques de surveillance des propriétés des aérosols sont maintenant opérationnelles, en particulier le spectromètre Brewer ainsi que les observations du CIMEL à Uccle, ce dernier contribuant également au réseau AERONET depuis juillet 2006. Nous effectuons également des mesures à l'aide d'un instrument MAXDOAS développé récemment à l'IASB. Contrairement aux mesures CIMEL et Brewer, qui fournissent l'épaisseur optique totale des aérosols, les mesures MAXDOAS permettent d'obtenir des informations complémentaires quant à la distribution verticale de l'extinction par les aérosols dans la basse troposphère où la majeure partie des aérosols se trouve confinée. Grâce à notre participation à la campagne de mesures CINDI (Cabauw Intercomparison Campaign of Nitrogen Dioxide measuring Instruments) pendant l'été 2009, une meilleure connaissance a été acquise concernant les capacités ultimes de télédétection des aérosols à l'aide de la technique MAXDOAS.

La combinaison des instruments Brewer, CIMEL et MAXDOAS fournit un set de données de télédétection permettant une caractérisation plus étendue des propriétés optiques des aérosols troposphériques. L'utilité de ces observations d'aérosols a déjà été démontrée par l'amélioration des prévisions de l'index UV pour le grand public. Une autre application est leur utilisation en tant que données initiales permettant l'inversion, à partir de données MAXDOAS, des profils verticaux de polluants troposphériques tels que le NO<sub>2</sub> ou le formaldéhyde.

*En troisième lieu, nous avons mis l'accent sur quelques gaz en trace liés au climat.* Les changements en concentration des gaz à effet de serre et des aérosols affectent directement le budget radiatif de l'atmosphère, et donc le climat. Cependant, beaucoup de composés connus en tant que polluants, comme le monoxyde de carbone (CO), les oxydes d'azote (NO<sub>x</sub>) et les composés carbonyles, - souvent liés à la combustion fossile ou de la biomasse - affectent également le climat à travers leur rôle dans les réactions chimiques produisant de l'ozone troposphérique (un gaz à effet de serre bien connu), ou en modifiant la durée de vie de gaz comme le méthane ou encore en modifiant la capacité d'oxydation de l'atmosphère.

Ainsi dans AGACC, nous avons mis l'accent sur la mesure d'un certain nombre de gaz en trace difficiles à surveiller ou pas encore mesurés depuis le sol, et ayant une influence directe ou indirecte sur le climat. Nous avons également tenté d'observer les isotopologues de certaines molécules, puisque les proportions isotopiques observées dans une masse d'air fournissent des indications concernant son histoire, et en raison de la capacité unique des mesures d'absorption solaire par FTIR pour procurer ces informations.

Les molécules étudiées sont les isotopologues de CH<sub>4</sub> et de CO, ainsi que le cyanure d'hydrogène (HCN) comme exemples de traceurs de combustion de la biomasse, quelques composés carbonyles comme le formaldéhyde (HCHO), l'éthylène (C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>) et l'acétylène (C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>), et le HCFC-142b, un produit de substitution pour les CFCs et en même temps un gaz à effet de serre.



## AGACC I - Résultats

Exploitation avancée de mesures au sol pour l'étude de la chimie atmosphérique et du climat

Les stratégies d'inversion ont souvent dû être adaptées en fonction du site d'observation, surtout quand l'humidité locale et les abondances diffèrent, comme c'est le cas par exemple au Jungfraujoch (sec, haute altitude, moyenne latitude) et à l'île de la Réunion (humide, basse altitude, basse latitude). Nombre de nos résultats ont été comparés à des données corrélatives, afin de valider notre approche et d'obtenir de l'information complémentaire. Il est également important de souligner que les stratégies d'inversion développées dans AGACC ont régulièrement été présentées aux communautés UV-Vis et Infrarouge du réseau mondial de la détection du changement de la composition atmosphérique (NDACC), et ont souvent été adoptées par d'autres ou même été proposées comme nouveau standard dans la communauté (ex. pour le cyanure d'hydrogène (HCN)).

En particulier :

Nous avons pu étudier les variations saisonnières de HCN au Jungfraujoch et à l'île de la Réunion, afin de démontrer l'impact dominant de combustion de la biomasse.

Le formaldéhyde a été étudié en détail à Uccle, au Jungfraujoch et à l'île de la Réunion. Au Jungfraujoch, le défi pour sa détection est lié à sa faible abondance (plus ou moins dix fois plus basse qu'à Uccle et à l'île de la Réunion) ; un dispositif expérimental particulier a été développé avec succès, résultant en une série temporelle révélant les variations journalières et saisonnières. A l'île de la Réunion, des comparaisons entre des données FTIR, MAXDOAS, satellitaires et issues de modèles ont démontré qu'il y a un bon accord entre les différents sets de données. Elles nous ont également permis de mieux caractériser les variabilités diurne, saisonnière et journalière du HCHO et, grâce à la complémentarité des différents sets de données, nous ont permis d'approfondir l'impact du transport à longue portée des composés volatiles organiques non-méthaniques (NMVOC, précurseurs de HCHO) ainsi que certaines déficiences des modèles. Il a été prouvé que le transport direct et rapide des NMVOCs depuis Madagascar a un impact significatif sur l'abondance et la variabilité en HCHO à l'île de la Réunion, et que ceci est sous-estimé dans le modèle utilisé pour notre étude.

Pour la détection de  $^{13}\text{CH}_4$  et  $\text{CH}_3\text{D}$  avec des observations FTIR depuis le sol, nous avons progressé de façon significative, aussi bien au Jungfraujoch qu'à l'île de la Réunion. A notre connaissance, c'est la première fois qu'un jeu de données de  $\delta^{13}\text{C}$  a pu être obtenu par spectroscopie FTIR au sol. Il faudra investir plus de travail pour améliorer les inversions de  $\text{CH}_3\text{D}$  à l'île de la Réunion, et pour interpréter les résultats en combinaison avec des modèles.

Pour la première fois également,  $^{12}\text{CO}$  and  $^{13}\text{CO}$  ont été inversées individuellement au Jungfraujoch. Dans les séries temporelles de  $\delta^{13}\text{C}$ , on remarque clairement des changements saisonniers et interannuels.

Quant à l'hydrocarbure éthylène, il a été prouvé qu'au Jungfraujoch il n'est possible d'en détecter qu'à faible élévation solaire, compte tenu de sa faible abondance atmosphérique.

Concernant acétylène, les séries temporelles observées au Jungfraujoch et à l'île de la Réunion soulignent une variation saisonnière claire ainsi qu'une augmentation (en concentration) liée à l'impact d'événements de combustion de la biomasse, en corrélation avec des hausses en  $\text{CO}$ ,  $\text{C}_2\text{H}_6$  et HCN.

Nous ne savons pas encore si la concentration de HCFC-142b, un produit de substitution qui augmente de façon importante dans la troposphère, peut être inversée de façon fiable. De nouveaux paramètres du composé interférant HFC-134a sont nécessaires pour confirmer/infirmer les résultats préliminaires. Ceci souligne encore une fois l'importance du travail en laboratoire pour la provision de ces paramètres.

Des paramètres spectroscopiques améliorés ont été générés pour la vapeur d'eau et ses isotopologues, pour l'éthylène et l'acide formique. Ces résultats d'AGACC ont été intégrés dans des bases de données spectroscopiques internationales. Nous avons également démontré que les intensités des raies disponibles autour de  $2096\text{ cm}^{-1}$  pour l'isotopologue  $^{13}\text{C}^{16}\text{O}$  du monoxyde de carbone dans la base de données HITRAN semblent avoir une exactitude de 2%. Nous n'avons pas réussi à améliorer les intensités des raies d'acétylène pour la région de  $13.6\ \mu\text{m}$ .

Les nouveaux jeux de données AGACC dérivés des observations FTIR et MAXDOAS ont été archivés au centre de données NDACC, où ils sont mis à disposition des utilisateurs (en général des modélisateurs et des équipes de mesures satellitaires). Ils sont également stockés localement et disponibles sur demande.



# AGACC I - Résultats

Exploitation avancée de mesures au sol pour l'étude de la chimie atmosphérique et du climat

Les résultats d'AGACC ont été rapportés à la communauté scientifique internationale via leur publication dans la littérature, leur intégration dans des bases de données géophysiques ou spectroscopiques, et diverses participations à des initiatives internationales de recherche comme l'Action Cost « la vapeur d'eau atmosphérique dans le système climatique » (WAVACS), le groupe de travail concernant la vapeur d'eau de l'institut international des sciences de l'espace (ISSI), le projet de l'Union Internationale de chimie pure et appliquée (IUPAC), la campagne internationale CINDI (campagne d'inter-comparaison à Cabauw d'instruments mesurant le dioxyde d'azote), etc.

Les résultats ont déjà trouvé des applications scientifiques importantes. Quelques exemples valent la peine d'être mentionnés : la réévaluation des émissions de méthane dans les tropiques sur base de données SCIAMACHY basées sur la nouvelle spectroscopie de la vapeur d'eau, et les inversions améliorées de HCOOH depuis d'une part les expériences satellitaires ACE-FTS et IASI, et d'autre part le sol.

## CONTRIBUTION DU PROJET A UNE POLITIQUE DE DEVELOPPEMENT DURABLE

A plus long terme, la recherche atmosphérique bénéficiera sans aucun doute des résultats AGACC – en particulier en ce qui concerne la surveillance des changements de la composition de l'atmosphère – ce qui forme une base fondamentale des rapports environnementaux d'évaluation en appui aux décideurs politiques.

## CONTACT INFORMATION

### Website du projet:

<http://www.oma.be/AGACC/Home.html>

### Coordinateur

#### **Martine De Mazière**

Institut d'Aéronomie spatiale de Belgique (IASB-BIRA)  
Avenue Circulaire 3  
B -1180 Bruxelles  
Tel: +32 (2) 373 03 63  
Fax: +32 (2) 374 84 23  
martine.demaziere@aeronomie.be  
www.aeronomie.be

### Partenaires

#### **Hugo De Backer**

Institut Royal Météorologique de Belgique (IRM-KMI)  
Avenue Circulaire 3  
B-1180 Bruxelles  
Tel: +32 (2) 373 05 94  
Fax: +32 (2) 375 12 59  
Hugo.DeBacker@kmi-irm.be  
www.meteo.be

#### **Emmanuel Mahieu**

Université de Liège (ULg)  
Institute of Astrophysics and Geophysics  
Groupe Infra-Rouge de Physique Atmosphérique et Solaire (GIRPAS)  
Allée du 6 Août 17  
B-4000 Liège  
Tel: +32 (4) 366 97 86  
Fax: +32 (4) 366 97 47  
emmanuel.mahieu@ulg.ac.be  
www.girpas.astro.ulg.ac.be

#### **Michel Carleer**

Université Libre de Bruxelles (ULB)  
Service de Chimie Quantique et de Photophysique (SCQP)  
Av. F. D. Roosevelt, 50 CP160/09  
B-1050 Brussels  
Tel: +32 (2) 650 24 25  
Fax: +32 (2) 650 42 32  
mcarleer@ulb.ac.be  
www.ulb.ac.be/cpm

