

Université Pierre et Marie Curie

THÈSE DE DOCTORAT

École doctorale 129 : « Sciences de l'Environnement Île de France »

Spécialité  
Océan, Atmosphère, Climat et Observations Spatiales  
Méthodes Physiques en Télédétection

présentée par

Olivier MEMBRIVE

Titre

Caractérisation de la distribution verticale des gaz à effet de serre  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  par mesures sous ballons. Application à la validation d'observations satellites.

soutenue le

16 Décembre 2016

devant le jury composé de

M.	RAVETTA François	PRU UPMC	Président
M <sup>me</sup>	MARECAL Virginie	DR CNRS	Rapporteur
M.	RIVIERE Emmanuel	MCF URCA	Rapporteur
M.	JEGOU Fabrice	CR CNRS	Examinateur
M <sup>me</sup>	SAUNOIS Marielle	MCF UVSQ	Examinatrice
M.	VARGAS André	Ingénieur CNES	Examinateur
M <sup>me</sup>	PICON Laurence	PRU UPMC	Directrice de thèse
M.	CREVOISIER Cyril	CR CNRS	Co-directeur de thèse

Thèse préparée au sein du

Laboratoire de Météorologie Dynamique, CNRS, IPSL  
(École Polytechnique Palaiseau)



A la mémoire de mon père.  
A ma mère.



## Remerciements

J'ai réalisé cette thèse au Laboratoire de Météorologie Dynamique, sur le site de l'École Polytechnique. J'en remercie les directeurs successifs Vincent Cassé et Philippe Drobinski de m'avoir accueilli au laboratoire.

Par ailleurs, je remercie le programme européen EIT/Climate-KIC d'avoir retenu et financé ce travail de thèse. Cette dimension européenne a permis à mon travail de thèse de prendre plus d'ampleur et de consolider les échanges entre plusieurs équipes européennes sur la thématique. Merci également à Climate-KIC pour les formations de qualité qui m'ont été proposées au cours de ma thèse.

Merci aux membres du jury : François Ravetta qui en a assuré la présidence, Virginie Marécal et Emmanuel Rivière qui ont accepté d'en être les rapporteurs, André Vargas, Fabrice Jégou et Marielle Saunois qui ont assuré le rôle d'examineur enthousiaste de ce travail.

\*\*\*

Mes premiers remerciements vont vers Cyril Crevoisier. Nous avons déjà travaillé ensemble à l'occasion d'un stage de découverte de la recherche en première année de master. Il a su me convaincre de poursuivre la recherche scientifique et proposé un sujet de thèse qui m'a tout de suite séduit. Il a manifesté une confiance constante dans mon travail, et en a assuré le suivi attentif en sachant trouver du temps dans son emploi du temps chargé pour me guider dans mon travail. Je lui suis profondément reconnaissant de m'avoir fait découvrir le monde de la recherche.

Je remercie très sincèrement Laurence Picon d'avoir accepté d'assurer le rôle de directrice de thèse. Elle a manifesté son soutien constant et s'est rendue disponible dans tous les moments importants pour suivre l'avancement de mon travail.

Je tiens par ailleurs à remercier tout particulièrement, Albert Hertzog et Philippe Bousquet présents dans mon comité de thèse pour l'enthousiasme sans cesse renouvelé qu'ils ont manifesté pour ce travail ainsi que pour les discussions et rencontres scientifiques multiples auxquelles ils m'ont permis d'accéder.

\*\*\*

Ce travail a également été facilité par la bonne ambiance générale qui a régné durant ces trois ans au sein du Laboratoire. Je tiens à remercier tout ceux que j'ai côtoyé durant ces trois ans. Et plus particulièrement, les membres de l'équipe ABC(t) et du groupe ARA. Merci à mes collègues de bureau successifs qui m'ont tous encouragé et ont partagé avec moi leur expérience : Corinne Burlaud, Vanessa Sherlock et Laurent Crépeau. Je tiens à remercier Alain Chédin, Noëlle Scott et Nicole Jacquinet pour l'intérêt constant qu'ils ont manifesté avec passion pour mon travail. Merci également à Raymond Armante et Virginie Capelle de m'avoir apporté leurs précieux conseils.

Le travail réalisé durant cette thèse n'aurait pas été possible sans la précieuse collaboration de deux personnes du Laboratoire : François Danis, dont je tiens à saluer tout le travail de développement instrumental et d'organisation logistique réalisé pour assurer la préparation des AirCores, merci aussi pour tous les moments d'aventure partagés aux quatre coins du monde lors des campagnes de mesures qui resteront de très bons souvenirs ; et Nicolas Meilhac qui m'a transmis ses connaissances en traitement des données satellites et a assuré la continuité d'une partie de mon travail de thèse initial pour développer à toutes les latitudes les estimations de CH<sub>4</sub> IASI.

\*\*\*

Enfin, j'ai passé au cours de ces trois années de thèse près d'un an en déplacement : en campagne, en mobilité ou doctorale ou en congrès et je tiens à remercier les équipes administratives du laboratoire notamment Isabelle Ricordel, Sylvie Agasse et Tara Bizet pour leur soutien.

Je tiens tout particulièrement à remercier Colm Sweeney de la NOAA, dont le séjour de 2 mois en France, au début de ma thèse m'a permis de progresser rapidement pour prendre en main le nouvel instrument qu'est le AirCore.

Je ne saurais terminer ces remerciements sans prendre le temps de remercier la communauté ballons du CNES, et les scientifiques des autres laboratoires que j'ai rencontré sur le terrain. Je ne vais pas tous

les lister ici, mais la découverte de cette communauté et son intérêt pour les résultats de mon travail ont grandement contribué à la réussite de ce travail.

Je tiens à remercier Huilin Chen de l'Université de Groningen et Sander Houweling de l'Université d'Utrecht pour avoir accepté de m'accueillir dans leurs laboratoires pour y réaliser ma mobilité doctorale. Ils ont manifesté un enthousiasme sincère pour mon projet de recherche et contribué à m'ouvrir de nouveaux horizons de la recherche au niveau international.

\*\*\*

Le doctorat constituant l'aboutissement des études universitaires, je veux également remercier les différentes personnes qui tout au long de ma scolarité m'ont transmis avec beaucoup d'énergie leur passion pour les sciences physiques. Je suis également très reconnaissant du temps que ces personnes ont pris pour m'expliquer et me transmettre leurs connaissances.

Par ailleurs, cette thèse n'aurait pu exister sans le soutien déterminant de mes amis. Ceux de Rennes, dont la croyance en mes capacités à réussir ma thèse a souvent dépassé la mienne et a eu le pouvoir de me remettre en place. Ceux de mon club de plongée de l'association sportive de l'Université Paris 6, avec qui j'ai partagé de nombreux moments de détente lors de mes vacances, et également beaucoup appris, en devenant moniteur à mon tour, et dont la curiosité scientifique a démontré un intérêt constant pour mon travail.

\*\*\*

Enfin, je tiens tout particulièrement à remercier mes parents et ma famille. La simple pensée de la fierté qu'aurait éprouvé mon père (décédé à 59 ans, l'année avant que je ne débute cette thèse) de me voir achever mon parcours académique par cette thèse m'a donné de l'énergie tout au long de ma thèse. Ma mère a su m'apporter de la confiance et son affection tout au long de ce travail et s'est rendu très disponible pour m'apporter son énergie durant la phase intense de rédaction. Merci également à mes sœurs pour leur soutien et l'enthousiasme qu'elles ont manifesté pour m'encourager à réussir ma thèse.

# Table des matières

<b>I</b>	<b>Introduction générale</b>	<b>1</b>
I.1	Changement climatique global . . . . .	1
I.2	Cycles biogéochimiques du CO <sub>2</sub> et du CH <sub>4</sub> . . . . .	4
I.2.1	Cycle du CO <sub>2</sub> . . . . .	4
I.2.2	Cycle du CH <sub>4</sub> . . . . .	5
I.2.3	L'estimation des flux . . . . .	7
I.3	Les observations atmosphériques des gaz à effet de serre. . . . .	8
I.3.1	Mesures en surface . . . . .	9
I.3.2	Mesures aéroportées . . . . .	10
I.3.3	Observations depuis l'espace . . . . .	11
I.3.3.1	Les estimations satellites de CO <sub>2</sub> et CH <sub>4</sub> . . . . .	11
I.3.3.2	Les activités de validation . . . . .	12
I.3.4	Avantages et inconvénients des différentes mesures . . . . .	12
I.4	Les enjeux des mesures verticales. . . . .	13
I.4.1	Pourquoi des mesures verticales ? . . . . .	13
I.4.2	Les mesures sous ballons . . . . .	13
I.4.3	Motivations du travail de thèse . . . . .	14
I.5	Plan du manuscrit. . . . .	15
<b>II</b>	<b>Le AirCore : un échantillonneur atmosphérique</b>	<b>17</b>
II.1	Introduction . . . . .	17
II.2	Présentation générale du AirCore . . . . .	18
II.2.1	Principe général du AirCore . . . . .	18
II.2.2	La chaîne de mesure pour les phases de test, de préparation et d'analyse . . . . .	19
II.2.2.1	Introduction . . . . .	19
II.2.2.2	La charge utile . . . . .	20
II.2.2.3	Des gaz de référence. . . . .	22
II.2.2.4	Le système d'analyse . . . . .	23
II.2.2.5	Les phases de tests, de préparation et d'analyse . . . . .	24
II.3	Étude du mélange de l'échantillon dans un AirCore . . . . .	25
II.3.1	Hypothèses . . . . .	26
II.3.2	Mélange de l'échantillon dans un AirCore . . . . .	27
II.3.2.1	Effet 1 - Diffusion moléculaire . . . . .	28
II.3.2.2	Effet 2 - Dispersion de Taylor . . . . .	29
II.3.2.3	Effet 3 - Impact de la cellule de mesure de l'analyseur . . . . .	30
II.3.3	Conclusions sur le mélange dans un AirCore. . . . .	30
II.3.4	Observation et modélisation en laboratoire du mélange de l'air dans un AirCore . . . . .	31
II.3.4.1	Description générale des tests en laboratoire . . . . .	31
II.3.4.2	Comparaison expérimentale de la déformation des créneaux sous l'effet du mélange . . . . .	31
II.3.4.3	Modélisation du mélange pour différents temps de stockage . . . . .	32
II.3.4.4	Conclusion des tests en laboratoire. . . . .	33

II.4	Conception des AirCores. . . . .	35
II.4.1	Calcul de la résolution verticale théorique d'un AirCore . . . . .	35
II.4.1.1	Théorie . . . . .	35
II.4.1.2	Enseignements pour la conception des AirCores . . . . .	37
II.4.2	Les différents AirCores utilisés dans cette thèse . . . . .	38
II.4.2.1	Description des AirCores . . . . .	38
II.4.2.2	Comparaison de la résolution verticale de différents AirCores . . . . .	38
II.4.2.3	Caractéristiques techniques des différents AirCores développés durant cette thèse . . . . .	40
II.4.2.4	Influence du délai avant l'analyse sur la résolution . . . . .	41
II.5	Conclusion . . . . .	42
<b>III</b>	<b>De l'air échantillonné aux profils de concentration</b>	<b>43</b>
III.1	Introduction . . . . .	43
III.2	Principe général du traitement des données. . . . .	44
III.2.1	Étape 1 - Analyse de l'échantillon. . . . .	44
III.2.2	Étape 2 - L'exploitation des données de l'électronique embarquée. . . . .	45
III.2.3	Étape 3 - Le positionnement vertical de l'échantillon analysé . . . . .	47
III.3	Prise en compte de la "perte de charge". . . . .	48
III.3.1	Mise en évidence de la perte de charge . . . . .	48
III.3.2	Modélisation de la perte de charge . . . . .	50
III.3.2.1	Modèle . . . . .	50
III.3.2.2	Validation du modèle . . . . .	52
III.3.2.3	Calcul du nombre de moles . . . . .	53
III.3.3	Profil final . . . . .	54
III.4	Cas particuliers . . . . .	54
III.4.1	Dysfonctionnement de la vanne de fermeture . . . . .	55
III.4.2	Profil de vol particulier . . . . .	57
III.5	Étude des incertitudes associées . . . . .	58
III.5.1	Méthode de calcul des incertitudes . . . . .	58
III.5.2	Discussion des incertitudes . . . . .	59
III.6	Conclusion . . . . .	61
<b>IV</b>	<b>Analyse des profils verticaux de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> acquis lors des campagnes Strato-Sciences 2014, 2015 et 2016</b>	<b>63</b>
IV.1	Introduction . . . . .	63
IV.2	Les campagnes Strato-Sciences. . . . .	64
IV.2.1	Présentation générale. . . . .	64
IV.2.1.1	Les ballons stratosphériques ouverts . . . . .	64
IV.2.1.2	Organisation d'une campagne . . . . .	65
IV.2.2	Les campagnes Strato-Sciences 2014, 2015, et 2016. . . . .	66
IV.2.2.1	La campagne Strato-Sciences 2014 . . . . .	66
IV.2.2.2	La campagne Strato-Sciences 2015 . . . . .	69
IV.2.2.3	La campagne Strato-Sciences 2016 . . . . .	70
IV.2.3	Résumé des instruments pour chaque campagne . . . . .	71
IV.3	Les profils AirCore . . . . .	73
IV.3.1	Analyse des mesures . . . . .	73
IV.3.2	Description de l'ensemble des profils mesurés lors des campagnes Strato-Sciences . . . . .	73
IV.3.2.1	Description générale des profils de AirCores . . . . .	73
IV.3.2.2	Les profils obtenus à Timmins en 2014 et 2015 . . . . .	78
IV.3.2.3	Les profils mesurés à Kiruna en 2016. . . . .	78



IV.4	Évaluation des mesures des AirCores . . . . .	78
IV.4.1	Validation de la résolution verticale des AirCores . . . . .	78
IV.4.1.1	Dégradation de la résolution verticale du AirCore-HR à celle d'un AirCore-Light. . . . .	79
IV.4.1.2	Impact d'un délai pour l'analyse . . . . .	81
IV.4.2	Validation par comparaison avec d'autres instruments . . . . .	83
IV.5	Leçons apprises à partir des campagnes. . . . .	85
IV.5.1	L'importance du profil de vol . . . . .	85
IV.5.2	Rôle du sécheur . . . . .	86
IV.6	Conclusion . . . . .	88
<b>V</b>	<b>Apports des AirCores pour la validation de missions spatiales et l'évaluation des modèles</b>	<b>91</b>
V.1	Introduction . . . . .	91
V.2	Les estimations de CH <sub>4</sub> avec l'instrument IASI . . . . .	92
V.2.1	IASI et AMSU à bord de Metop . . . . .	92
V.2.2	Les estimations de CH <sub>4</sub> . . . . .	92
V.2.3	Comparaison avec des modèles . . . . .	94
V.3	Apport des mesures aéroportées pour la validation des mesures spatiales. . . . .	98
V.3.1	Les profils de CH <sub>4</sub> mesurés lors du projet HIPPO . . . . .	98
V.3.2	Évaluation des estimations IASI . . . . .	100
V.3.2.1	Méthodologie . . . . .	100
V.3.2.2	Évaluation des estimations IASI avec des profils issus de modèles de transport seuls	100
V.3.2.3	Évaluation des estimations IASI avec une combinaison de mesures HIPPO et de profils de modèles de transport : importance de la troposphère . . . . .	102
V.3.2.4	Évaluation des estimations IASI avec une combinaison de mesures HIPPO, de profils issus de modèles de transport et de profils issus de AirCores : importance de la stratosphère . . . . .	103
V.4	Apport des AirCores à la validation satellite et à l'évaluation des modèles . . . . .	104
V.4.1	Les profils AirCore disponibles . . . . .	105
V.4.2	Évaluation des estimations de CH <sub>4</sub> IASI. . . . .	106
V.4.3	Interprétation des profils verticaux issus de modèles de transport. . . . .	107
V.4.3.1	LMDz . . . . .	108
V.4.3.2	TM5 . . . . .	108
V.4.3.3	C-IFS (CAM5) . . . . .	110
V.4.3.4	Résultats de l'interprétation des profils. . . . .	111
V.5	Conclusion . . . . .	111
<b>VI</b>	<b>Conclusions et Perspectives</b>	<b>113</b>
VI.1	Développement instrumental des AirCores et traitement des données . . . . .	114
VI.1.1	Réflexions sur la conception instrumentale des AirCores . . . . .	115
VI.1.2	Amélioration du traitement des données. . . . .	115
VI.1.3	Validation des profils et de leur résolution . . . . .	116
VI.1.4	Enseignements sur le déroulement des campagnes . . . . .	116
VI.1.5	Perspectives . . . . .	117
VI.2	Exploitation des profils mesurés à l'aide de AirCores . . . . .	117
VI.2.1	Conclusions sur la validation des mesures satellites. . . . .	117
VI.2.2	Perspectives . . . . .	118
	<b>Bibliographie</b>	<b>121</b>
	<b>Sites Internet</b>	<b>137</b>
	<b>Acronymes</b>	<b>137</b>

<b>Liste des figures</b>	<b>143</b>
<b>Liste des tableaux</b>	<b>145</b>

# Chapitre I

## Introduction générale

### Sommaire

---

<b>I.1</b>	<b>Changement climatique global</b> . . . . .	<b>1</b>
<b>I.2</b>	<b>Cycles biogéochimiques du CO<sub>2</sub> et du CH<sub>4</sub></b> . . . . .	<b>4</b>
I.2.1	Cycle du CO <sub>2</sub> . . . . .	4
I.2.2	Cycle du CH <sub>4</sub> . . . . .	5
I.2.3	L'estimation des flux . . . . .	7
<b>I.3</b>	<b>Les observations atmosphériques des gaz à effet de serre</b> . . . . .	<b>8</b>
I.3.1	Mesures en surface . . . . .	9
I.3.2	Mesures aéroportées . . . . .	10
I.3.3	Observations depuis l'espace . . . . .	11
I.3.4	Avantages et inconvénients des différentes mesures . . . . .	12
<b>I.4</b>	<b>Les enjeux des mesures verticales</b> . . . . .	<b>13</b>
I.4.1	Pourquoi des mesures verticales? . . . . .	13
I.4.2	Les mesures sous ballons . . . . .	13
I.4.3	Motivations du travail de thèse . . . . .	14
<b>I.5</b>	<b>Plan du manuscrit</b> . . . . .	<b>15</b>

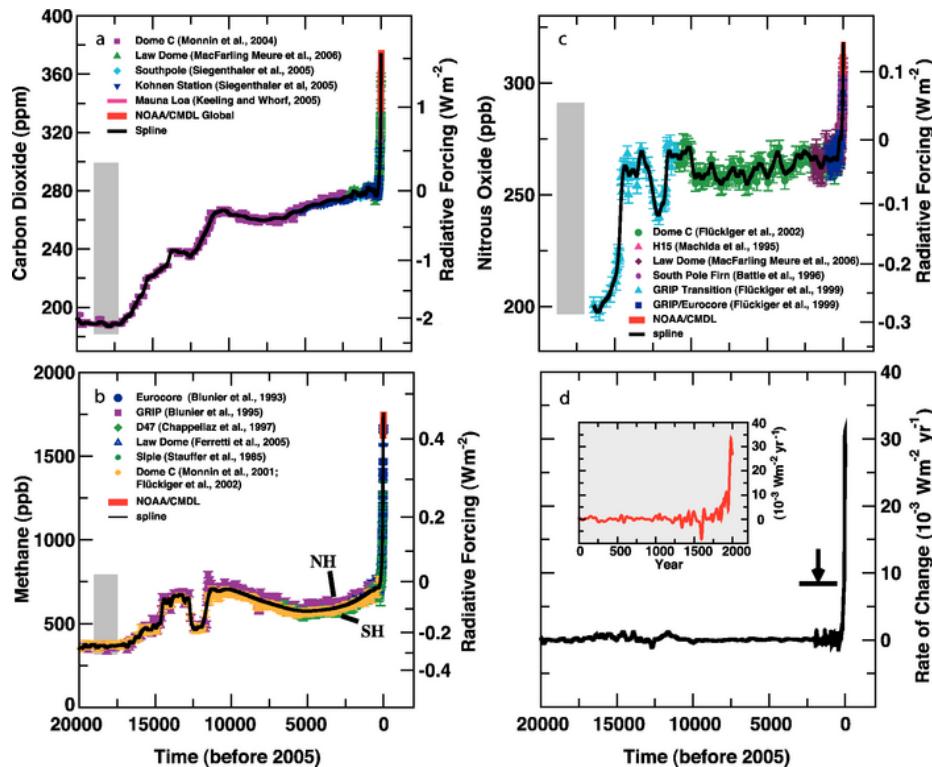
---

### I.1 Changement climatique global

Le climat de la Terre subit actuellement une évolution rapide. À la fois l'atmosphère et les océans se réchauffent, le niveau moyen des océans s'élève et les quantités de neiges et de glace sur les continents diminuent. Au cours des dernières décennies, les preuves que ce changement climatique est directement lié aux activités humaines se sont accumulées (IPCC, 2013). La brusque accélération du progrès technologique, l'explosion des activités industrielles et agricoles, ainsi que la multiplication des moyens de transports, entraînent une modification profonde de notre environnement, modifiant progressivement la composition chimique de l'atmosphère à l'échelle de la Terre entière.

En particulier, les composés chimiques minoritaires dans l'atmosphère ont un impact fondamental sur la régulation de l'équilibre radiatif de la planète. En effet, certains gaz ont la propriété d'absorber une partie du rayonnement infrarouge terrestre. Ces gaz dit à "effet de serre" (GES) sont naturellement présents dans l'atmosphère (vapeur d'eau, dioxyde de carbone, méthane, oxyde d'azote, ozone, etc.). L'énergie qu'ils captent est ensuite renvoyée dans toutes les directions, à la fois vers l'espace, mais aussi vers la surface et vers les différentes couches de l'atmosphère. C'est l'effet de serre naturel qui permet d'avoir une température de surface moyenne d'environ 15°C au lieu de -18°C si l'atmosphère était transparente au rayonnement terrestre. De part sa forte capacité d'absorption, la vapeur d'eau (H<sub>2</sub>O) est le principal contributeur à l'effet de serre naturel (près de 70%) suivi par le dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>) responsable de près de 20%, puis l'ozone (O<sub>3</sub>), le méthane (CH<sub>4</sub>), etc.

Toute modification de la concentration atmosphérique d'un GES induit une modification de l'équilibre climatique. Ainsi, l'atmosphère est certainement le milieu le plus rapidement affecté par les perturbations des équilibres de l'environnement, qu'elles soient d'origine naturelle, comme au cours des grands cycles climatiques ou liées aux activités humaines. Les principaux gaz à effet de serre liés aux activités humaines sont le  $\text{CO}_2$ , le  $\text{CH}_4$  et  $\text{N}_2\text{O}$ . En compilant les mesures de plusieurs archives glaciaires et de mesures atmosphériques récentes, les figures I.1 (a), (b) et (c), montrent que l'augmentation récente de ces constituants dans l'atmosphère est sans commune mesure avec les variations des 20 000 dernières années (IPCC, 2007). De nombreuses mesures permettent d'étendre ce constat à plusieurs centaines de milliers d'années (Jouzel et al., 1993 ; Petit et al., 1999 ; Lorius et al., 1985).



**FIGURE I.1** – Variations des concentrations atmosphériques de gaz  $\text{CO}_2$  (a),  $\text{CH}_4$  (b),  $\text{N}_2\text{O}$  (c) depuis 20000 ans et forçages radiatifs associés. (d) Taux de variation du changement du forçage radiatif. Issue de IPCC, 2007. L'abondance relative de ces constituants est discutée en terme de rapport de mélanges qui se chiffrent en millionnièmes ( $10^{-6}$  - parties par million, ppm), voir en milliardèmes ( $10^{-9}$  - parties par milliard, ppb) de la concentration totale atmosphérique.

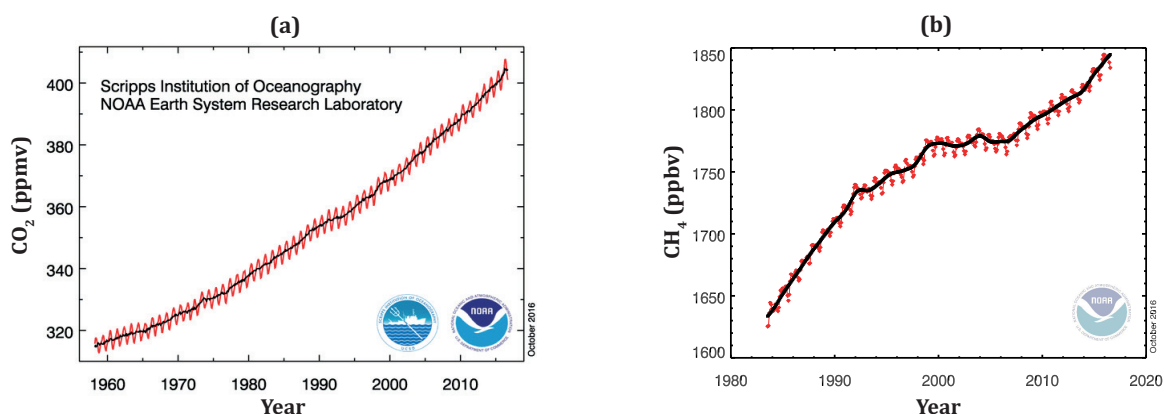
Notre étude concerne principalement  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$ . Durant les cycles climatiques glaciaires / interglaciaires, les quantités de  $\text{CO}_2$  et de  $\text{CH}_4$  présents dans l'atmosphère oscillent entre les teneurs les plus élevées, qui sont trouvées durant les périodes interglaciaires (280 ppm pour le  $\text{CO}_2$  et 750 ppb pour le  $\text{CH}_4$ ), et les teneurs les plus basses, durant les maxima glaciaires (190 ppm et 350 ppb respectivement) (Loulergue et al., 2008 ; Chappellaz et al., 1990 ; Masson-Delmotte et al., 2013).

Concernant les augmentations récentes, depuis 1957, un suivi régulier du  $\text{CO}_2$  est réalisé par différentes stations à la surface du globe. L'exemple le plus connu est l'observatoire d'Hawaï, placé au sommet du Mauna Loa (Keeling, 1960). Des mesures globales de  $\text{CH}_4$  sont également effectuées par le réseau d'observation de la NOAA depuis 1983 (Dlugokencky et al., 2010). Ainsi les figures I.2 (a) et (b) présentent respectivement la série temporelle récente de l'évolution du  $\text{CO}_2$  et du  $\text{CH}_4$  atmosphérique<sup>1</sup>. La courbe

1. Le site du réseau de la NOAA/ESRL (National Oceanic and Atmospheric Administration / Earth System Research Laboratory) donne les valeurs régulièrement actualisées du  $\text{CO}_2$  à Mauna Loa <http://www.esrl.noaa.gov/gmd/ccgg/trends/> et de la moyenne globale du  $\text{CH}_4$  [http://www.esrl.noaa.gov/gmd/ccgg/trends\\_ch4/](http://www.esrl.noaa.gov/gmd/ccgg/trends_ch4/)

rouge présente la moyenne mensuelle, tandis que la courbe noire présente cette même moyenne corrigée des variations saisonnières. En effet, les émissions de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  anthropiques viennent s'ajouter à un cycle naturel dont la saisonnalité est fortement marquée. Pour le  $\text{CO}_2$ , ce cycle saisonnier provient principalement de la variation de l'activité photosynthétique de la biosphère au fil des saisons (intense en été et en automne, faible en hiver et au printemps). La saisonnalité du  $\text{CH}_4$  est plus complexe puisqu'elle fait intervenir deux mécanismes : les variations des émissions naturelles et la variation de la capacité oxydante de l'atmosphère qui conditionne la dégradation du méthane (cf section I.2).

Depuis le début de l'ère industrielle (communément définie comme l'année 1750 (IPCC, 2013)), le rapport de mélange du  $\text{CO}_2$  atmosphérique est passé d'environ 280 ppm à 401 ppm en octobre 2016 soit une augmentation de plus de 40% en l'espace de 250 ans (Hartmann et al., 2013). L'augmentation du  $\text{CO}_2$  est continue depuis le début des mesures dans les années 1960 et a tendance à s'accroître au fil du temps (Fig. I.2 (a)). Pour la décennie de 2002 à 2011, le taux d'accroissement du  $\text{CO}_2$  est d'environ  $2 \pm 0.1 \text{ ppm.an}^{-1}$  ce qui est plus rapide que chacune des décennies précédentes depuis le début des mesures de  $\text{CO}_2$ .



**FIGURE I.2** – (a) du  $\text{CO}_2$  atmosphérique au sommet de l'Observatoire de Mauna Loa, Hawaï, USA. (Keeling, 1960) (b) Évolution récente du  $\text{CH}_4$ , mesures globales de la NOAA (Dlugokencky et al., 2010). Les figures sont issues du site de la NOAA/ESRL. La moyenne mensuelle est indiquée en rouge. La moyenne mensuelle corrigée de la variation saisonnière est indiquée en noir.

Pour le  $\text{CH}_4$ , depuis le début de l'ère industrielle, la moyenne globale du rapport de mélange est passée de 725 ppb à près de 1835 ppb en août 2016. La concentration atmosphérique de méthane a donc augmenté de plus de 150 % en l'espace d'environ 250 ans. Depuis le début des mesures atmosphériques dans les années 80, le taux d'accroissement du méthane a présenté plusieurs évolutions. Il était de  $\sim 12 \text{ ppb.an}^{-1}$  en 1985 (Steele et al., 1992), puis l'accroissement s'est ralenti, marquant même une pause ( $\sim 0 \text{ ppb.an}^{-1}$ ) en l'an 2000 (Dlugokencky et al., 1998 ; Dlugokencky et al., 2003), avant de repartir à la hausse depuis 2006 ( $\sim 7 \text{ ppb.an}^{-1}$  et la tendance s'accroît). L'origine de ces variations est encore débattue et pourrait provenir d'une atténuation des émissions des sources naturelles dans les années 2000 compensant les émissions liées aux activités humaines (Bousquet et al., 2006 ; Nisbet et al., 2014 ; Saunio et al., 2016).

Ces augmentations de  $\text{CO}_2$  et de  $\text{CH}_4$  bouleversent l'équilibre radiatif de la planète. Selon la définition proposée par le GIEC (Groupe Intergouvernemental d'Experts sur l'évolution du Climat ou IPCC - Intergovernmental Panel of Climate Change), on parle de forçage radiatif anthropique pour quantifier le changement net dans l'équilibre énergétique de la planète depuis le début de l'ère industrielle (Myhre et al., 2013). Les échelles de droite sur les figures I.1 (a), (b) et (c) révèlent que l'augmentation du forçage radiatif anthropique lié aux différents gaz  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$  et  $\text{N}_2\text{O}$  est directement proportionnelle à l'augmentation de la concentration de ces gaz. Par ailleurs, la vitesse d'augmentation du changement du forçage radiatif s'accroît (Fig. I.1 (d)).

À eux deux,  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  sont responsables de près de 90% du forçage radiatif lié aux émissions de gaz à effet de serre par les activités humaines (Myhre et al., 2013). Ce forçage radiatif additionnel bouleverse l'équilibre climatique et entraîne l'augmentation des températures de surface. L'année 2016 est particulièrement représentative de cette augmentation continue puisque chaque mois des nouveaux records de températures moyennes à la surface du globe sont battus alors même que chacune des années précédentes avaient déjà été marquées par des augmentations de températures.

Ainsi, pour limiter l'impact de l'homme sur l'environnement et le réchauffement climatique dû au rejet croissant de gaz à effet de serre par les activités humaines, il est nécessaire de prendre des décisions réglementaires. Depuis 1992, lorsque la Convention Cadre des Nations Unies sur le Changement Climatique (UNFCCC) s'est déroulée à Rio de Janeiro, les représentants des différents pays du monde se réunissent pour discuter des questions climatiques. Les décennies suivantes ont vu alterner des périodes d'avancée (ratification du protocole de Kyoto en 1997) et de recul (échec des négociations à la conférence de Copenhague en 2009) avant d'aboutir à un premier accord d'envergure internationale lors de la COP21 à Paris en décembre 2015 pour lutter contre le changement climatique impliquant tous les gros émetteurs de gaz à effet de serre avec l'objectif de limiter le réchauffement global à  $1,5^\circ\text{C}$ .

Dans ce contexte, le suivi et la prévision de l'évolution de la concentration atmosphérique des deux principaux gaz à effet de serre anthropogéniques ( $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$ ) sont des enjeux majeurs au cœur des recherches actuelles en sciences du climat. Ces enjeux nécessitent une compréhension approfondie du fonctionnement des cycles biogéochimiques de ces gaz à l'échelle planétaire.

## I.2 Cycles biogéochimiques du $\text{CO}_2$ et du $\text{CH}_4$

Le  $\text{CO}_2$  et le  $\text{CH}_4$  sont des gaz à longue durée de vie dont le temps de résidence dans l'atmosphère se chiffrent à : quelques dizaines d'années pour le  $\text{CH}_4$  dont la réactivité en fait un acteur important de la chimie atmosphérique (Voulgarakis et al., 2013; Dentener et al., 2003), quelques centaines à milliers d'années pour le  $\text{CO}_2$  qui lui est inerte dans l'atmosphère d'un point de vue chimique (Eby et al., 2009; Archer et al., 2008).

L'augmentation de ces gaz dans l'atmosphère est conditionnée par les émissions anthropiques de ces gaz qui s'additionnent à un cycle naturel actif. Néanmoins les cycles du  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  sont assez différents et toujours présentés séparément. Par abus de langage on parle souvent du cycle du  $\text{CO}_2$  comme du cycle du carbone tant ce gaz domine la composition atmosphérique des composés carbonés en terme de masse (près de 215 fois plus élevée que celle du méthane). Cependant, l'efficacité du  $\text{CH}_4$  à absorber le rayonnement infrarouge est bien supérieure à celle du dioxyde de carbone. Son pouvoir de réchauffement global<sup>2</sup> est de 86 sur un horizon temporel de 20 ans (Myhre et al., 2013) ce qui rend primordial l'étude des flux qui régulent sa présence dans l'atmosphère.

En prenant l'atmosphère comme réservoir de référence dont on souhaite caractériser les flux de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$ , on parle alors de sources et de puits pour les entrées et sorties et de budget pour la quantité totale du gaz présent dans l'atmosphère. Usuellement, pour le  $\text{CO}_2$  les quantités sont exprimées en PgC (Pétagramme de Carbone -  $10^{15}\text{g}$ )<sup>3</sup>. Pour le  $\text{CH}_4$ , les quantités sont exprimées à l'ordre inférieur soit en TgC (Téragramme de Carbone -  $10^{12}\text{g}$ ). Le contenu total respectivement en  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  de l'atmosphère est ainsi ramené à une quantité de masse.

### I.2.1 Cycle du $\text{CO}_2$

On retrouve dans l'atmosphère une quantité d'environ 830 PgC (Prather et al., 2012) et les mécanismes qui conditionnent l'évolution de la concentration de  $\text{CO}_2$  sont assez complexes puisque pratiquement toutes les régions de la surface des océans et des continents peuvent à la fois émettre ou absorber du  $\text{CO}_2$ . Le budget du  $\text{CO}_2$  est déterminé par plusieurs sources principalement liées aux activités humaines équilibré par des puits biologiques et océaniques qui absorbent une partie des émissions.

2. Le pouvoir de réchauffement global (GWP - Global Warming Potential) est défini comme le rapport entre le forçage radiatif induit par l'émission d'1 kg d'un gaz à effet de serre et le forçage radiatif induit par l'émission d'1 kg de  $\text{CO}_2$  que l'on intègre sur une période de temps donnée.

3. C'est équivalent à la notation en GtC ( $10^9$  tonnes de Carbone)

Pour la période 1750-2013, le total des émissions de CO<sub>2</sub> est estimé à  $580 \pm 70$  PgC, dont  $395 \pm 20$  PgC proviennent des émissions liées aux combustibles fossiles et  $185 \pm 65$  PgC proviennent des changements d'usage des sols. Moins de la moitié du CO<sub>2</sub> émis dans l'atmosphère s'est accumulé dans l'atmosphère ( $250 \pm 5$  PgC), le reste a été absorbé par les océans ( $170 \pm 20$  PgC) et la biosphère ( $160 \pm 60$  PgC) (Le Quéré et al., 2015).

Les secteurs qui utilisent le plus de combustibles fossiles sont les usines productrices d'énergie, de ciment, ainsi que les raffineries, et les industries pétrochimiques et sidérurgiques (Ciais et al., 2013). La déforestation par le feu et les changements d'utilisation des sols modifient le cycle du carbone par deux effets négatifs (Batjes, 1996) : ces activités entraînent l'émission de CO<sub>2</sub>, mais aussi détruisent et donc réduisent par la même occasion une partie du réservoir de carbone qu'est la biosphère. D'ailleurs, historiquement l'augmentation du CO<sub>2</sub> au-delà des niveaux pré-industriels a dans un premier temps été causée par les rejets de carbone dans l'atmosphère liés à la déforestation et aux changements d'usage des sols. Les émissions liées aux énergies fossiles ne sont devenues la source dominante d'émissions anthropiques dans l'atmosphère qu'à partir des années 1920 et leur part relative n'a cessé d'augmenter depuis. Pour la décennie 2005-2014, les émissions liées aux combustibles fossiles représentent 91% des émissions anthropiques de CO<sub>2</sub> avec un flux de  $9.0 \pm 0.5$  PgC.an<sup>-1</sup> (Le Quéré et al., 2015).

Les échanges de dioxyde de carbone entre l'atmosphère et la biosphère sont gouvernés par deux mécanismes qui ont lieu en parallèle, la photosynthèse et la respiration. Lors de la photosynthèse, les plantes utilisent l'énergie du soleil pour synthétiser de la matière organique à partir du CO<sub>2</sub> (Beer et al., 2010). À l'inverse, lors de la respiration auto-trophique, les plantes utilisent de la matière organique qu'elles transforment en CO<sub>2</sub>. On peut également ajouter aux échanges de la biosphère, les émissions de CO<sub>2</sub> liées aux feux d'origine naturelle (Le Quéré et al., 2014). Au bilan, la biosphère est un puits de CO<sub>2</sub> d'en moyenne  $3.0 \pm 0.8$  PgC.an<sup>-1</sup> pour la période 2005-2014 (Le Quéré et al., 2015).

L'océan se comporte également comme un puits de CO<sub>2</sub> dont le flux moyen est  $2.6 \pm 0.6$  PgC.an<sup>-1</sup> (Le Quéré et al., 2015). Un transfert de CO<sub>2</sub> entre l'atmosphère et l'océan a lieu dès qu'un déséquilibre entre la pression partielle de CO<sub>2</sub> à la surface de l'océan et la pression partielle du CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère existe. Dans les eaux froides plus denses, la dissolution du CO<sub>2</sub> est favorisée. La capture de CO<sub>2</sub> par l'océan est donc plus importante dans les eaux froides aux hautes latitudes. Le CO<sub>2</sub> capturé est alors entraîné vers l'océan profond par les courants froids descendants comme ceux existants dans l'Atlantique Nord. À l'inverse, les eaux chaudes, synonymes de courants ascendants favorisent la remontée de dioxyde de carbone et son rejet dans l'atmosphère. Par ailleurs, l'augmentation du CO<sub>2</sub> dans l'océan a des répercussions majeures sur la biodiversité marine de par l'augmentation des carbonates qui acidifient l'océan. Cette acidification menace l'équilibre de nombreuses espèces animales.

## I.2.2 Cycle du CH<sub>4</sub>

Dans l'atmosphère, on retrouve une quantité de CH<sub>4</sub> d'environ 5000 TgCH<sub>4</sub> (Ciais et al., 2013 ; Saunois et al., 2016 ; Kirschke et al., 2013) qui provient de l'équilibre entre différentes sources d'émissions actives en surface et sa destruction par des réactions chimiques avec le radical hydroxyle (OH) dans l'atmosphère (Naik et al., 2013 ; Prinn et al., 2005). Il a été estimé qu'avant le début des activités industrielles, la quantité de CH<sub>4</sub> dans l'atmosphère avoisinait les 2000 TgCH<sub>4</sub>. On retrouve donc qu'en l'espace d'environ 250 ans, la quantité de CH<sub>4</sub> dans l'atmosphère a augmenté de près de 150% (Ciais et al., 2013).

Une approche classique pour présenter les différentes sources actives de méthane dans l'atmosphère est de les grouper en trois catégories suivant les processus qui génèrent du méthane : biogéniques, thermogéniques et pyrogéniques (Kirschke et al., 2013).

Les émissions biogéniques sont générées par la décomposition de matière organique lors de fermentations successives réalisées par des microbes méthanogènes dans des environnements anaérobiques. On retrouve dans cette catégorie les zones humides (marais, tourbières, rizières...), les émissions provenant du fond de réservoirs d'eaux faiblement oxygénées (barrages, réservoirs, lacs, fleuves), mais aussi les émissions provenant des systèmes digestifs des animaux (des termites, des ruminants et des animaux sauvages) ou encore les dépôts de matières organiques (lisiers, égouts, décharges).

Les émissions thermogéniques sont liées aux rejets de gaz naturel. D'une part, elles peuvent provenir de méthane relargué naturellement dans l'atmosphère au travers de suintements terrestres, d'éruptions ou de boues volcaniques et par fusion des hydrates marins ou terrestre dans les régions où se trouve

le pergélisol. D'autre part, elles peuvent être liées aux activités humaines par l'exploitation de mines de charbon ou de gisements de pétrole, ainsi qu'aux fuites lors de l'extraction, du transport et de la distribution de gaz naturel.

Enfin, les émissions de méthane pyrogénique réfèrent aux émissions  $\text{CH}_4$  liées aux feux, notamment lors de la combustion incomplète de biomasse lors de feux naturels ou de la combustion de bio-carburant.

Pour détailler les flux liés aux émissions de méthane, on peut les distinguer suivant leur origine anthropique ou naturelle.

Ainsi, on regroupe essentiellement les émissions des zones humides, des termites, des hydrates et des diverses sources géologiques dans les émissions naturelles. L'étude de [Kirschke et al., 2013](#), estime l'ensemble des sources d'origine naturelle à 218 [179-273]  $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$  pour la décennie 2001-2010. Les émissions par les zones humides sont les plus fortes (entre 177 et 284  $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ ). C'est la source individuelle de méthane la plus importante. De plus, les sources géologiques, les termites, les hydrates et les émissions par les eaux douces contribuent respectivement à 33-75, 2-22, 2-9 et 8-73  $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$  toujours pour la décennie 2001-2010 ([Ciais et al., 2013](#)).

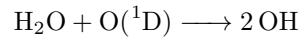
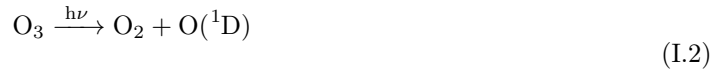
Les émissions anthropiques sont liées à l'agriculture, aux traitements des déchets, aux feux de biomasse ainsi qu'à l'extraction, au transport et à l'utilisation des combustibles fossiles. Dans l'ensemble, les sources d'origine anthropiques sont responsables de 50 à 65 % des émissions de méthane. Elle sont estimées à 335 [273-409]  $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$  ([Kirschke et al., 2013](#) ; [Saunois et al., 2016](#)). Les émissions dues aux combustibles fossiles, aux traitements des déchets, à la riziculture et aux élevages de bétail contribuent respectivement à 85-105, 67-90, 33-40 et 87-94  $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ .

Le puits principal du  $\text{CH}_4$  atmosphérique est l'oxydation par le radical hydroxyle (OH) intervenant principalement dans la troposphère et légèrement dans la stratosphère. La réaction d'oxydation du méthane par OH produit une molécule d'eau et un radical méthyle selon la formule :



Ce puits est responsable à hauteur d'environ 90 % de la destruction de  $\text{CH}_4$  (470-701  $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ ) ([Ciais et al., 2013](#)).

OH dans l'atmosphère est principalement formé par la photodissociation de l'ozone par le rayonnement solaire UV ([Levy, 1971](#) ; [Lawrence et al., 2001](#)) suivant les réactions :



Ceci explique que les plus fortes concentrations d'OH sont retrouvées dans les régions tropicales en été, lorsqu'un fort rayonnement UV et une humidité relative importante sont présents. La dépendance d'OH à la lumière et la présence de vapeur d'eau entraîne un cycle saisonnier d'OH important aux plus hautes latitudes qui se retrouve dans le cycle saisonnier observé du méthane. Les maximum d'OH en été entraînent des minimum de méthane en fin d'été.

Des puits d'oxydation additionnels incluent des bactéries méthanotrophes dans des sols aérés ( $\sim 4\%$ ), des réactions avec les radicaux chlore et des atomes d'oxygène radicaux dans la stratosphère ( $\sim 3\%$ ) ainsi que des réactions avec les radicaux chlore produit par les sels marins dans la couche limite marine ( $\sim 3\%$ ) ([Kirschke et al., 2013](#)).



### I.2.3 L'estimation des flux

Le nombre important de sources et de puits différents apparaît clairement dans le détail des flux de CO<sub>2</sub> et du CH<sub>4</sub> qui vient d'être donné. Attribuer à un type d'émission spécifique une anomalie est particulièrement compliqué lorsque de nombreux types d'émissions sont potentiellement responsables de cette anomalie. L'estimation des flux n'est donc pas un problème simple d'autant plus que l'hétérogénéité spatiale et la variabilité temporelle de l'activité des sources et des puits est importante.

Les estimations de flux qui viennent d'être présentées sont obtenues grâce à un ensemble de modèles suivant deux approches complémentaires (Ciais et al., 2013; Le Quéré et al., 2015; Saunois et al., 2016). La première part de mesures de flux pour tenter de comprendre les mécanismes qui les gouvernent : c'est l'approche directe ou "montante" (bottom-up). La deuxième repose sur la mesure des rapports de mélange atmosphérique des gaz à effet de serre pour inférer les sources et les puits à la surface : c'est l'approche inverse ou "descendante" (top-down).

#### Approche montante - "bottom-up"

L'approche montante consiste à répertorier, par des mesures directes de flux, l'ensemble des phénomènes naturels contrôlant les sources et les puits au niveau local puis à les extrapoler à l'échelle régionale voire globale. La modélisation directe repose alors sur un ensemble de sous-modèles biogéochimiques, hydrologiques et une connaissance des flux anthropiques. Cette méthode nécessite des études détaillées des différentes caractéristiques naturelles qui peuvent influencer les flux (inventaire précis des différentes couvertures végétales, ainsi que des feux, étude fine des conditions météorologiques affectant les différentes régions concernées). Par ailleurs, pour les flux liés aux activités anthropiques, des études statistiques détaillées de l'utilisation de l'énergie par les différents secteurs des activités humaines (industries, particuliers, transports, activités agricoles...) associées à des facteurs d'émissions spécifiques suivant les différents secteurs sont nécessaires. Les bases d'inventaires les plus connues sont EDGAR (Emissions Database for Global Atmospheric Research) et GFED (Global Fire Emission Database) qui rassemblent respectivement les émissions anthropiques et les émissions liées aux feux.

Cette approche est généralement limitée par des facteurs d'émissions imprécis et un report incomplet des statistiques d'activités par les différents pays. Par ailleurs, la grande hétérogénéité des sources rend très locale une mesure des flux et la grande variabilité temporelle de certaines sources nécessiterait des mesures à très hautes fréquences. Au vue des dernières études, il apparaît que l'approche bottom-up a tendance à surestimer les flux (Saunois et al., 2016; Le Quéré et al., 2015).

#### Approche descendante - "top-down"

L'approche descendante consiste à retrouver les flux de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> à la surface, par l'étude des variations spatiales et temporelles de la concentration atmosphérique de ces gaz. Il s'agit dans ce cas de modélisation inverse puisque la méthode consiste à inférer les flux associés aux sources et puits à la surface à partir des variations des rapports de mélange de ces gaz observés dans l'atmosphère. Cette modélisation inverse repose sur un ensemble de sous modèles de chimie et de transport atmosphérique pour relier les émissions à la surface aux observations.

Cette approche ne requiert pas de connaître explicitement les processus à l'origine des émissions, mais elle nécessite de représenter correctement les processus atmosphériques qui transportent et interagissent chimiquement avec les gaz émis à la surface (Houweling et al., 1999; Chevallier et al., 2005; Bousquet et al., 2006). En partant d'une connaissance *a priori* des flux, on utilise dans un premier temps les modèles pour restituer suivant 4 dimensions (latitude, longitude, altitude et temps) la variabilité des constituants atmosphériques dans leur intégralité. Ces modèles sont fondés sur un ensemble d'équations physiques : les mouvements du fluide atmosphérique par les équations de la dynamique des fluides, le bilan d'énergie radiative par l'équation thermodynamique de conservation de la chaleur, et enfin l'évolution chimique et dynamique des différents constituants, au moyen des équations de conservation de la masse.

Suivant plusieurs étapes d'itérations successives, le but de la modélisation inverse est alors de déterminer les flux optimisés qui permettent un accord optimal entre les concentrations observées et les concentrations simulées. Pour plus d'informations, Houweling et al., 2016, propose un aperçu complet des méthodes actuelles pour la modélisation inverse du CH<sub>4</sub>.

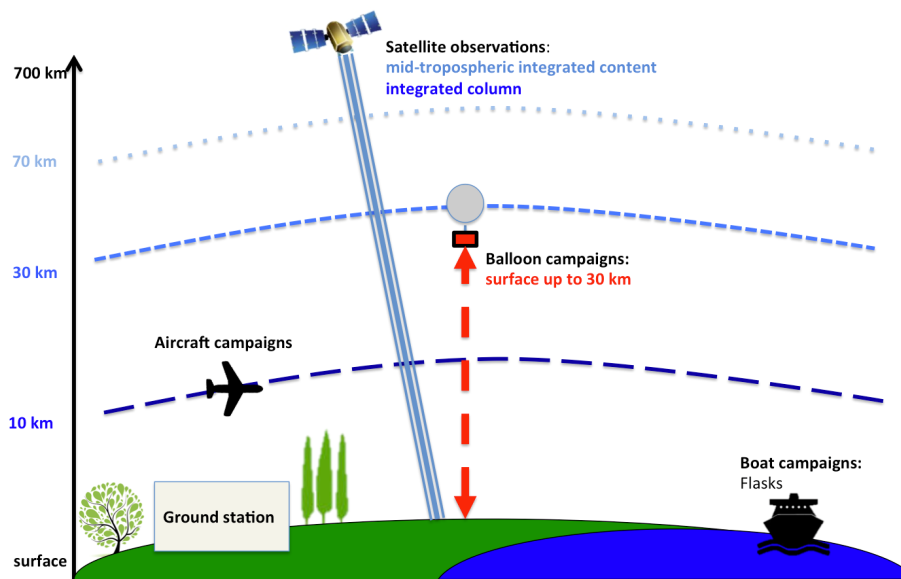
Différents modèles de chimie-transport permettent ainsi d'estimer les flux optimisés de  $\text{CO}_2$  ou de  $\text{CH}_4$  (D. F. Baker et al., 2006; Rödenbeck et al., 2003; Bousquet et al., 2011; Houweling et al., 2000). Ces modèles ont permis d'améliorer grandement les connaissances sur les émissions à des échelles régionales et globales (Houweling et al., 2000; Houweling et al., 2014; Monteil et al., 2011).

Historiquement, la modélisation inverse utilise principalement des observations des réseaux de mesures en surface (Saunois et al., 2016; Le Quéré et al., 2015). Depuis peu, des observations satellites et aéroportées sont également utilisées pour contraindre les flux dans les modèles inverses (Deng et al., 2016; Chevallier et al., 2014; Houweling et al., 2014; Monteil et al., 2013; Saito et al., 2013; Locatelli et al., 2015; Pandey et al., 2015; Bergamaschi et al., 2009).

De fortes différences peuvent être retrouvées entre les champs 3D de  $\text{CH}_4$  simulés par les différents modèles inverses (Patra et al., 2011). Ces différences montrent que des erreurs existent dans la modélisation du transport et de la chimie des différents modèles (Locatelli et al., 2013). La correction de ces potentielles erreurs fait l'objet de travaux continus pour améliorer la qualité des modèles inverses (Locatelli, 2014).

Dans le cadre de cette thèse, l'estimation des flux par modélisation inverse est l'approche qui nous concerne, puisqu'elle repose sur des observations atmosphériques multiples (cf section I.3). En effet, en plus de l'amélioration des modèles de transports et de chimie, une meilleure estimation des flux de surface par cette approche nécessite un développement continu des observations atmosphériques.

### I.3 Les observations atmosphériques des gaz à effet de serre



**FIGURE I.3** – Les différentes méthodes d'observation atmosphériques de gaz à effet de serre  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$

L'objectif des observations atmosphériques de gaz à effet de serre est de suivre l'évolution de ces gaz. Il faut pouvoir déterminer à la fois la tendance à long terme liée aux émissions globales, un cycle saisonnier lié à l'activité de la végétation ou la disponibilité d' $\text{OH}$ , et une variabilité synoptique liée au transport des masses d'air sur des durées de quelques heures à quelques jours. Typiquement, en un an, l'air de l'hémisphère Nord est mélangé à celui de l'hémisphère Sud et vice-versa. Aux moyennes latitudes de l'hémisphère Nord, c'est en quelques jours que des émissions sont transportées autour de la Terre par une circulation zonale des masses d'air bien plus efficace que le mélange en latitudes. Par nature, ce travail nécessite donc des moyens d'observations continus et diversifiés à l'échelle globale (Fig. I.3).

### I.3.1 Mesures en surface

Les mesures de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  en surface sont de plusieurs types. Elles peuvent être réalisées directement à des points fixes dans des stations de mesures atmosphériques, ou provenir de l'analyse en laboratoire centralisé de prélèvements par flacons d'air d'échantillons venant des quatre coins du monde ou être réalisées avec des instruments embarqués dans des plateformes mobiles (véhicules ou camion) lors de campagnes de mesures ponctuelles. Nous ne nous intéresserons ici qu'aux réseaux de stations qui permettent d'établir les mesures globales servant de référence.



**FIGURE I.4** – Station de mesure atmosphérique de Lutjewad, Province de Groningen, Pays-Bas. Son mât de 60m permet de réaliser la mesure de gaz à différents niveaux. Réseaux ICOS et InGOS.

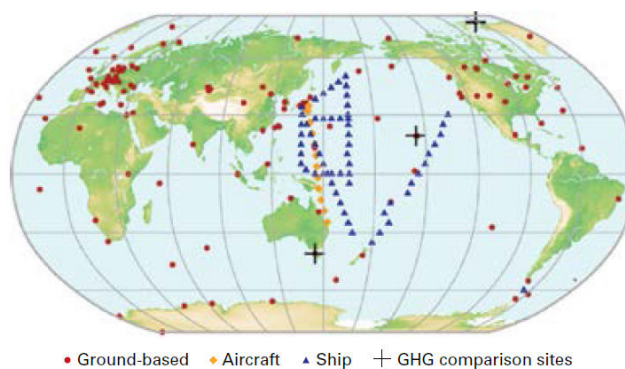
Une station de mesure atmosphérique est généralement constituée d'un bâtiment fixe et bien équipé, implanté sur un site en plein air relativement isolé de toute pollution locale qui permet d'héberger de nombreux instruments en simultané. Les installations scientifiques regroupées sur le site d'une station fournissent en continu des mesures à très haute précision d'un grand nombre de paramètres météorologiques, d'espèces gazeuses et d'aérosols, avec une haute répétabilité temporelle, et parfois à plusieurs niveaux différents le long d'un mât (Fig. I.4). Dans un effort global d'harmonisation des mesures, les instruments sont étalonnés régulièrement avec l'air de cylindres contenant des gaz de concentration de référence. De plus, des flacons d'air y sont souvent prélevés à intervalle régulier pour vérifier les mesures en laboratoire centralisé ou pour réaliser l'analyse d'espèces chimiques additionnelles.

nelles couvrant une région, un pays, ou un hémisphère et fournissant les mêmes mesures calibrées et synchronisées.

Parmi ceux-ci, on peut citer "Global Greenhouse Gas Reference Network" coordonné par la NOAA/ESRL/GMD<sup>4</sup> qui assure la mesure d'échantillons prélevés par flacon d'air en surface de nombreux composés atmosphériques dont  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$ ; le programme Global Atmospheric Watch de l'organisation météorologique mondiale<sup>5</sup>; le réseau NDACC<sup>6</sup>; ou à l'échelle européenne, le réseau ICOS<sup>7</sup> pour le  $\text{CO}_2$  et son équivalent InGOS<sup>8</sup> pour les autres gaz à effet de serre.

Les mesures en stations fournissent des données de qualité pour calculer les tendances saisonnières ou inter-annuelles de certains composés. Le grand nombre d'espèces mesurées et l'étendue des périodes de mesures permettent de calculer des corrélations entre les différentes espèces afin de mieux contraindre les modèles numériques. Ces stations en surface apportent des obser-

Ces stations atmosphériques sont organisées en réseaux constitués d'un ensemble de stations d'observations perma-



**FIGURE I.5** – Stations du programme Global Atmospheric Watch de l'Organisation Météorologique Mondiale utilisées pour le calcul de la valeur moyenne de  $\text{CO}_2$  (GAW-WMO). Le réseau qui permet le calcul de la valeur moyenne de  $\text{CH}_4$  est quasiment identique.

4. National Oceanic and Atmospheric Administration / Earth System Research Laboratory / Global Monitoring Division

5. GAW, OMM ou WMO pour World Meteorology Organization

6. Network for Detection Atmospheric Composition Change

7. Integrated Carbon Observation System

8. Integrated non- $\text{CO}_2$  Greenhouse gas Observing system

vations à long terme à des coûts relativement peu élevés.

Les sites d'altitude ou isolés sont particulièrement intéressants, car l'air plus sec convient mieux aux instruments et les perturbations par la pollution locale sont en général négligeables. C'est le cas des stations et des sites de prélèvements par flacons d'air sélectionnés par le programme de référence GAW de l'OMM dont les résultats servent à calculer les valeurs globales en surface de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> (Fig. I.5). Les espèces chimiques y sont mesurées dans des conditions optimales de calibration et les mesures servent souvent de référence pour les autres systèmes d'observations.

Malgré les nombreux efforts entrepris ces dernières années, les stations en surface ont une couverture spatiale limitée et non uniforme sur le globe terrestre. Les sites sont principalement répartis en Europe et aux États-Unis. Des régions entières restent encore largement sous documentées, c'est le cas en particulier des régions tropicales et des océans (Fig. I.5). En particulier, les continents tropicaux d'Amérique du Sud, d'Asie du Sud, ou d'Afrique ne disposent de pratiquement aucune station de mesure. En conséquence, il est difficile de contraindre les flux de carbone dans les inversions.

### I.3.2 Mesures aéroportées

Pour résoudre le problème de la couverture spatiale et temporelle, et apporter quelques informations sur la verticale, une première approche consiste à déployer des instruments de mesures ou à prélever des flacons d'air lors de vol par avion. Ces mesures aéroportées sont de plusieurs types, elles peuvent être réalisées avec des avions commerciaux ou des avions scientifiques dédiés.

L'utilisation des avions commerciaux est assez récente. On peut citer le projet français MOZAIC<sup>9</sup> qui a réalisé des mesures de 1994 à aujourd'hui (Cammass et al., 2008) suivi par le programme IAGOS<sup>10</sup> de 2011 à aujourd'hui (Petzold et al., 2015; Filges et al., 2015), le projet CARIBIC<sup>11</sup> (Brenninkmeijer et al., 1999; Brenninkmeijer et al., 2007; Schuck et al., 2009) et le projet CONTRAIL<sup>12</sup> (Machida et al., 2008; Schuck et al., 2012). Les mesures aéroportées sur des avions de lignes sont automatiques et régulières. Toutefois, les plans de vols de ces avions commerciaux ne sont pas flexibles : les constituants sont donc systématiquement mesurés le long de trajectoires imposées. La majorité des mesures sont effectuées aux altitudes de croisière des avions, soit entre 9 et 12 km (Fig. I.3), le reste correspondant à des profils verticaux obtenus durant les phases de décollage ou d'atterrissage des avions au niveau des aéroports.

Ces mesures offrent un moyen unique de renseigner la description de la chimie de la haute troposphère et des processus d'échanges entre la haute troposphère et la basse stratosphère. Les données apportées par ces mesures aéroportées ont déjà été utilisées pour estimer les flux à l'échelle de certaines régions (Zhang et al., 2014; Schuck et al., 2010; A. K. Baker et al., 2012), ainsi que pour évaluer le transport atmosphérique et les estimations de flux de modèles de transport (Chevallier et al., 2010; Saito et al., 2013).

Les mesures avec des avions scientifiques dédiés peuvent être décomposées selon deux échelles spatiales. Elles utilisent soit de petits avions de tourisme pour réaliser des mesures régulières ou des campagnes de mesures spécifiques à l'échelle d'une région, soit des avions jets spécifiquement transformés pour accueillir un certain nombre d'instruments de mesures et réaliser des campagnes de mesures à l'échelle globale ou à des altitudes plus élevées.

Certaines mesures régulières sont menées à l'échelle régionale, notamment aux États-Unis par la NOAA (Sweeney et al., 2015). Ces observations ont permis d'améliorer la contrainte sur l'estimation des flux de CO<sub>2</sub> (Crevoisier et al., 2006; Crevoisier et al., 2010). Initialement réalisées par des prélèvements par flacon d'air, des analyseurs continus permettent aujourd'hui d'effectuer des mesures continues le long des trajectoires (Chen et al., 2010). Des campagnes aéroportées ciblées ont permis de s'intéresser aux émissions tropicales de méthane (Beck et al., 2012) ou plus spécifiquement à l'échelle locale aux émissions liées au secteur des gaz de schistes par exemple (Karion et al., 2013).

A l'échelle globale, le projet le plus connu est HIPPO<sup>13</sup> (Wofsy, 2011) qui a permis d'étudier la variabilité verticale de différents gaz et composés associés au cycle du carbone au travers de mesures

9. Measurements of OZone, water vapour, carbon monoxide and nitrogen oxides by in-service Airbus airCraFt

10. In-service AirCraFt for a Global Observing System

11. Civil AirCraFt for Regular Investigation of the Atmosphere Based on an Instrument Container

12. Comprehensive Observation Network for TRace gases by AirLiner

13. HIAPPER Pole-to-Pole

aéroportées à diverses altitudes le long de trajectoires allant d'un pôle à l'autre. Ces mesures ont montré leur intérêt pour valider des observations satellites (Wecht et al., 2012) ainsi que des estimations des flux de carbone (Wang et al., 2014). Nous présenterons plus de détails sur ce dernier projet dans la partie V.3.1, où nous utiliserons des profils de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> mesurés lors de campagnes HIPPO.

Les observations aéroportées apportent de nombreuses informations complémentaires sur les variations latitudinales, longitudinales et verticales du CO<sub>2</sub> et du CH<sub>4</sub>, mais restent toutefois limitées à des campagnes de mesures spécifiques, ou des mesures le long de quelques trajectoires de vols commerciaux.

### I.3.3 Observations depuis l'espace

#### I.3.3.1 Les estimations satellites de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub>

Les observations depuis l'espace sont une des réponses possibles pour étendre de manière globale les mesures de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub>. Ainsi, un certain nombre de missions spatiales en cours sont consacrées à l'étude de ces gaz. Elles apportent un grand nombre d'observations (300 000 estimations par jour par exemple pour l'instrument IASI). Cependant, la précision d'une observation individuelle est moindre que celle associée aux observations réalisées à la surface.

L'observation depuis l'espace des gaz à effet de serre est principalement effectuée par des instruments embarqués sur des plateformes satellites en orbite polaire héliosynchrones (à une distance entre 600 et 800 km de la surface terrestre) (Fig. I.3). L'heure de passage de tels satellites à l'équateur est invariable, ce qui est un paramètre essentiel dans le cas de mesures de constituants chimiques ayant une variation diurne marquée. Actuellement, seuls des instruments utilisant des méthodes de télédétection dite "passives" ont été déployés dans l'espace pour les mesures de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub>. Les mesures avec cette méthode de télédétection visent à récolter le rayonnement d'une source naturelle. Le rayonnement récolté, après avoir traversé les différentes couches de l'atmosphère, contient une information sur les paramètres physiques du milieu sondé. Le choix de bandes spectrales de mesures spatiales s'opère en fonction de régions spectrales dans lesquelles les constituants atmosphériques à étudier possèdent des raies d'absorption.

Les différentes observations actuelles permettent essentiellement des mesures de colonnes totales ou partielles de CO<sub>2</sub> ou de CH<sub>4</sub> à partir de mesures au nadir du rayonnement solaire réfléchi par la surface dans la bande spectrale du proche infrarouge (SWIR - Short Wave Infrared) ou du rayonnement terrestre dans la bande spectrale de l'infrarouge thermique (TIR - Thermal InfraRed).

Les observations dans le SWIR permettent de mesurer des contenus intégrés de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> sous forme de colonnes totales. Dans cette bande spectrale, les mesures sont possibles uniquement de jour et principalement au-dessus des surfaces continentales. L'instrument 'Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Chartography' (SCIAMACHY) à bord d'Envisat a fourni des informations sur la période 2003-2012 (Frankenberg et al., 2008 ; Frankenberg et al., 2011 ; Wecht et al., 2014). L'instrument TANSO-FTS de la mission japonaise 'Greenhouse Gases Observing Satellite' (GOSAT) fournit des observations de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> depuis 2009 (Yokota et al., 2009 ; Butz et al., 2011) et plus récemment la mission américaine 'Orbiting Carbon Observatory - 2' (OCO-2) est entièrement dédiée à l'étude du CO<sub>2</sub> (Crisp et al., 2004 ; Hammerling et al., 2012 ; Thompson et al., 2012).

Les observations dans l'infrarouge thermique permettent d'accéder à des contenus intégrés centrés sur la moyenne troposphère et de réaliser des observations de jour comme de nuit, sur terre comme sur mer : le sondeur AIRS (Atmospheric InfraRed Sounder) à bord du satellite Aqua de la NASA depuis 2002 (Crevoisier et al., 2003 ; Xiong et al., 2010), le Tropospheric Emission Spectrometer (TES) de 2004-2011 (Worden et al., 2012), ainsi que les mesures avec le sondeur infrarouge IASI, lancé à bord de Metop-A en Octobre 2006 et de Metop-B en Septembre 2012, qui donne accès à de nombreux composés atmosphériques dont CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> (Crevoisier et al., 2009a ; Crevoisier et al., 2009b ; Crevoisier et al., 2013 ; Xiong et al., 2013). D'une durée de 20 ans, ce programme sera suivi par la mission IASI-NG qui assurera 30 années d'observations supplémentaires donnant ainsi accès à de longues séries temporelles d'observations depuis l'espace (Crevoisier et al., 2016).

On peut également mentionner les mesures réalisées aux limbes par occultation solaire avec l'instrument ACE-FTS (Foucher et al., 2009) qui donne accès à des profils de CO<sub>2</sub> entre 5 et 25 km avec une résolution verticale de l'ordre de 2 km et une précision d'environ 1 ppm. D'ailleurs, dans l'ensemble les

mesures spatiales offrent l'avantage de permettre d'accéder à des mesures globales mais la précision des mesures sur les colonnes totales ou partielles (0.3-1%) est moindre qu'avec les mesures au sol.

Enfin, diverses missions spatiales sont en cours de développement, pour des lancements prévus d'ici à 2020 : la mission active Merlin (lidar dial) et plusieurs missions passives telles MicroCarb, UVNS/Sentinel 5, Tansat, OCO-3, GOSAT-2...

### I.3.3.2 Les activités de validation

Les différentes mesures spatiales de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub> doivent être évaluées afin de déterminer précisément les éventuels biais ou incertitudes qui pourraient les impacter. On appelle ce travail de vérification des observations satellites, la "validation". Les enjeux de la validation sont fondamentaux pour pouvoir utiliser les observations satellites dans des modèles de chimie-transports afin d'améliorer l'estimation des flux (Locatelli, 2014).

Une première approche pour évaluer les estimations réalisées depuis l'espace consiste à utiliser les mesures de colonnes totales réalisées concomitamment depuis le sol à l'aide de spectromètres à transformée de Fourier (FTS), notamment celles du réseau TCCON<sup>14</sup> (Geibel et al., 2010; Wunch et al., 2011) qui regroupent une vingtaine de sites à l'échelle mondiale. Ces observations FTS sont réalisées dans le SWIR et permettent uniquement d'évaluer les observations spatiales réalisées dans la même bande spectrale (Yoshida et al., 2013; Schneising et al., 2012). Ces mesures au sol peuvent également s'avérer utiles pour estimer les flux de surface à l'aide de modèles (Houweling et al., 2014; Chevallier et al., 2011).

Pendant, au delà de ne pouvoir valider que les observations SWIR, un autre inconvénient de ces mesures est qu'elles nécessitent elles-mêmes d'être vérifiées en déployant notamment des campagnes aéroportées pour vérifier les observations le long de la verticale (Wunch et al., 2010; Messerschmidt et al., 2011; Geibel et al., 2012).

Pour disposer d'une validation complète des estimations satellites et de leur sensibilité verticale, il est indispensable de disposer d'observations *in situ* indépendantes de profils de gaz à effet de serre.

### I.3.4 Avantages et inconvénients des différentes mesures

Les observations en surface apportent des mesures à haute précision sur l'évolution du CO<sub>2</sub> et du CH<sub>4</sub> en différents endroits du globe. Toutefois, nous avons vu que la répartition spatiale des stations est très disparate. Les stations sont pour la plupart situées loin des sources, elles sont donc idéales pour suivre les tendances de fond mais n'apportent que peu d'informations sur la variabilité des émissions en différents endroits. Un grand nombre de publications précédemment citées soulignent l'importance d'un réseau d'observations des gaz à effet de serre en surface plus dense et mieux réparti à la surface du globe pour mieux contraindre l'optimisation des flux par la modélisation inverse (Bousquet et al., 2006; Houweling et al., 2000).

Par ailleurs, les stations de mesures ayant été progressivement mises en service, il existe une forte hétérogénéité temporelle des mesures disponibles à l'échelle globale. Les mesures dans certaines régions isolées peuvent parfois présenter des discontinuités temporelles importantes. Garantir l'homogénéité des mesures à l'échelle d'un réseau de station, impose une propagation rigoureuse des calibrations depuis des étalons internationaux jusqu'aux mesures de terrain. Sans ce travail fastidieux, les erreurs d'estimation pourraient être biaisées par un manque d'inter-comparabilité des données des différents laboratoires. Enfin, par essence, les mesures des stations de surface n'apportent pas d'informations sur la distribution verticale des gaz à effet de serre.

Les mesures aéroportées offrent des mesures précieuses sur les variations verticales du CO<sub>2</sub> et du CH<sub>4</sub> mais restent bien souvent limitées par la couverture spatiale qui ne représente que les mesures réalisées le long de trajectoires. La plupart des mesures sont limitées à l'altitude de croisière des avions commerciaux et seulement à quelques profils lors des décollages et des atterrissages. Souvent réalisées par flacons d'air, le nombre de points de mesures reste encore limité par les contraintes d'installations de ce genre d'instrument à bord des avions transportant des passagers. Les campagnes scientifiques spécifiques n'apportent des informations supplémentaires que ponctuellement et représentent des coûts de fonctionnement important.

14. Total Carbon Column Observatory Network

Depuis l'espace, les données satellites apportent une vision globale et un nombre accru d'observations. Néanmoins, les mesures spatiales sont fortement dépendantes des instruments qui les produisent, mais aussi de la plate-forme spatiale qui supporte ces instruments. Elles intègrent l'information sur toute la colonne atmosphérique (0-40 km) ou uniquement sur une partie de la colonne (4-16 km) suivant les instruments utilisés et ne sont donc pas directement comparables entre elles, ni avec les observations en surface. De plus, la résolution verticale et spatiale offerte par les différents instruments modifie l'information apportée par les observations.

Pour compléter les systèmes d'observation disponibles, le besoin d'observations complètes sur la verticale le long de la colonne atmosphérique devient indispensable.

## I.4 Les enjeux des mesures verticales

### I.4.1 Pourquoi des mesures verticales ?

Développer notre capacité d'observation des gaz à effet de serre selon la verticale devient un enjeu central, non seulement pour améliorer nos connaissances de la distribution verticale mais aussi pour apporter des mesures complètes le long de la colonne atmosphérique afin d'évaluer les mesures spatiales et d'interpréter le transport vertical de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub> dans les modèles de chimie-transport.

En effet, le mélange de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> n'est pas homogène dans l'atmosphère qui se découpe en différentes régions différenciables par la structure verticale de la température. Les deux couches les plus importantes pour l'étude du CO<sub>2</sub> et du CH<sub>4</sub> (et de la composition atmosphérique en générale) sont la troposphère (du sol à ~ 8-15 km d'altitude) et la stratosphère (de ~ 8-15 à ~ 50 km d'altitude) qui contiennent ensemble près de 99% de masse totale de l'atmosphère.

Pour les gaz à effet de serre qui font l'objet de notre étude, on distingue des différences importantes entre les concentrations troposphériques et stratosphériques. Ces différences sont liées au taux de transfert très lent entre la troposphère et la stratosphère qui a lieu principalement au niveau des tropiques sous l'influence de la forte convection verticale qui y a lieu (Bönisch et al., 2011). Dans la stratosphère, le méthane est alors progressivement détruit par des réactions avec le radical hydroxyle ce qui entraîne une forte diminution de sa concentration avec l'altitude au fil des différentes strates dans cette région de l'atmosphère. Le CO<sub>2</sub> en revanche n'intervient pas avec la chimie atmosphérique, sa concentration dans les différentes strates successives de la stratosphère dépend donc de la vitesse des échanges entre ces couches ce qui en fait un bon traceur pour étudier les phénomènes de transports affectant la stratosphère (Engel et al., 2002 ; Andrews et al., 2001).

Pour compléter le système d'observation actuel, les ballons stratosphériques sont des outils de recherche scientifique uniques pour accéder à la stratosphère, une région inaccessible aux mesures aéroportées en dehors des quelques premiers kilomètres. L'information apportée par les satellites est une moyenne intégrée sur toute ou sur une partie de la colonne atmosphérique en dehors de quelques mesures aux limbes qui apportent des informations avec une faible résolution verticale (Fig. I.3). Cette spécificité des ballons, de pouvoir accéder à la verticale, en fait un outil idéal pour explorer la distribution de nombreux paramètres atmosphériques entre la surface et 40 km d'altitude dans une zone stratégique où les masses d'air brassent un grand nombre de particules et de composés chimiques émis depuis la Terre.

### I.4.2 Les mesures sous ballons

Il existe plusieurs types de ballons. Nous allons principalement nous intéresser aux ballons stratosphériques ouverts (BSO). Ces ballons stratosphériques particuliers peuvent quasiment tout transporter à bord des nacelles qu'ils emportent : de petits capteurs de température, de gigantesques télescopes ou des charges utiles de satellite à tester et même récemment des hommes en quête de sensations fortes. Ces ballons sont un support privilégié pour tester de nouvelles technologies spatiales par les conditions de vol qui permettent de monter dans la stratosphère. Après des phases de test sur ballons stratosphériques, certaines technologies peuvent être déployées sur plates-formes satellites. D'autres en revanche, visent à être compactées pour permettre leur déploiement pour des mesures régulières sous ballons météorologiques (la masse totale des instruments est alors limitée à 3 kg).

Nous présentons ici quelques utilisations des ballons pour étudier l’atmosphère, sa chimie et sa dynamique. Historiquement, l’étude de l’O<sub>3</sub> a suscité le développement de nombreux instruments. Puis, plus généralement, c’est pour l’étude des échanges entre la haute troposphère et la basse stratosphère (UTLS - Upper Troposphere / Low Stratosphere) que de nombreuses expérimentations scientifiques autour de plusieurs composés atmosphériques ont vu le jour.

Une première approche consiste à faire voler des instruments de télédétection. Par exemple, des interféromètres de Michelson, tel MIPAS-B<sup>15</sup> (Oelhaf et al., 1994) qui possède aussi une version satellite MIPAS-S (Fischer et al., 2008; Fischer et al., 1996). Ces instruments permettent la mesure aux limbes de nombreux constituants chimiques avec une résolution verticale d’environ 2 km. On peut également mentionner d’autres expériences avec des spectromètres à transformée de Fourier pour la mesure directe de composés atmosphériques (Camy-Peyret, 1995). Ils ont notamment servi à faire de la calibration/validation de satellite. Toutefois, la masse de ces instruments (environ 740 kg pour MIPAS) nécessite des infrastructures et une logistique conséquentes.

Une autre approche pour mesurer de nombreux paramètres atmosphériques est de récupérer des flacons d’air à différents niveaux lors de vol sous ballons. C’est l’approche employée par les “cryogenic samplers” (Schmidt et al., 1991; Zöger et al., 1999). Ces différents instruments ont montré leur intérêt pour étudier l’âge de l’air (Engel et al., 2009) ou encore le transport des composés dans la stratosphère (Bönisch et al., 2009).

Enfin, plus récemment, différents instruments utilisant des méthodes de spectroscopie par diodes laser accordables ont été développés pour mesurer directement différents constituants atmosphériques le long des trajectoires des ballons. Par exemple, l’expérience SPIRALE<sup>16</sup> qui comprend plusieurs sources lasers embarquées par le même instrument (Moreau et al., 2005). La haute fréquence des mesures de cet instrument permet alors une résolution verticale de 5 m. Toutefois, cet instrument représente une charge importante et nécessite à lui seul l’emploi d’un ballon stratosphérique ouvert.

En développant des instruments spécifiques pour la mesure d’un ou deux composants (mesure de vapeur d’eau, de dioxyde de carbone ou de méthane) il est possible de réduire la masse des instruments pour aboutir à des technologies plus compactes, c’est le cas des différents instruments Pico-SDLA<sup>17</sup> (Durry et al., 1999; Durry et al., 2004; Pouchet et al., 2004; Durry, 2001; Joly et al., 2007; Ghysels et al., 2011) et AMULSE<sup>18</sup>. Certaines mesures ont directement contribué à l’étude du transport de vapeur d’eau entre la tropopause et la stratosphère au niveau des tropiques (Carminati et al., 2014; Ghysels et al., 2016). Ces instruments pèsent  $\sim 10$  kg pour Pico-SDLA et  $\sim 2.5$  kg pour AMULSE et sont encore en phase de développement.

Les instruments précédemment décrits sont pour la plupart lourds et ne peuvent donc pas être déployés aisément. Leur fonctionnement suppose une logistique importante et leur développement a un coût élevé. Pour répondre à la problématique d’avoir des mesures régulières de profils verticaux de gaz à effet de serre à un coût relativement bas et qui offre des perspectives de déploiement à grande échelle, un nouvel instrument nommé “AirCore” a été développé. C’est sur cet instrument, développé initialement à la NOAA/ESRL sur une idée originale de Pieter Tans en 2008 (Tans, 2009), que nous nous sommes concentrés durant cette thèse.

### I.4.3 Motivations du travail de thèse

Dans le contexte de l’étude des gaz à effet de serre qui vient d’être décrit, la réflexion qui a guidé cette thèse vise à améliorer nos connaissances sur la distribution verticale du dioxyde de carbone et du méthane atmosphérique. Les mesures verticales sont en effet une des clés pour ouvrir la voie à l’utilisation conjointe de différentes observations, réalisées dans diverses régions spectrales et à l’aide de différentes méthodes de télédétection, dans le but de réaliser des simulations et des prévisions plus précises de l’évolution du CO<sub>2</sub> et du CH<sub>4</sub>.

Dans cette thèse, nous explorons les possibilités offertes par le AirCore, à l’aide d’une stratégie à la fois expérimentale et théorique. Les objectifs sont :

15. Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding

16. Spectromètre Infra Rouge pour l’Etude de l’Atmosphère par Diode Laser Embarquées

17. Pico-Spectromètres à Diodes Lasers Accordables

18. Atmospheric Measurements by Ultra Light SpEctrometer



- de modéliser et de maîtriser le fonctionnement du AirCore.
- de développer diverses versions de AirCores afin d'accéder à différentes résolutions verticales.
- de les déployer sur le terrain. Pour ce faire, nous bénéficions des facilités et des infrastructures offertes aux scientifiques français par le CNES<sup>19</sup> lors des campagnes annuelles Strato-Sciences pour tester en vol les instruments et en déduire les conditions de vol adaptées.
- de valider les mesures, en comparant différents AirCores entre eux ainsi que par inter-comparaison avec d'autres instruments.
- de déterminer l'apport de mesures de profils verticaux de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub> de 0 à 30 km acquis avec des AirCores pour la validation des missions spatiales de gaz à effet de serre, en particulier afin de mettre en évidence les avantages et les limitations par rapport aux mesures aéroportées, ou aux simulations de modèles de chimie-transport.
- d'initier une réflexion à l'échelle européenne pour envisager le déploiement plus large de ces instruments au sein d'un réseau de mesure. A ce titre, le financement EIT/Climate-KIC<sup>20</sup> dont a bénéficié cette thèse, a permis de réaliser une mobilité doctorale dans deux équipes pour renforcer le lien entre les équipes travaillant sur les AirCores et tester les apports des profils verticaux pour interpréter les simulations des modèles de chimie-transport.

## I.5 Plan du manuscrit

En plus de cette introduction, ce manuscrit se divise en cinq chapitres.

Le chapitre II est consacré à la présentation du AirCore. Nous exposerons le principe de fonctionnement des AirCores pour échantillonner la colonne d'air atmosphérique et la chaîne de mesure qui permet l'analyse des échantillons prélevés. Les grandeurs et comportements physiques qui caractérisent le mélange de l'échantillon dans ce système seront détaillés et nous montrerons comment ils peuvent être pris en compte pour estimer la résolution verticale théorique d'un AirCore. Ceci nous amènera à détailler les configurations des différents AirCores développés au LMD.

Le chapitre III présente les étapes clés permettant de positionner verticalement les rapports de mélange de l'échantillon analysé. Toutes les phases de traitement des données nécessaires pour aboutir aux profils verticaux de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> y sont détaillées. Enfin, nous y discuterons de la méthode utilisée pour calculer l'incertitude qui peut être associée aux profils.

Le chapitre IV sera consacré à l'analyse des profils verticaux de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> acquis lors des 3 campagnes Strato-Sciences 2014, 2015 et 2016. Nous reviendrons rapidement sur l'organisation des campagnes Strato-Sciences et détaillerons les vols auxquels des AirCores du LMD ont participé. Ensuite, les profils verticaux obtenus avec les AirCores lors des différents vols seront présentés avec leurs incertitudes associées. Nous montrerons que les profils haute résolution du AirCore-HR peuvent être dégradés précisément vers une résolution plus basse pour réaliser des comparaisons avec les profils de AirCores de résolutions différentes, validant le calcul de la résolution théorique. Par ailleurs, nous présenterons une comparaison qualitative avec des mesures indépendantes réalisées par des spectromètres à diode lasers Pico-SDLA embarqués conjointement aux AirCores sur les nacelles multi-instrumentées lors des vols Strato-Sciences.

Le chapitre V présentera l'apport des profils verticaux de AirCores pour la validation des estimations spatiales de CH<sub>4</sub>. Nous y présenterons succinctement les estimations actualisées de CH<sub>4</sub> réalisées au LMD avec l'instrument IASI qui seront utilisées pour développer l'étude menée dans ce chapitre. Nous comparerons les estimations IASI CH<sub>4</sub> aux simulations issues de modèles de chimie-transport atmosphérique et montrerons alors quel rôle peuvent jouer les mesures des campagnes aéroportées pour évaluer les estimations CH<sub>4</sub> IASI. Enfin, un jeu de profils verticaux de AirCores du LMD complété par des mesures régulières de AirCores réalisées à Sodankyla sera utilisé pour évaluer les estimations de colonnes partielles de CH<sub>4</sub> réalisées avec l'instrument IASI. Nous montrerons que l'information complète sur la colonne contenue dans les profils de AirCores apporte des données supplémentaires pour la validation spatiale.

Le chapitre VI donnera les conclusions de ce travail et les perspectives envisagées. La bibliographie, une liste des sites internet pouvant apporter des informations complémentaires, une liste des acronymes

---

19. Centre National d'Études Spatiales

20. European Institute of Innovation and Technology / Climate - Knowledge and Innovation Community

utilisées ainsi que des listes des figures et des tableaux sont disponibles en fin de ce manuscrit.

## Chapitre II

# Le AirCore : un échantillonneur atmosphérique

### Sommaire

---

<b>II.1</b>	<b>Introduction . . . . .</b>	<b>17</b>
<b>II.2</b>	<b>Présentation générale du AirCore . . . . .</b>	<b>18</b>
II.2.1	Principe général du AirCore . . . . .	18
II.2.2	La chaîne de mesure pour les phases de test, de préparation et d'analyse . . . . .	19
<b>II.3</b>	<b>Étude du mélange de l'échantillon dans un AirCore . . . . .</b>	<b>25</b>
II.3.1	Hypothèses . . . . .	26
II.3.2	Mélange de l'échantillon dans un AirCore. . . . .	27
II.3.3	Conclusions sur le mélange dans un AirCore . . . . .	30
II.3.4	Observation et modélisation en laboratoire du mélange de l'air dans un AirCore . . . . .	31
<b>II.4</b>	<b>Conception des AirCores. . . . .</b>	<b>35</b>
II.4.1	Calcul de la résolution verticale théorique d'un AirCore . . . . .	35
II.4.2	Les différents AirCores utilisés dans cette thèse . . . . .	38
<b>II.5</b>	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>42</b>

---

## II.1 Introduction

Au cours des dernières décennies, différents moyens d'observation ont été développés et déployés pour suivre l'évolution des gaz à effet de serre  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  dans l'atmosphère. Les systèmes d'observation de l'atmosphère combinent des réseaux de stations de mesures à la surface, des mesures aéroportées et des mesures de colonnes partielles ou totales depuis l'espace. Toutefois, des informations précises sur la distribution verticale du  $\text{CO}_2$  et du  $\text{CH}_4$  sont encore rares. De telles observations deviennent pourtant indispensables pour apporter des informations supplémentaires sur le transport vertical et répondre aux besoins d'évaluation des différents moyens d'observations de l'atmosphère.

Dans le cadre de cette thèse, nous nous intéressons à un instrument de mesure original et innovant pour acquérir des profils verticaux de rapport de mélange de gaz trace nommé AirCore. Une première version de cet instrument a été développée à la NOAA/ESRL sur une idée originale de Pieter Tans (Tans, 2009 ; Karion et al., 2010). Le principe repose sur une idée simple : si on parachute un tube vide ouvert d'un seul côté, il se remplira tout au long de sa chute avec une succession de couches d'air de concentrations différentes. Une fois retombé au sol, le AirCore est fermé pour préserver l'échantillon. Lorsque le AirCore est récupéré, l'air échantillonné dans l'instrument est analysé avec un analyseur pour la mesure de gaz trace (dans notre cas  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$ ).

C'est par analogie aux carottes de glace, prélevées pour étudier les climats du passé, "Ice Core" en anglais, que cet instrument est nommé le AirCore. À la différence d'une carotte de glace, retirée d'une

calotte glaciaire, formée par la compression de couches de neige successives année après année, un AirCore peut être vu comme une carotte d'air collectée continûment le long d'une colonne atmosphérique lors d'une descente depuis haute altitude, formée par la compression progressive de l'air ambiant entrant dans le AirCore sous l'effet de l'augmentation de la pression ambiante. Alors que l'étude de la composition chimique des bulles d'air qui sont emprisonnées dans une carotte de glace permet la reconstruction des climats du passé, un AirCore permet de recueillir un profil vertical de la composition atmosphérique à un instant donné et en un lieu précis.

Le traitement des données provenant de l'analyse de l'échantillon prélevé et d'une électronique embarquée au côté du AirCore, mesurant les données d'environnement (pression ambiante et température de l'instrument), permet de remonter à des profils verticaux de gaz à effet de serre  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$ . Cette solution élégante et efficace permet de développer un système simple, à un coût raisonnable pour collecter des profils verticaux. Ce chapitre vise à présenter de manière exhaustive cet instrument, dont plusieurs nouvelles versions ont été développées au LMD.

Dans une première partie (section II.2), nous présenterons de manière générale ce qu'est un AirCore, son principe de fonctionnement et la chaîne de mesure qui permet la mesure des échantillons prélevés. Dans une deuxième partie (section II.3), nous présenterons les grandeurs et comportements physiques qui caractérisent le mélange de l'échantillon dans ce système. Une troisième partie (section II.4) sera consacrée à la conception des AirCores. Nous y présenterons comment les phénomènes de mélanges affectant l'échantillon peuvent être pris en compte pour estimer la résolution verticale théorique d'un AirCore. Ceci nous amènera à détailler les configurations des différents AirCores développés au LMD. Pour finir, nous concluons ce chapitre en synthétisant les principaux enseignements des différentes parties (section II.5).

## II.2 Présentation générale du AirCore

### II.2.1 Principe général du AirCore

Un AirCore est un système qui permet d'échantillonner continûment l'air le long d'une colonne atmosphérique lors d'une descente depuis haute altitude et de conserver l'échantillon. L'élément principal qui le compose est un long tube en acier inoxydable de diamètre très fin enroulé sous forme de bobine. Typiquement ce tube est long de quelques centaines de mètres et a un diamètre de moins de 1 cm. L'analyse de la concentration en gaz trace (dans notre cas  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$ ) de l'échantillon retenu dans le tube permet de remonter à un profil vertical de gaz le long de la colonne atmosphérique échantillonnée.

Le principe général du AirCore est illustré en figure II.1.

1. Premièrement, durant une phase de préparation précédant le vol, le AirCore est rempli d'un gaz de référence dont on connaît précisément la concentration en gaz traces.
2. Dans une seconde étape, le système est placé sous ballon, fermé à une extrémité et ouvert à l'autre. A la montée, en s'équilibrant avec la pression ambiante qui diminue, le tube se vide. Le vol atteint alors sa limite supérieure, où seule une partie du gaz de référence initiale reste dans le tube.
3. Lors de la descente sous parachute, alors que la pression ambiante augmente, le tube se remplit en échantillonnant continûment l'air alors que l'équilibre de pression se maintient avec l'extérieur. Il se remplit alors tout au long de la descente avec une succession de couches d'air de concentrations différentes.
4. Une fois au sol, l'électronique du système commande la fermeture de la vanne ouverte pour préserver l'échantillon prélevé. Sur le terrain, un délai de quelques heures (1 à 12 heures) s'impose alors souvent avant de pouvoir accéder au AirCore. L'échantillon prélevé se mélange alors de proche en proche sous l'effet de la diffusion moléculaire. Toutefois, les caractéristiques du tube (diamètre, longueur de tube) permettent de préserver l'échantillon avec une certaine résolution verticale pour chaque AirCore et d'assurer qu'une mesure d'un profil vertical sera toujours possible.
5. Une fois le AirCore récupéré, son contenu est analysé pour mesurer les rapports de mélange de gaz trace. Dans notre cas, l'analyse est effectuée de manière quasi-continue et à débit constant

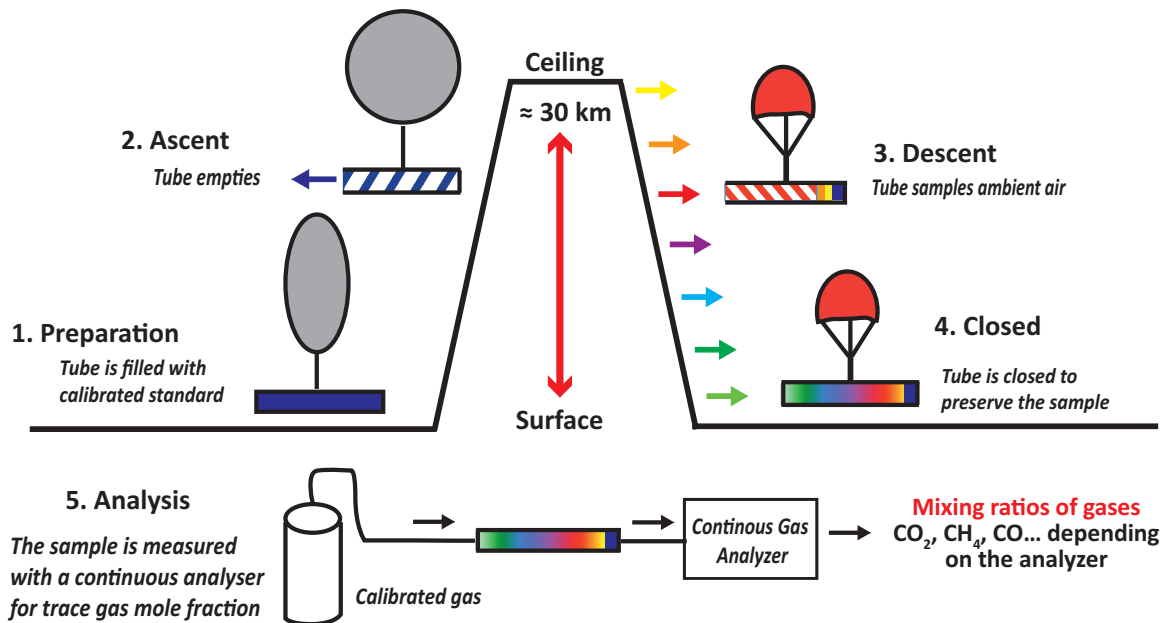


FIGURE II.1 – Schéma descriptif des différentes étapes de fonctionnement d'un AirCore lors d'un vol sous ballon

par un spectroscope laser. Dans notre cas c'est un analyseur Picarro qui permet la mesure des concentrations de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub>.

- Lors d'une dernière étape informatique, le traitement combiné de la mesure des rapports de mélanges (CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, CO suivant l'analyseur utilisé) et des données d'environnement (pression et température) collectées par l'électronique embarquée permet alors de remonter aux profils de différents gaz de la surface à environ 30 km.

Le principe du AirCore est assez simple. Cependant, plusieurs aspects délicats sont à prendre à compte pour concevoir les instruments suivant les objectifs scientifiques et contraintes techniques qui s'imposent, ainsi que pour traiter correctement les données récoltées et en obtenir les profils verticaux de concentration de gaz trace.

## II.2.2 La chaîne de mesure pour les phases de test, de préparation et d'analyse

### II.2.2.1 Introduction

L'ensemble de la chaîne de mesure, permettant à la fois de remplir le AirCore de gaz de référence (à l'étape 1) et de mesurer l'échantillon récupéré (à l'étape 5) est présenté en Fig. II.2.

On peut décomposer la chaîne de mesure en plusieurs éléments distincts :

- La charge utile, constituée du AirCore dans sa boîte de protection en polystyrène avec son électronique associée ;
- Les bouteilles de gaz de référence,
- Le système d'analyse composé de l'analyseur et de sa pompe associée qui permet de faire circuler l'air.

Ces différents éléments, peuvent être connectés ensemble, pour former la chaîne de mesure au cœur de laquelle se retrouve le AirCore. Le raccord entre les différents éléments est assuré par des tubes en acier inoxydable et les embouts nécessaires pour se connecter aux différentes vannes et assurer l'étanchéité du système. La circulation de l'air depuis un des cylindres contenant un gaz de référence calibré au travers du

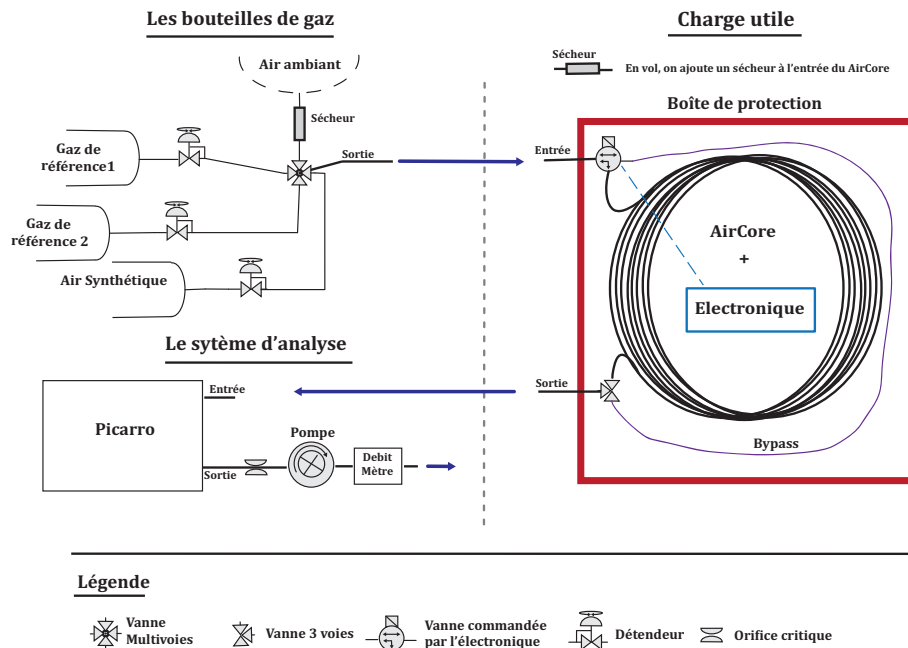


FIGURE II.2 – Chaîne de mesure permettant l'analyse de l'échantillon prélevé par un AirCore

AirCore, puis de l'analyseur est assuré par la pompe placée en sortie du système d'analyse. Cette chaîne de mesure est mise en place lors de toutes les phases de tests, de préparation et d'analyse. Le sécheur placé à l'entrée du AirCore lors du vol afin de limiter l'humidité qui entre dans le tube, est généralement retiré avant de connecter le AirCore.

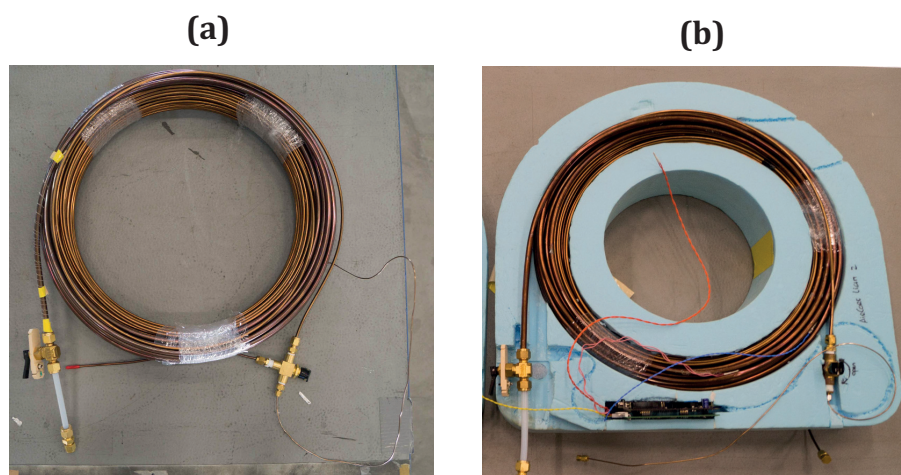
### II.2.2.2 La charge utile

La charge utile est composée du AirCore, de son électronique associée, et de la boîte en polystyrène qui les protège.

Pour former un AirCore, il est possible de raccorder plusieurs tubes de diamètre et de longueur variables. Suivant les caractéristiques techniques souhaitées (limite de masse de l'instrument, objectifs scientifiques), il est alors possible de concevoir différents AirCores. Des bobines de tubes de diamètres variant de quelques millimètres à un centimètre et de longueurs variant de quelques dizaines à quelques centaines de mètres sont connectées. Nous détaillerons les caractéristiques techniques des AirCores utilisés dans cette thèse en partie II.4.2.3.

Un exemple de AirCore est visible sur la figure II.3 (a). On y voit la bobine de tubes en acier inoxydable qui forme un AirCore-Light. Les tubes ont subi un traitement spécial pour déposer un revêtement Sulfinert® sur les parois. Ce revêtement qui permet de réduire les interactions entre l'air qui circule dans le(s) tube(s) et les parois donne une coloration cuivrée au tube. L'ensemble des tubes utilisés dans la chaîne de mesure subissent ce même traitement pour rendre les parois inertes et limiter toute interaction avec les gaz échantillonnés.

Pour permettre d'ouvrir ou de fermer le système, des vannes sont disposées à chaque extrémité du AirCore. En vol, en plus de cette configuration, un élément 'sécheur' composé d'une petite section (10 cm) de tube rempli de perchlorate de magnésium est positionné devant la vanne à l'extrémité du tube qui sera maintenue ouverte. En Fig. II.3 (a), le sécheur est un tube blanc en téflon positionné avant la vanne de gauche. Ce sécheur, servant alors de tube d'entrée, permet d'assurer qu'aucune humidité ne pénètre dans le système lors de l'échantillonnage. De l'humidité dans le tube pourrait en effet modifier le rapport de mélange des gaz prélevés, notamment si cette vapeur d'eau se condensait. Sous l'effet d'un ajustement des pressions partielles, entre les gouttes d'eau et l'air du tube, les concentrations des gaz échantillonnés pourraient être modifiées. Par précaution, cet élément sécheur est donc utilisé. Nous verrons toutefois



**FIGURE II.3** – (a) Photographie d'un AirCore Light avec le tube de sécheur à l'entrée, (b) Photographie du même AirCore dans sa boîte de protection avec son électronique associée.

que son utilisation fait encore débat, le perchlorate de magnésium, protégeant l'échantillon de l'humidité, étant lui-même suspecté d'interagir sous certaines conditions avec les rapports de mélanges de  $\text{CO}_2$  de l'air prélevé (cf section IV.5.2).

Une carte électronique complète le AirCore pour enregistrer les informations sur le fonctionnement du système et les données de plusieurs paramètres d'environnement. Typiquement, cette carte électronique collecte les informations d'un capteur de pression, de plusieurs sondes de température, de positionnement GPS et une fois arrivé au sol, commande la fermeture de la vanne du AirCore maintenue ouverte durant le vol. Les sondes de température sont placées le long du AirCore, en contact avec différents segments du tube et permettent le suivi de la température moyenne du AirCore durant un vol. Le capteur de pression est un capteur de pression absolue qui relève la pression ambiante lors du vol. Les informations enregistrées par cette électronique associée sont indispensables pour remonter à l'historique de l'échantillonnage effectué par le AirCore. C'est le traitement conjoint de ces données d'environnement avec les mesures des rapports de mélange de l'échantillon retenu dans le AirCore qui permettra de remonter aux profils verticaux (cf chapitre III)

En configuration de vol, le AirCore et son électronique associée sont placés dans une boîte en polystyrène qui assure une relative isolation thermique et une protection du système (Fig. II.3 (b)). Lorsque la boîte est fermée, seule les extrémités du tube dépassent, permettant de se raccorder à la chaîne d'analyse (cf partie II.2.2). Dans les systèmes légers comme les AirCores-Light la boîte de protection est conçue pour épouser au plus près la forme de bobine des tubes et isoler le système de l'extérieur avec seulement quelques centimètres de polystyrène. Un exemple de dessin technique, réalisé par Jacqueline Capoani, du bureau d'étude du LMD, pour usiner une boîte de protection sur mesure pour les AirCore-Light est présenté en figure II.4.

Dans les AirCores du LMD, chaque extrémité d'un AirCore est reliée à une vanne 3 voies permettant le passage de gaz soit au travers du AirCore, soit au travers d'un tube de contournement, "bypass" en anglais (Fig. II.2). Ce bypass est typiquement composé d'un tube en acier inoxydable d'à peine 1 m de long, de diamètre 1/16 de pouces (1.5875 mm). Lorsque le AirCore est fermé au niveau de ses deux extrémités, l'air circule au travers du bypass. Lorsque la charge utile est connectée à la chaîne de mesure, ce système permet de faire circuler de l'air des bouteilles, à l'analyseur, en contournant le AirCore, sans avoir à le débrancher. Au retour d'un vol, ce système est indispensable pour évacuer tout l'air ambiant et l'humidité qui entrent dans les lignes de mesure au moment de raccorder la charge utile. Ce n'est que lorsque les lignes de mesure sont propres de toute contamination, que l'on peut procéder à l'analyse de l'échantillon prélevé par un AirCore.

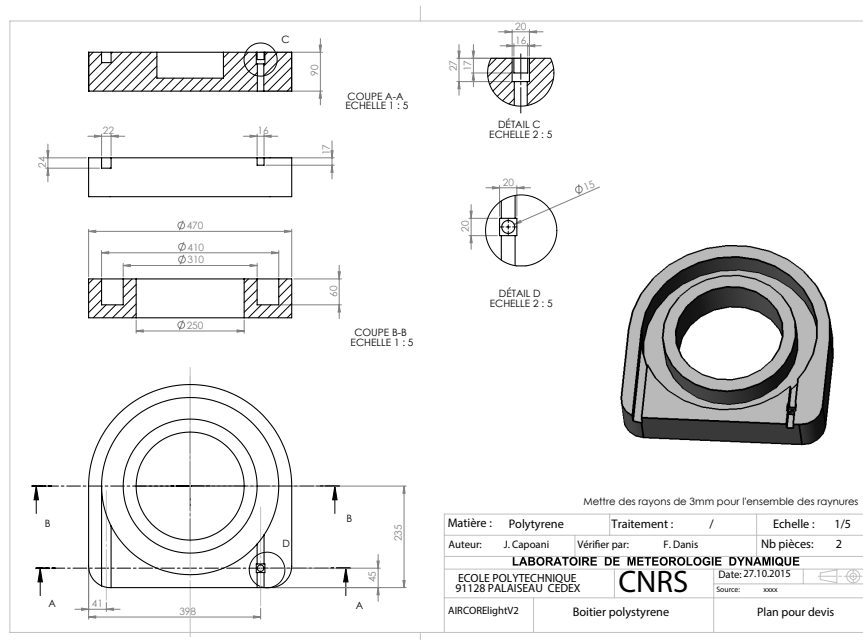


FIGURE II.4 – Boîte de protection en polystyrène des AirCore-Light du LMD

### II.2.2.3 Des gaz de référence

Afin de préparer et d'analyser le AirCore, trois différentes bouteilles remplies de gaz synthétique sont utilisées. Ces bouteilles disposent chacune de leur propre détendeur assurant la régulation de la pression de l'air délivré. Durant les différentes phases de mesure, la pression délivrée par le détendeur est réglée pour être légèrement supérieure à la pression atmosphérique (entre 1,1 et 1,3 bar). En sortie des détendeurs, ces bouteilles sont ensuite connectées à une vanne multivoies permettant de sélectionner l'air arrivant depuis l'une ou l'autre des bouteilles.

Au niveau de la vanne multivoies, il est aussi possible de sélectionner une arrivée d'air ambiant qui traversera préalablement un sécheur, permettant de retirer l'humidité de l'air ambiant et de faire circuler de l'air ambiant sec dans la chaîne de mesure. Il ne faut pas confondre ce sécheur avec le sécheur que l'on place à l'entrée du AirCore durant le vol. Dans le cas de la chaîne de mesure, l'humidité de l'air ambiant est absorbée par le chlorure de calcium contenu dans une colonne servant de sécheur. Cet air ambiant sec n'est utilisé que pour limiter le gaspillage d'air synthétique et permettre de sécher les tubes formant la ligne de mesure dans laquelle circule l'air.

Les trois bouteilles de gaz contiennent différents mélanges d'air sec. Parmi ces bouteilles d'air synthétique, on peut distinguer un couple de bouteilles, notées mélange "haute concentration" et mélange "basse concentration". Ces deux bouteilles contiennent des rapports de mélange de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  précis et calibrés. Elles sont utilisées comme gaz de référence. La troisième bouteille, notée air synthétique, contient des rapports de mélange de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  quasiment nuls. Cet air très particulier sert notamment à détecter les fuites au niveau des raccords entre différents tubes du AirCore, lors de phases de tests précédant un vol.

Les rapports de mélange exacts, de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$ , des différentes bouteilles de gaz utilisées comme références en 2014 et 2015-2016 ont été mesurées au Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) et calibrées sur les échelles étalons de la WMO (Organisation Météorologique Mondiale - World Meteorology Organization) (comm. pers. Michel Ramonet et Marc Delmotte). Les valeurs de ces mesures calibrées de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  sur les différents couples de bouteilles utilisées, les différentes années, sont présentées dans le tableau II.1. Les valeurs des rapports de mélange de  $\text{CO}_2$  y sont relatives à l'étalon WMOX2007 et les valeurs de  $\text{CH}_4$  présentées sont relatives à l'étalon NOAA-2004.

Ces mesures, calibrées par rapport aux étalons WMO, sont indispensables. En effet, ces valeurs per-



**TABLE II.1** – Valeurs des concentration en  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  sur les échelles internationales WMO des bouteilles de gaz utilisées comme référence

Gaz de référence “Basse concentration” :			
	étalon	2014	2015-2016
$\text{CO}_2$ (ppm)	WMOX2007	$360.85 \pm 0.008$	$362.37 \pm 0.011$
$\text{CH}_4$ (ppb)	NOAA-2004	$1726.95 \pm 0.163$	$1700.51 \pm 0.103$
Gaz de référence “Haute concentration” :			
	étalon	2014	2015-2016
$\text{CO}_2$ (ppm)	WMOX2007	$401.31 \pm 0.004$	$402.75 \pm 0.012$
$\text{CH}_4$ (ppb)	NOAA-2004	$1922.33 \pm 0.168$	$1888.32 \pm 0.114$

mettront de corriger les valeurs mesurées par l’analyseur.

Lors du vol d’un AirCore, nous utilisons le mélange haute concentration comme gaz de remplissage pour remplir les AirCores lors de la phase de préparation précédant un vol. Le mélange haute concentration permet d’observer une différence notable entre le gaz de remplissage (dont il restera une infime quantité dans le AirCore avant qu’il n’entame l’échantillonnage de l’air ambiant à la descente) et le tout premier échantillon d’air marquant le sommet du profil.

Le mélange basse concentration est choisi pour être utilisé comme gaz tampon lors de l’analyse. Sa concentration précise, différente de celle du gaz utilisé pour remplir le AirCore, permettra de repérer le début et la fin de l’analyse de l’air contenu dans le AirCore.

L’usage d’un couple de bouteilles de gaz calibré, de concentrations différentes, est indispensable pour repérer à la fois le début de l’échantillonnage d’air ambiant dans le AirCore et pour repérer le début et la fin de l’analyse de l’ensemble du gaz stocké dans le AirCore (échantillon + partie restante du gaz de remplissage). La sélection des instants marquant le début et la fin de l’analyse de l’échantillon est une étape importante du traitement des données qui sera détaillée dans la partie III.2.

#### II.2.2.4 Le système d’analyse

Pour l’analyse de nos AirCores, nous avons utilisé le modèle d’analyseur Picarro G2310 développé par la société Picarro, Inc., (Crosson, 2008). Cette analyseur repose sur la technologie CRDS “Cavity Ringdown Spectrometer”. Cette analyseur est fourni avec une pompe que l’on connecte en sortie et qui assure la circulation d’air au travers de toute la chaîne de mesure jusqu’à son analyse.

Les mesures sont réalisées à une fréquence de 0.5 Hz. La pression et la température de la cellule de mesure du Picarro sont régulées à 187 hPa (140 torr) et 45°C. La cellule de mesure a un volume d’environ 7  $\text{cm}^3$  si on se ramène à 20°C et pression atmosphérique.

L’analyseur mesure successivement les rapports de mélange de  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$  et  $\text{H}_2\text{O}$  de l’air qui circule dans la cavité de mesure. Lorsque l’analyseur mesure le contenu en vapeur d’eau, il calcule alors un contenu en air sec des composés  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$ . Ce sont ces valeurs de rapport de mélange en air sec que nous utiliserons. La précision de mesure des rapports de mélange peut atteindre 0.035 ppm pour le  $\text{CO}_2$  et 0.25 ppb pour le  $\text{CH}_4$  (Crosson, 2008). La mesure d’ $\text{H}_2\text{O}$  n’est qu’une indication de l’humidité relative en %, qui permet à l’instrument de calculer et de fournir la mesure de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  en air sec.

Le débit normal du Picarro est de l’ordre de 220 sccm (standard  $\text{cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$ , soit donné pour une valeur rapporté à 0°C et pression atmosphérique). Afin d’obtenir plus de points de mesure lors de l’analyse d’un échantillon, nous avons souhaité réduire le débit de l’instrument. Nous avons donc ajouté un orifice à écoulement critique à la sortie du Picarro pour maintenir le débit de l’écoulement sur l’ensemble de la chaîne de mesure à 38.5 sccm (soit environ 42  $\text{cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$  à 20°C). Pour permettre l’ajout de cet élément, tout en assurant que l’instrument continue à réguler la pression de la cavité avec un débit en sortie plus faible, nous avons dû légèrement modifier le logiciel de notre analyseur. Cette modification revient à l’ajout d’un mode de fonctionnement que l’on retrouve habituellement dans les analyseurs Picarro “aircraft” pour les mesures avions où la pression de la cavité est régulée en modifiant automatiquement

l'ouverture de la vanne à l'entrée de la cavité plutôt qu'en sortie. Ceci a été réalisé par l'intervention d'un ingénieur de la société Picarro.

Un débitmètre est ajouté en sortie de la pompe. Placé à cet endroit, il permet de vérifier le débit de l'air qui circule dans la chaîne de mesure, avant que l'air ne soit rejeté dans l'atmosphère, sans que les volumes morts contenus dans le débitmètre n'ajoutent un mélange additionnel de l'air avant son analyse.

### II.2.2.5 Les phases de tests, de préparation et d'analyse

Lors de la finalisation d'un système AirCore amené à voler, plusieurs tests sont systématiquement conduits en laboratoire, dans des conditions contrôlées, afin d'évaluer le AirCore. Le AirCore est alors placé dans la chaîne de mesure. L'intégrité du système est testée en faisant circuler ou en stockant des gaz synthétiques dans le AirCore, dans le but d'identifier notamment des fuites ou une altération de la concentration des gaz lorsqu'ils traversent le AirCore.

#### Test de fuite

Pour vérifier que le système est hermétique et pourra conserver l'échantillon, chaque AirCore est testé pour détecter d'éventuelles fuites, qui pourraient avoir lieu au niveau des vannes, utilisées comme systèmes de fermetures à chaque extrémité, ou au niveau des jonctions assurant le raccord entre différents tubes (dans le cas d'un AirCore composé de plusieurs tubes).

La figure II.5 présente les résultats d'un test de fuite. Cette figure présente les valeurs des rapports de mélange de  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$  et  $\text{H}_2\text{O}$  mesurées par le Picarro à l'issue de ce test. Lors de ce type de test, de l'air synthétique de concentration quasi-nulle en  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  est utilisé pour remplir le AirCore, avant de le fermer aux deux extrémités et de le laisser au repos durant un temps de quelques heures. Ce gaz est idéal pour détecter d'éventuelles fuites car l'intrusion et le mélange d'air ambiant avec des concentrations de  $\text{CO}_2$  de l'ordre de 400 ppm et de  $\text{CH}_4$  de l'ordre de 2000 ppb apparaîtra directement. Après ce temps de repos (15 heures dans le cas présent), le AirCore est analysé, en prenant soin d'utiliser le même gaz synthétique avec lequel le AirCore a été rempli, pour ne pas masquer une potentielle fuite au niveau des extrémités du AirCore.

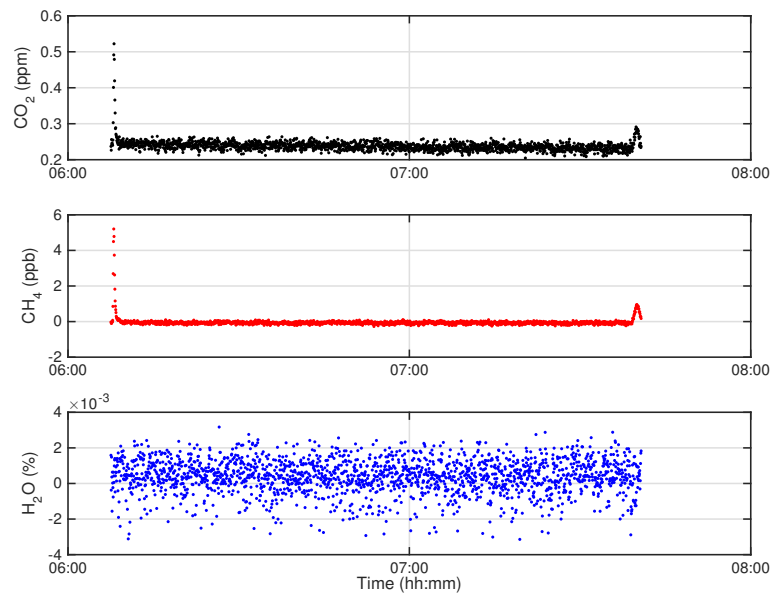
Le résultat du test présenté ici est très satisfaisant. En effet, on peut noter que pour ce AirCore composé de deux tubes, les valeurs des concentrations des trois composants analysés restent extrêmement stables. Ceci démontre notamment qu'il n'y a pas de fuite au niveau de la jonction entre les deux tubes. On peut noter de très légers pics dans les concentrations de  $\text{CO}_2$  et de  $\text{CH}_4$  à chacune des extrémités. Ces quelques ppb de  $\text{CH}_4$  et fraction de ppm de  $\text{CO}_2$  sont générés pas la friction lors de la rotation des vannes servant à ouvrir et fermer le AirCore. Ils ne correspondent pas à des fuites qui auraient eu le temps de diffuser pendant les 15 heures de repos.

Des tests de fuites sont reconduits régulièrement avant chaque vol pour s'assurer que les systèmes sont toujours hermétiques.

#### Préservation de la concentration

L'absence d'interaction entre les parois des tubes et le gaz est vérifiée en testant la conservation de la concentration. On fait alors simplement circuler les gaz de référence de concentrations différentes en  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  dans le AirCore.

Lors d'expériences répétées et dans diverses conditions il a ainsi été relevé que pour obtenir des mesures qui atteignent la précision optimale de l'instrument Picarro CRDS à 0.5 Hz qui est de 0.07 ppm pour  $\text{CO}_2$  et 0.5 ppb pour  $\text{CH}_4$  et avoir des mesures qui coïncident dans le même intervalle, les tubes de la chaîne de mesure dans lesquels l'air circule doivent impérativement tous avoir été traités et être parfaitement secs. C'est pourquoi, les lignes de mesures sont systématiquement asséchées en y faisant passer de l'air sec à travers le bypass, lorsque l'on connecte le AirCore, avant d'analyser le contenu de celui-ci. Une attention particulière est donc portée à la vapeur d'eau pour qu'elle reste inférieure à 0.002 % avant de réaliser l'analyse du contenu du AirCore. Le strict respect de cette condition a permis d'obtenir des mesures répétées qui s'accordent avec les caractéristiques définies par le constructeur des instruments Picarro.



**FIGURE II.5** – Test de fuite dans le AirCore réalisé avec du gaz synthétique.  $CO_2$ ,  $CH_4$  et  $H_2O$  mesuré par le Picarro en fonction du temps d'analyse

### Préparation et analyse

En phase de préparation, juste avant un vol, la chaîne de mesure permet de remplir et de vérifier le remplissage du AirCore avec un gaz de référence sélectionné. Lorsque le tube est rempli de mélange haute concentration, la valeur de référence attendue doit être mesurée en sortie par l'analyseur. On peut alors déconnecter la charge utile du AirCore, que l'on va pouvoir placer sur la nacelle ou sous un ballon, en prenant soin de laisser l'extrémité servant de point d'entrée ouverte et d'y positionner le sécheur du AirCore.

Après un vol stratosphérique, une fois la charge utile récupérée, on peut réaliser l'analyse de l'échantillon prélevé. Que l'on se trouve sur le terrain, ou dans un laboratoire la chaîne de mesure reste la même. Après s'être assuré que le AirCore est correctement fermé, on retire le sécheur de la charge utile avant de connecter le AirCore au système. On connecte toujours le point ayant servi d'entrée à l'air dans le AirCore aux bouteilles de gaz et le point ayant été maintenu fermé au système d'analyse. De cette manière, on analyse d'abord l'air du sommet du profil échantillonné, qui s'est retrouvé progressivement comprimé au fond du AirCore lors de la descente. Une fois le AirCore connecté, on maintient le AirCore fermé pour faire circuler du mélange basse concentration au travers du bypass. Comme précédemment décrit, ceci permettra d'évacuer tout l'air ambiant et l'humidité qui entre dans les lignes de mesures au moment de raccorder la charge utile. On observe alors les valeurs de  $CO_2$  et  $CH_4$  du mélange basse concentration mesurées par le Picarro et lorsqu'elles sont conformes à celles attendues, on procède alors à l'analyse de l'échantillon en ouvrant simultanément les deux extrémités du AirCore, ce qui a pour effet de basculer la circulation de l'air du bypass au AirCore.

Le traitement des mesures de  $CO_2$  et  $CH_4$  enregistrées par l'analyseur constituera la première étape du traitement des données permettant d'obtenir les profils verticaux à partir de l'échantillon prélevé par un AirCore. La présentation du traitement des données sera détaillée dans le chapitre III.

## II.3 Étude du mélange de l'échantillon dans un AirCore

Nous venons de voir en détail le principe du AirCore et la chaîne de mesure qui permet l'analyse des échantillons d'air prélevés. Pour concevoir un AirCore et analyser son contenu il est nécessaire de comprendre les différents phénomènes de mélange impactant l'échantillon.

Dans cette partie, nous allons présenter en détail les différents phénomènes physiques à l'origine des différents mélanges. Pour simplifier l'étude du mélange dans un AirCore, nous allons nous placer dans le cadre de certaines hypothèses détaillées en section II.3.1. Les lois physiques, qui permettent de représenter les phénomènes de diffusion, seront présentées en section II.3.2. Pour finir, les résultats de tests en laboratoire pour observer la diffusion dans un AirCore et la modéliser sont donnés en section II.3.4.

### II.3.1 Hypothèses

#### Le AirCore peut être considéré comme un système à 1 dimension

La première hypothèse, pour simplifier l'étude des phénomènes qui peuvent intervenir dans un AirCore, est de se ramener à un problème à une dimension. On considère que l'on se place dans le cas d'un tube rectiligne où les différents mélanges n'ont lieu, que suivant l'axe de déplacement du fluide, que l'on définit par commodité comme étant l'axe  $x$ . Les possibles interactions selon l'axe radial du tube ou du fait de son enroulement en bobine sont négligées.

#### Le diamètre des sections de tube est constant

On suppose que les rayons des tubes utilisés pour fabriquer les AirCores sont constants. Le revêtement appliqué sur les tubes, pour limiter les interactions avec les parois, est supposé réparti uniformément sur la surface intérieure des tubes.

#### Le système est à température et pression constante

Pour modéliser le cas du AirCore, nous considérerons que le système est à une température constante de 20°C (293.15 K) et pression atmosphérique de 1013.25 hPa. Dans ces conditions, le coefficient de diffusivité moléculaire dans l'air des gaz qui nous intéressent noté  $D$  vaut :

$$\begin{cases} D_{CO_2} = 0.16 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1} & \text{pour le } CO_2 \\ D_{CH_4} = 0.23 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1} & \text{pour le } CH_4 \end{cases} \quad (\text{Massman, 1998})$$

#### Les débits sont petits et constants

Les débits caractérisant la circulation d'air dans le AirCore sont faibles. Durant l'analyse, le débit  $Q$  est fixé par un orifice critique placé à la sortie de l'analyseur à 38.5 sccm ('standard cubic centimeters per minute', correspondant à  $\text{cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$  pris à 273.15 K et 1013.25 hPa) soit environ  $42 \text{ cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$  à 293.15 K  $\approx 0.7 \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ . Durant les phases de descente rapide du AirCore, le débit peut atteindre jusqu'à  $250 \text{ cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$  soit  $\approx 4 \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ .

Pour étudier les effets de mélange qui peuvent affecter l'échantillon on considère un débit constant équivalent à celui de la phase d'analyse, soit environ  $42 \text{ cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$ .

#### L'écoulement est incompressible

Pour évaluer si l'écoulement est incompressible, on peut utiliser le nombre de Mach. Ce nombre sans dimension, noté  $Ma$ , exprime le rapport entre la vitesse de l'écoulement d'un fluide ( $V_e$ ) et la vitesse du son ( $V_s$ ) dans ce même fluide.

$$Ma = \frac{V_e}{V_s} \quad (\text{II.1})$$

On peut négliger la compressibilité de l'air pour les nombres de Mach inférieurs à 0.3. Dans notre cas, on s'intéresse à l'air. Dans l'air, la vitesse du son est d'environ  $340 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  et la vitesse de l'écoulement dans notre tube est de l'ordre de  $10^{-2} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ .

On obtient donc :

$$Ma \sim 10^{-4} \ll 0.3 \iff \text{l'écoulement est incompressible.} \quad (\text{II.2})$$

### L'écoulement est laminaire

Les transitions entre écoulement laminaire et turbulent ont été étudiées par [Reynolds, 1883](#), qui a introduit un nombre sans dimension, le nombre de Reynolds, dont la formule ramenée au paramètre de dimension pertinent dans un AirCore peut se réécrire :

$$R_e = \frac{Q d_{int}}{\nu \Sigma_{int}} \quad (\text{II.3})$$

où  $Q$  est le débit en  $m^3.s^{-1}$ ,  $d_{int}$  le diamètre intérieur du tube en mètre,  $\nu$  la viscosité cinématique ( $\frac{\mu}{\rho}$ ) en  $m^2.s^{-1}$  et  $\Sigma_{int}$  la surface du disque intérieur du tube en  $m^2$ .

Pour des conduites cylindriques, il a été estimé que jusqu'à une valeur limite de 1750 l'écoulement est laminaire ([Peixinho et al., 2006](#)).

Pour représenter le cas général d'un AirCore, on peut prendre les nombres caractéristiques suivants :

- $\nu$  la viscosité cinématique de l'air :  $15.6 \times 10^{-6}$  à  $20 \text{degC}$
- le diamètre intérieur du tube  $d_{int} = 0.15$  à  $1$  cm
- $\Sigma_{int}$  la surface du disque intérieur du tube  $2\pi r_{int}^2$  avec  $r_{int} = 0.075$  à  $0.5$  cm
- le débit  $Q \approx 0.7 \text{ cm}^3.s^{-1}$  durant l'analyse ( $42 \text{ cm}^3.min^{-1}$ ), et pouvant atteindre jusqu'à  $250 \text{ cm}^3.min^{-1}$  soit  $\approx 4 \text{ cm}^3.s^{-1}$  durant les phases de descente rapide du AirCore.

On obtient alors, un nombre de Reynolds compris entre :

$$1,36 < R_e < 8,5 \quad (\text{II.4})$$

Aux débits de gaz entrant dans un AirCore lors d'un vol et durant l'analyse, on a donc un régime d'écoulement laminaire qui s'établit puisque  $R_e$  est très inférieur à 1750. On est très loin des conditions d'un régime turbulent pour les débits et les caractéristiques qui concernent un AirCore.

### L'écoulement dans le tube est un écoulement de Poiseuille

La loi de Poiseuille décrit l'écoulement laminaire d'un fluide dans un conduit cylindrique. Le champ de vitesse dans un tube peut alors être décrit sous la forme d'un profil parabolique du champ de vitesse selon l'axe du tube. Si l'on considère que le tube est orienté suivant l'axe des  $x$ , avec un écoulement dans le sens des valeurs croissantes de cet axe, le profil de vitesse dans la conduite est de la forme :

$$\vec{u}(r) = u(r)\vec{e}_x = U_0 \left(1 - \frac{r^2}{r_{int}^2}\right)\vec{e}_x \quad (\text{II.5})$$

où  $r$  représente la distance par rapport au centre du tube,  $U_0$  la vitesse maximale au centre de la conduite, et  $r_{int}$  est le rayon intérieur constant du tube. Cette relation est vérifiée pour un gradient de pression constant dans le tube, ce qui est vrai dans le cadre de cette étude. En effet, l'hypothèse du débit constant impose cette condition. Cela est vérifié dans la réalité pour un AirCore lors de l'analyse de l'échantillon et lors de échantillonnage dès qu'une vitesse de descente stable est établie.

### II.3.2 Mélange de l'échantillon dans un AirCore

Pour modéliser le mélange qui se produit lors du parcours d'un petit volume d'air entre le moment ou celui-ci est prélevé dans l'atmosphère, on identifie trois effets qui peuvent contribuer au mélange de l'air :

- Effet 1 (**E1**) Sous l'effet de l'agitation thermique les différentes molécules du volume d'air prélevé se déplacent dans le tube. Ce déplacement peut être caractérisé par la diffusion moléculaire.
- Effet 2 (**E2**) En lien avec le profil parabolique de vitesse qui s'établit lors du déplacement de l'air dans le tube, il y aura un mélange supplémentaire lorsque l'air est en mouvement, connu sous le nom de dispersion de Taylor. Ce mélange s'ajoute à la diffusion moléculaire qui continue alors que l'air se déplace.
- Effet 3 (**E3**) La cellule de mesure de l'analyseur a un volume fini dans lequel l'air se mélange.

### II.3.2.1 Effet 1 - Diffusion moléculaire

La diffusion moléculaire représente la tendance naturelle d'un système à rendre homogène les concentrations des espèces chimiques en son sein. Cette notion permet de caractériser le déplacement moyen des différentes molécules du volume d'air prélevé sous l'effet de l'agitation thermique. Ce phénomène peut être représenté par les lois de Fick ou par une approche statistique pour calculer le libre parcours moyen des molécules. Nous présenterons ici les deux approches.

#### Les Lois de Fick

La première loi de Fick énonce que le flux de diffusion est proportionnel au gradient de concentration. Pour une espèce chimique, notée A, cette loi s'écrit :

$$\vec{j}_A = -D_A \overrightarrow{\text{grad}} C_A \quad (\text{II.6})$$

où  $\vec{j}_A$  est le vecteur densité de courant de particules des particules A en  $\text{mol.m}^2.\text{s}^{-1}$ . Ce vecteur donne le flux de particules de A traversant une surface par unité de temps. D est le coefficient de diffusivité de A dans le milieu considéré en  $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$  et  $C_A$  la concentration de l'espèce chimique A en moles. $\text{m}^{-3}$  en un point (x,y,z) et à instant t donné.

Pour un système à une dimension, en se plaçant selon l'axe des x, cette équation devient :

$$\vec{j}_{A_x} = -D_A \frac{\partial C_A}{\partial x} \quad (\text{II.7})$$

La deuxième loi de Fick, dite loi de conservation des espèces chimiques, indique que le flux de particules sortant par une surface S est égal à l'opposé de la variation par unité de temps de la quantité de particules dans un volume V. Ceci revient à dire que la concentration dans le volume V diminue quand le flux sortant augmente.

$$\iint_S \vec{j}_A \overrightarrow{dS} = -\frac{\partial}{\partial t} \iiint_V C_A dV \quad (\text{II.8})$$

En utilisant le théorème de Green-Ostrogradsky, on peut reformuler cette équation sous la forme :

$$\iiint_S \text{div} \vec{j}_A dV = -\frac{\partial}{\partial t} \iiint_V C_A dV \quad (\text{II.9})$$

A 1 dimension, cette équation devient :

$$\frac{\partial C_A}{\partial t} = -\frac{\partial j_A}{\partial x} \quad (\text{II.10})$$

La réunion des deux lois de Fick, exprimées à une dimension, donne une équation caractérisant la diffusion des espèces chimiques dans un milieu similaire à l'équation de diffusion de la chaleur :

$$\frac{\partial C_A}{\partial t} = D_A \frac{\partial^2 C_A}{\partial x^2} \quad (\text{II.11})$$

Cette équation a été beaucoup étudiée pour la diffusion de la chaleur et la dispersion des polluants. Lors de l'introduction d'une concentration  $C_{max}$  d'une espèce chimique A dans un milieu qui n'en contient pas, une solution classique de cette équation peut être exprimée sous la forme :

$$C_A(x, t) = \frac{C_{max}}{\sqrt{4\pi D_A \Delta t}} \exp\left(-\frac{x^2}{4D_A \Delta t}\right) \quad (\text{II.12})$$

Où  $\Delta t$  représente le temps total depuis le début de la diffusion jusqu'à l'instant t. Cette équation a la forme d'une gaussienne :

$$C_A(x, t) = \frac{C_{max}}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{x^2}{2\sigma^2}\right) \quad (\text{II.13})$$

en posant :

$$\sigma^2 = 2D_A\Delta t \iff \sigma = \sqrt{2D_A\Delta t} \quad (\text{II.14})$$

La quantité  $\sigma$  est l'écart type de la distribution. Cette quantité, donnée en mètres, est représentative de l'étalement de la diffusion et représente la distance moyenne que parcourt une molécule depuis le point où la substance A est relâchée. L'écart type  $\sigma$  peut donc servir à évaluer la distance moyenne affectée par le phénomène de diffusion d'une espèce chimique à partir d'un point donné.

### Libre parcours moyen

La distance moyenne parcourue par une molécule peut également se retrouver en suivant une approche statistique pour retrouver le libre parcours moyen des particules dans un milieu. En suivant cette approche, le déplacement quadratique moyen d'une particule est donné par la relation :

$$\langle X^2 \rangle = 2dD_A t \quad (\text{II.15})$$

Où X représente le libre parcours (ou déplacement) moyen d'une particule, d la dimension du mouvement,  $D_A$  le coefficient de diffusion moléculaire en  $m^2.s^{-1}$  et t le temps écoulé en secondes.

Dans le cas du AirCore, nous faisons l'hypothèse que le mouvement est à une dimension uniquement suivant l'axe du tube. On retrouve alors que la distance de libre parcours moyen X est donnée par la relation :

$$X = \sqrt{2D_A t} \quad (\text{II.16})$$

ce qui correspond à la valeur de l'écart type  $\sigma$  (en m) qui caractérise la distance affectée par le phénomène de diffusion en utilisant les lois de Fick.

#### II.3.2.2 Effet 2 - Dispersion de Taylor

Lors du déplacement de l'air dans un tube, un mélange supplémentaire est à prendre en compte. En effet, les travaux de [Taylor, 1953](#) ont montré que lors d'un écoulement laminaire dans un tube, un mélange de l'air selon l'axe de propagation de l'écoulement s'établit. Pour comprendre ce mélange additionnel, nous allons considérer une section de tube. Le mélange auquel on s'intéresse ici provient de petits déplacements des molécules suivant l'axe radial du tube. Ces déplacements proviennent simplement de la diffusion moléculaire selon l'axe radial. Lorsque le fluide dans le tube est au repos, ces déplacements sont négligeables puisqu'ils n'affectent pas la concentration du fluide en une section donnée du tube. En revanche, lorsque le fluide se déplace, en lien avec le profil parabolique de vitesse qui s'établit, ces petits déplacements de molécules tendent à positionner certaines molécules tantôt au cœur de la conduite, où la vitesse de l'écoulement est maximale, tantôt au bord de la conduite, où la vitesse de l'écoulement est minimale. Ce phénomène a tendance à uniformiser le déplacement de l'air, avec une vitesse moyenne le long de toute la section considérée, de manière similaire à un écoulement piston. Malgré tout, un léger mélange se produit le long de l'axe du tube lorsque certaines molécules sont projetées légèrement plus vite ou ralenties. Ce phénomène est connu sous le nom de dispersion de Taylor.

Pour de faible débit, il est possible de considérer conjointement, la dispersion de Taylor et la diffusion moléculaire qui agissent dans la même direction. Durant le temps où l'air est en déplacement dans le tube, les deux phénomènes sont à considérer. La diffusion moléculaire continue et la dispersion de Taylor s'y ajoute. Ces deux phénomènes, qui affectent l'échantillon, peuvent alors être exprimés sous la forme d'un coefficient de diffusion effectif  $D_{eff}$  qui remplace le coefficient de diffusion  $D_A$ , pour une espèce chimique donnée, pour la période où le fluide est en mouvement. La démonstration complète est donnée par ([Aris, 1956](#) ; [Azer, 2005](#)).

$$D_{eff} = D_A + \frac{r_{int}^2 \bar{U}^2}{48D_A} \quad (\text{II.17})$$

Où  $D_A$  représente le coefficient de diffusion moléculaire d'une espèce A,  $r_{int}$  le rayon interne du tube, et  $\bar{U}$  la vitesse moyenne de l'air à l'intérieur du tube.

On a alors :

$$\sigma = \sqrt{2(D_{eff} = D_A + \frac{r_{int}^2 \bar{U}^2}{48D_A})\Delta t_{ana}} \quad (\text{II.18})$$

Où  $\Delta t_{ana}$  représente le temps nécessaire à l'analyse du AirCore, durant lequel l'air est en mouvement dans le tube et les deux phénomènes de diffusion moléculaire et dispersion de Taylor affectent l'échantillon.

On peut par ailleurs noter que la dispersion de Taylor permet d'assimiler l'écoulement de l'air dans un AirCore à écoulement piston rendant possible l'analyse et l'échantillonnage d'air, sans mélange destructeur. Sans ce déplacement selon l'axe radial des molécules, le profil parabolique de vitesse détruirait complètement l'échantillon.

### II.3.2.3 Effet 3 - Impact de la cellule de mesure de l'analyseur

En plus des phénomènes précédemment décrits, le mélange qui a lieu dans la cellule de mesure de l'analyseur doit être pris en compte. Nous avons présenté dans la partie II.2.2 que la cellule de mesure de l'analyseur utilisé dans cette thèse a un volume d'environ  $7 \text{ cm}^3$  (ramené à  $20^\circ\text{C}$  et pression atmosphérique). Il est nécessaire de changer trois fois le volume de la cellule pour renouveler celui-ci quasiment entièrement (Stowasser et al. 2014). Au débit de l'analyse, fixé dans notre cas par l'orifice critique, à environ  $42 \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ , on obtient donc une durée d'environ 30 secondes pour renouveler complètement l'air de la cellule de mesure.

Pour représenter ce mélange, sur une distance de tube correspondant en volume à environ 3 fois le volume de la cellule de mesure, nous avons fait le choix de considérer une gaussienne dont on définit l'écart type  $\sigma$  comme :

$$\sigma_{cell} = \frac{1}{2} \frac{V_{cell}}{\Sigma_{int}} = \frac{1}{2} l_{tube} \quad (\text{II.19})$$

Où  $V_{cell}$  représente le volume de  $7 \text{ cm}^3$  de la cellule de mesure,  $\Sigma_{int}$  représente la surface d'une section intérieure de tube ( $\pi r_{int}^2$ ),  $l_{tube}$  représente la longueur de tube du AirCore nécessaire pour stocker le volume de la cellule de mesure.

Une gaussienne, caractérisée par un écart-type équivalent à la moitié de la distance sur laquelle est répartie le volume d'une cellule dans un AirCore, permet de représenter, que le mélange, au sein de la cellule, s'étale sur une distance dans le AirCore permettant de stocker environ 3 fois le volume nécessaire à remplir la cellule de mesure.

### II.3.3 Conclusions sur le mélange dans un AirCore

Les trois phénomènes pris en compte : (E1) la diffusion moléculaire, (E2) la dispersion de Taylor, (E3) l'impact de la cellule de mesure peuvent être représentés par des gaussiennes. La somme de ces différents phénomènes indépendants peut donc être représentée par une gaussienne dont l'écart type  $\sigma_{tot}$  sera donné par :

$$\sigma_{tot} = \sqrt{\sigma_{(E1)}^2 + \sigma_{(E2)}^2 + \sigma_{(E3)}^2} \quad (\text{II.20})$$

$$\text{avec } \begin{cases} \sigma_{(E1)} &= \sqrt{2D_A \Delta t_{att}} \\ \sigma_{(E2)} &= \sqrt{2(D_A + \frac{r_{int}^2 \bar{U}^2}{48D_A})\Delta t_{ana}} \\ \sigma_{(E3)} &= \frac{1}{2} l_{tube} \end{cases} \quad (\text{II.21})$$

Ceci nous permet d'obtenir l'écart type de la gaussienne qui définit l'ensemble des trois phénomènes impactant l'échantillon :

$$\sigma_{tot} = \sqrt{2D_A(\Delta t_{att} + \Delta t_{ana}) + 2\frac{r_{int}^2 \bar{U}^2 \Delta t_{ana}}{48D_A} + (\frac{1}{2} l_{tube})^2} \quad (\text{II.22})$$



A partir de la connaissance de ces trois phénomènes on peut représenter le mélange de chaque volume d'air analysé avec les volumes avoisinants. Dans le cas d'un AirCore combinant plusieurs tubes de diamètres différents on développera les termes  $\sigma_{(E2)}$  en fonction du rayon intérieur et du temps passé dans chacun des tubes et  $\sigma_{(E3)}$  en fonction de la longueur de tube représentant un volume de cellule dans chacun des tubes.

### II.3.4 Observation et modélisation en laboratoire du mélange de l'air dans un AirCore

#### II.3.4.1 Description générale des tests en laboratoire

Une série de tests ont été conduits au laboratoire pour observer la diffusion au sein d'un AirCore. Les résultats présentés dans cette partie valorisent le travail réalisé lors d'un module de formation à la recherche par des élèves de 2<sup>ème</sup> année de l'École polytechnique (Pierre Caldairou & Antoine Guyot) que j'ai eu l'occasion de co-encadrer avec Cyril Crevoisier et François Danis.

Lors de ce travail, un tube de 100 m de diamètre 1/4 de pouces (6.35 mm) a été utilisé pour représenter un AirCore. L'objectif consistait à observer et modéliser la déformation de créneaux de concentrations différentes lorsqu'ils traversent le AirCore ou lorsqu'ils s'y retrouvent stockés pendant une période donnée.

Le tube de 100 m, représentant un AirCore, était monté dans la chaîne de mesure telle qu'elle a été décrite précédemment (cf partie II.2.2) avec pour seule modification l'ajout d'un "T" dans la ligne de mesure conduisant des bouteilles de gaz au AirCore. Cet élément en forme de "T" donne une sortie sur l'extérieur en amont du AirCore et du bypass, afin que la pression soit fixée à la pression atmosphérique. Les détendeurs des bouteilles, toujours réglés entre 1,1 et 1,3 bar, délivrent une pression suffisamment grande pour que le gaz passe dans le AirCore et qu'une partie s'échappe par le T. Ceci permet d'éviter qu'une légère différence de pression dans les détendeurs n'affecte la période des créneaux définie en entrée. En effet, un détendeur, dont la pression est plus petite, ne pourrait délivrer son gaz tant que la pression dans la ligne de mesure n'est pas redescendue au niveau de celle du détendeur (la pompe extrait de l'air en permanence et tend donc à abaisser la pression). L'ajout d'un "T", fixant la pression dans la ligne de mesure, à la pression atmosphérique, permet d'obtenir des créneaux réguliers en sortie.

Dans cette configuration, l'un ou l'autre des gaz de référence, de concentrations respectives en CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> différentes, ont été utilisés pour former des créneaux en alternant régulièrement entre les gaz envoyés dans le AirCore. Ces créneaux, constitués d'alternances de gaz haute et basse concentration, ont été envoyés dans le AirCore dans des conditions strictement contrôlées, à un débit de 42 cm<sup>3</sup>.s<sup>-1</sup> (fixé par l'orifice à écoulement critique), pour des périodes de 5 à 10 minutes.

#### II.3.4.2 Comparaison expérimentale de la déformation des créneaux sous l'effet du mélange

La déformation des créneaux, sous l'effet des différents phénomènes de mélange (cf partie II.3.2), a été observée en faisant directement circuler l'air par le bypass ou au travers du AirCore, mais aussi en stockant des créneaux dans le AirCore. Lors du stockage, le AirCore était fermé aux deux extrémités, puis laissé au repos durant des périodes de quelques heures, avant d'en analyser le contenu.

La méthode pour stocker des créneaux dans le AirCore est simple. Lorsque l'on fait circuler des créneaux au travers du AirCore, une fois que les premiers créneaux sont mesurés en sortie par l'analyseur, le AirCore est fermé. Il contient alors plusieurs créneaux alternant haute et basse concentration. Des stockages ont été réalisés pour des périodes de 22 heures et 120 heures.

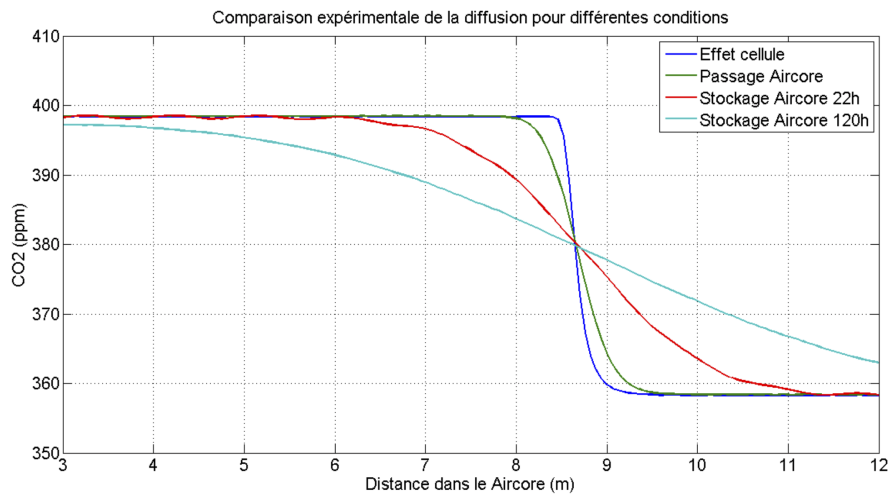
Les résultats de ces différentes expériences sont présentés en Fig. II.6. Le changement de concentration en CO<sub>2</sub> (en ppm) au niveau d'un créneau  $y$  est présenté en fonction de la distance dans le AirCore (en m). En effet, le débit étant fixé, l'analyse du volume contenu dans le AirCore de 100 m a une durée constante d'approximativement 56 minutes. Il est donc possible de relier la durée de l'analyse à une distance de tube dans le AirCore.

Cette figure permet d'observer le résultat de la déformation d'un créneau sous l'effet du mélange dans le AirCore lors de la transition entre le gaz de référence haute concentration et le gaz de référence basse concentration. Cette transition pour un créneau, qui a circulé au travers du bypass, et ne subit donc quasiment que l'effet de la cellule de mesure du Picarro, est présentée en bleu foncé. La même transition,

pour un créneau ayant circulé au travers du AirCore, et ayant donc subi l'effet de la diffusion moléculaire et de la dispersion de Taylor durant 56 minutes est présentée en vert. Enfin cette transition pour des créneaux restés stockés 22 et 120 heures dans le AirCore est présentée respectivement en rouge et en bleu clair.

Sur la courbe en bleu foncé, qui présente la déformation du créneau envoyé au travers du bypass, on peut constater une légère déformation du créneau sur une distance d'environ 0,9 mètres. Cette déformation correspond au mélange qui a lieu dans la cellule de mesure. En effet, nous avons présenté dans la partie II.3.2.3, qu'au débit de l'analyse, 30 secondes sont nécessaires pour renouveler complètement l'air de la cellule. Or, dans le cas présent, où l'analyse du AirCore de 100 m dure 56 minutes, 0,9 mètre correspond exactement à ces 30 secondes.

Pour les créneaux passés au travers du AirCore, ou stockés dans le AirCore pour une certaine durée, on observe une atténuation de plus en plus grande des créneaux (Fig. II.6). Ceci démontre l'effet croissant du mélange, avec l'augmentation du temps de stockage dans le AirCore, qui rend prépondérante la diffusion moléculaire.



**FIGURE II.6** – Comparaison expérimentale de la diffusion : On voit l'effet de la déformation de créneaux lors du passage direct au travers du bypass (bleu foncé) ; d'un passage direct dans le AirCore (vert) ; pour un stockage pendant 22 h (rouge) ; et pour un stockage pendant 120 h (bleu clair). Figure issue du rapport de module d'enseignement à la recherche (Caldairou et al., 2015).

### II.3.4.3 Modélisation du mélange pour différents temps de stockage

Un modèle numérique pour simuler les effets de la diffusion a été développé en partant de l'équation de la diffusion, issue des deux premières lois de Fick (équation II.11), rappelée ici :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (\text{II.23})$$

La modélisation de la diffusion dans un AirCore, a été réalisée à l'aide de différences finies, en discrétisant en temps et en espace la relation ci-dessus (Allaire, 2004).

Le modèle permet de représenter la déformation de créneaux de période et de concentrations données. Basé uniquement sur l'équation de la diffusion, ce modèle ne prend pas en compte la déformation des créneaux sous l'effet de la cellule. Le calcul des concentrations contient deux étapes pour prendre en compte la diffusion moléculaire lors du temps de stockage et l'effet combiné de la diffusion moléculaire et de la dispersion de Taylor lors de l'écoulement de l'air. Un coefficient de diffusivité  $D$  est utilisé pour modéliser la diffusion durant le temps de stockage. La diffusion convective (additionnant diffusion moléculaire et dispersion de Taylor) est prise en compte en remplaçant  $D$  par  $D_{eff}$  (cf II.3.2), durant

le temps où l'air circule dans le AirCore. Ainsi, le modèle établi permet de représenter l'évolution d'un créneau au sein d'un AirCore en fonction de différents paramètres : le temps de déplacement de l'air dans le AirCore, le temps de stockage, les caractéristiques du AirCore.

Ce modèle a été appliqué à des créneaux de même période que les observations expérimentales pour un passage direct au travers du AirCore, un stockage de 22 h et 120 h. Les résultats, juxtaposant les créneaux expérimentaux et modélisés, sont présentés en figure II.7. De légers décalages peuvent être observés dans la position du modèle et des courbes expérimentales. Ceux-ci peuvent être expliqués par le fait que la période des créneaux expérimentaux, formés en alternant manuellement entre les différents gaz, est parfois légèrement variable, tandis que celle imposée aux créneaux modélisés est fixe.

La figure II.7 (a) présente une comparaison de la déformation des créneaux de  $\text{CO}_2$  expérimentaux et modélisés, lors du passage de l'air directement au travers du AirCore jusqu'à l'analyseur (i.e. sans temps de stockage avant leur analyse). La comparaison est présentée avec deux modélisations différentes. L'une prenant en compte uniquement la diffusion moléculaire durant le temps du déplacement (courbe noir), l'autre comptabilisant également la dispersion de Taylor (courbe rouge pointillée). Les mesures expérimentales sont présentées par la courbe bleue. On observe que l'accord du modèle avec les observations est excellent.

La comparaison des deux différentes modélisations, utilisant soit le coefficient  $D$ , soit le coefficient  $D_{eff}$  pour représenter la diffusion lors du déplacement dans le AirCore, permet de se rendre compte que la contribution de la diffusion moléculaire au mélange des concentrations est prépondérante devant l'effet de la dispersion Taylor. En effet, les deux courbes de modélisations se superposent. L'impact de la diffusion moléculaire devant la dispersion de Taylor sur le mélange sera d'autant plus important que le délai avant l'analyse augmente.

Dans la suite des comparaisons, seule la modélisation complète, additionnant les effets de la diffusion moléculaire durant le temps de stockage, et, de la diffusion moléculaire et de la dispersion de Taylor durant le temps d'analyse sera considérée. Ainsi, la figure II.7 (b) présente les résultats pour 22 h de stockage et figure II.7 (c) pour 120 h de stockage.

Dans les deux cas (b) et (c), les résultats sont présentés pour  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$ . Ceci permet de constater visuellement que la déformation des créneaux de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  est légèrement différente. En effet, le coefficient de diffusivité du  $\text{CH}_4$  est plus important que celui du  $\text{CO}_2$  (cf partie II.3.1). En relation avec ceci, on observe un étalement plus grand des créneaux de  $\text{CH}_4$  ce qui démontre bien que les molécules de  $\text{CH}_4$  ont parcouru une distance plus importante dans le AirCore.

En observant les comparaisons des modélisations et des mesures expérimentales dans les différents cas on peut constater que l'accord est excellent. Hormis quelques décalages, dans la juxtaposition entre les créneaux expérimentaux et modélisés, on retrouve bien la déformation des créneaux stockés 22 h et 120 h avec le modèle. En comparant les figures II.7 (b) et (c), on réalise bien l'impact croissant du mélange sur l'échantillon stocké dans les AirCore. Ceci permet de prendre conscience que pour retrouver le plus précisément possible la concentration des masses d'air successives échantillonnées avec un AirCore il sera primordial de limiter le délai avant l'analyse.

#### II.3.4.4 Conclusion des tests en laboratoire

Ces mesures ont permis d'observer la présence de trois phénomènes à l'origine du mélange au sein du AirCore :

- Diffusion moléculaire ;
- Dispersion de Taylor ;
- Mélange dans la cellule de mesure.

A partir d'un modèle relativement simple, les résultats expérimentaux des observations ont été retrouvés de manière précise. Les résultats démontrent que le mélange dans le AirCore est à considérer avec importance et que le délai avant l'analyse des échantillons prélevés doit être le plus réduit possible pour limiter la dégradation des résultats. Par ailleurs, ces résultats permettent d'observer, que pour un temps de stockage suffisamment long, la diffusion classique devient prépondérante devant la dispersion de Taylor et le mélange dans la cellule de l'instrument. Toutefois, dans la réalité, nous souhaitons analyser les échantillons le plus rapidement possible. Ainsi, nous considérerons, une distribution gaussienne, prenant

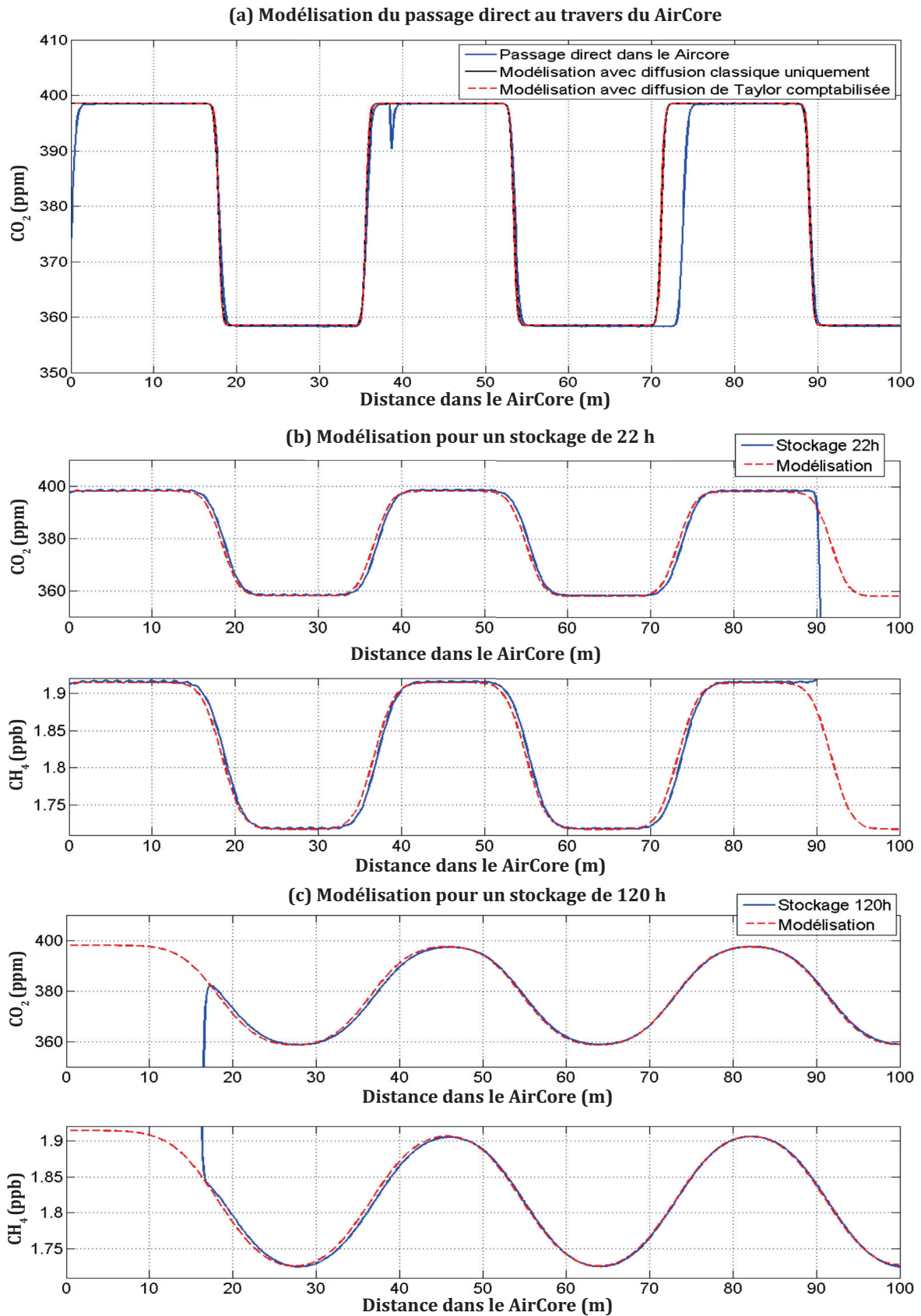


FIGURE II.7 – Comparaison entre le modèle et les courbes expérimentales. En bleu, la mesure suite au stockage dans le AirCore; en rouge le modèle. Figure issue du rapport de module d'enseignement à la recherche (Caldairou et al., 2015).

en compte l'ensemble des effets identifiés (cf partie II.3.3), pour représenter l'effet du mélange dans le AirCore à une distance donnée.

## II.4 Conception des AirCores

Nous avons mentionné précédemment qu'il est possible de concevoir des AirCores en combinant plusieurs tubes de longueurs et de diamètres variables. Les caractéristiques retenues vont déterminer l'impact que la diffusion pourra avoir sur l'échantillon prélevé et conditionner la résolution verticale qu'il sera possible d'obtenir avec un système. Il est donc nécessaire de dimensionner chaque AirCore avec soin. Nous allons présenter comment calculer la résolution verticale théorique d'un AirCore à partir des lois physiques présentées en partie II.3. Le choix du diamètre et de la longueur des tubes conditionnera le volume d'échantillon prélevé et la résolution verticale qu'il sera possible d'atteindre. Il faut donc sélectionner la configuration qui convient le mieux aux objectifs scientifiques en respectant des limites de masse et de dimensionnement autorisés dans le cadre de la réglementation des différents vols (ballons météorologiques, ballons stratosphériques ouverts, avions...)

### II.4.1 Calcul de la résolution verticale théorique d'un AirCore

#### II.4.1.1 Théorie

En partie II.3.3, nous avons vu que le déplacement moyen des particules dans le tube est donné par l'écart type  $\sigma_{tot}$  de la gaussienne qui caractérise les effets cumulés de la diffusion moléculaire, de la dispersion de Taylor et de l'effet de la cellule de mesure (équation II.20). Afin de considérer le mélange dans les deux directions suivant l'axe x nous considérons que l'étalement des phénomènes de diffusion affecte une distance de  $2 \sigma_{tot}$ .

Nous noterons :

$$\Delta X = 2\sigma_{tot} \quad (\text{II.24})$$

Où  $\Delta X$  représente la longueur de tube en mètres affectée par la diffusion.

Pour calculer la résolution verticale théorique, on considère un vol théorique où :

- un AirCore échantillonne l'atmosphère entre 10 hPa et la surface à 1000 hPa ;
- cet AirCore est maintenu fermé à l'atterrissage ;
- et a une température homogène sur l'ensemble des tubes durant les phases d'attente et d'analyse.

Pour effectuer le calcul de la résolution verticale, nous ne considérerons le mélange qu'à partir du moment où le AirCore arrive au sol et est refermé après avoir prélevé un échantillon le long d'une colonne atmosphérique. Nous ne considérons pas le mélange qui peut avoir lieu durant le vol entre le moment où de l'air entre dans le tube et l'arrivée au sol. Cette durée est en effet variable d'un vol à l'autre et la répartition de l'échantillon dans le tube varie constamment alors que l'air est progressivement comprimé sous l'effet de l'augmentation de la pression alors que de nouvelles couches d'air sont échantillonnées.

Typiquement, pour un AirCore lancé sous ballon météorologique, la durée de la descente sous parachute est d'environ 1h30 et peut être bien plus longue dans le cas de ballons stratosphériques ouverts. Les effets du mélange de l'échantillon durant ces quelques minutes sont alors négligeables devant les effets du mélange durant le temps d'attente et le temps de l'analyse qui sont estimés dans le meilleur des cas à au moins 3 h, le délai minimum pour récupérer le AirCore sur le terrain et préparer l'analyse de l'échantillon qui vient d'être prélevé.

Pour calculer la résolution verticale, on peut alors considérer que, la répartition de la colonne atmosphérique de 1000 hPa, échantillonnée dans le AirCore, est uniforme. Dans le cas d'un AirCore constitué d'un tube, on a alors :

$$\Delta P = \Delta X \frac{P_{max}}{L} \quad (\text{II.25})$$

Où  $\Delta P$  représente la résolution effective en Pascal et  $P_{max}$  la pression à la surface quand le AirCore est fermé. L est la longueur totale du AirCore.

Dans le cas de 2 tubes ou plus,  $\Delta P$  peut être calculé indépendamment pour chaque section. Il faudra calculer la pression  $P_{max}$  et  $P_{min}$  dans chaque section, en fonction du rapport du volume de chaque tube sur le volume total, et du sens dans lequel l'échantillonnage a été effectué.

Prenons l'exemple d'un AirCore constitué de deux tubes, composé d'un premier tube maintenu fermé à l'une de ses extrémités, et raccordé à un second tube ayant eu une extrémité ouverte pendant le vol. En fin de vol, l'air échantillonné en premier se retrouve alors dans le premier tube, où il a été progressivement poussé par l'air entré dans le AirCore dans la suite de la descente jusqu'à 1000 hPa.

Dans ce cas, la répartition de la colonne d'air de 1000 hPa, échantillonnée par le AirCore, se répartie de la manière suivante :

$$\begin{cases} P_{min_1} = 0 \text{ et } P_{max_1} = \frac{V_1}{V_{tot}} P_{max} \\ P_{min_2} = P_{max_1} \text{ et } P_{max_2} = P_{max} \end{cases} \text{ avec } V_1 + V_2 = V_{tot} \quad (\text{II.26})$$

Où  $V_1$  et  $V_2$  représentent respectivement le volume du premier et du second tube.  $V_{tot}$  représente le volume total du AirCore

On a alors :

$$\begin{cases} \Delta P_1 = \Delta X_1 \frac{P_{max_1}}{L_1} \\ \Delta P_2 = \Delta X_2 \frac{P_{max_2}}{L_2} \end{cases} \quad (\text{II.27})$$

Où  $L_1$  et  $L_2$  représentent la longueur de chacun des tubes et  $\Delta X_1$  et  $\Delta X_2$  la distance affectée par le mélange à  $2\sigma_{tot}$  suivant la géométrie de de chacun des tubes.

On discrétise alors cette relation par pas de 1 hPa. Ce qui revient à découper le AirCore en 1000 petits volumes identiques contenant le nombre de molécules nécessaires pour augmenter la pression de 1 hPa. En calculant également la relation pression altitude d'une atmosphère standard, par pas de 1 hPa, que l'on représentera par le gradient  $dP/dz(i)$ , on peut associer la résolution effective en Pascal, à une résolution verticale théorique en mètres, autour de laquelle la diffusion aura impacté l'échantillon pour de l'air prélevé à une altitude donnée, par la relation :

$$\Delta Alt(i) = \frac{\Delta P(i)}{dP/dz(i)} \quad (\text{II.28})$$

Où  $\Delta Alt$  représente donc la résolution verticale théorique de l'échantillon.

Afin de représenter au mieux la situation atmosphérique des latitudes moyennes auxquelles les AirCores sont amenés à être déployés, nous avons utilisé, pour calculer la correspondance pression-altitude  $dP/dz(i)$ , un profil de température moyen correspondant aux latitudes moyennes issu de la base de données TIGR<sup>1</sup>.

La relation II.28 permet alors d'estimer la résolution verticale pour toutes les altitudes rencontrées lors de la descente du AirCore, où de l'air a été échantillonné.

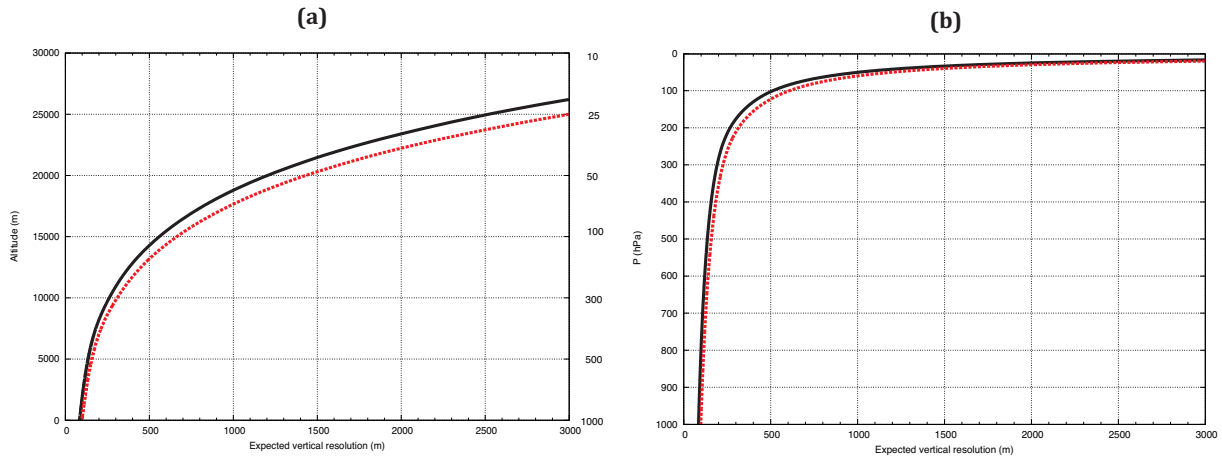
En développant cette équation à partir des équations présentées précédemment, on obtient :

$$\Delta Alt(i) = 2 \frac{P_{max} \sqrt{2D_A(\Delta t_{att}(i) + \Delta t_{ana}(i)) + 2 \frac{r_{int}(i)^2 V(i)^2 \Delta t_{ana}(i)}{48D_A} + (\frac{1}{2}l_{tube}(i))^2}}{L(i)dP/dz(i)} \quad (\text{II.29})$$

On voit alors apparaître les nombreux facteurs qui peuvent influencer la résolution verticale d'un AirCore.

Cette résolution représente la distance de l'étalement moyen des effets de mélange dans le tube transposée à l'altitude où les différents volumes d'air constituant l'échantillon, ont été successivement prélevés, en tenant compte de la façon dont la colonne totale s'est retrouvée stockée dans le AirCore. La résolution verticale théorique du premier AirCore développé par la NOAA (Karion et al., 2010) est présentée en figure II.8. Cet AirCore est constitué d'un seul tube de 152 m de long, de diamètre 1/4 de pouces (6,35 mm). Pour un temps d'attente ( $t_{att}$ ) de 3 heures avant l'analyse, la résolution verticale qui peut être pour le CO<sub>2</sub> est présentée en noir et pour le CH<sub>4</sub> en rouge pointillé. La figure II.8 (a) présente la résolution verticale en fonction de l'altitude et la figure II.8 (b) présente la même résolution verticale en fonction d'un échelle linéaire en pression.

1. Thermodynamic Initial Guess Retrieval, Chédin et al., 1985, disponible à la page <http://ara.abct.lmd.polytechnique.fr/index.php?page=tigr>



**FIGURE II.8** – Résolution verticale théorique du premier AirCore de la NOAA (Karion *et al.*, 2010) (a) en fonction de l'altitude en km, (b) en fonction de pression. Les traits pleins montrent la résolution théorique pour le CO<sub>2</sub>, les traits pointillés pour le CH<sub>4</sub>. Les coefficients de diffusion respectifs du CO<sub>2</sub> et du CH<sub>4</sub> étant légèrement différents.

On observe des différences entre la résolution verticale qui peut être attendue pour le profil de CO<sub>2</sub> ou le profil de CH<sub>4</sub>. Ces différences sont à mettre en relation avec le coefficient de diffusion de ces deux espèces chimiques. La diffusion du CH<sub>4</sub> est légèrement plus rapide que celle du CO<sub>2</sub> (On rappelle que  $D_{CO_2} = 0.16 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  pour le CO<sub>2</sub> et  $D_{CH_4} = 0.23 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  pour le CH<sub>4</sub>).

En comparant les figures II.8 (a) et (b). On voit apparaître les différences entre la représentation en altitude et en pression. Dans l'atmosphère, l'air est beaucoup moins dense en altitude qu'en surface, conséquence directe de l'équilibre hydrostatique. L'air échantillonné le long d'un gradient de 10 hPa entre 20 et 30 hPa dans l'atmosphère et l'air échantillonné le long d'un même gradient de 10 hPa entre 450 et 460 hPa représentent le même volume d'air échantillonné. Toutefois entre 20 et 30 hPa le gradient de 10 hPa correspond à près de 3 km de distance verticale, alors qu'entre 450 et 460 hPa il correspond à environ 200 m de distance verticale.

Dans le AirCore, l'air échantillonné est progressivement comprimé à la pression ambiante qui augmente continûment lors de la descente jusqu'à environ 1000 hPa. Si le système est constitué d'un seul tube, un volume d'air correspondant à un gradient de 10 hPa occupera une même distance de tube. Ceci a une conséquence directe pour l'observation de la stratosphère. En effet, le mélange affectera de la même manière tout l'échantillon mais la résolution verticale diminuera exponentiellement lorsque l'altitude augmente du simple fait que la relation pression-altitude varie exponentiellement.

#### II.4.1.2 Enseignements pour la conception des AirCores

Pour limiter l'impact de la diffusion sur la partie stratosphérique de l'échantillon prélevé à haute altitude, il est judicieux de combiner des tubes de différents diamètres. Un même volume d'air sera stocké sur une distance plus grande dans un tube de diamètre plus fin. Dans ce tube plus fin, la distance sur laquelle est répartie ce même volume augmente et donc la distance à parcourir pour une molécule pour se mélanger avec un volume voisin augmente, bien que la diffusion moléculaire reste identique (cf section  $\sigma_{(i)}$  ne dépend que du temps).

On pourrait alors penser que l'idée d'utiliser un seul tube de diamètre plus fin et de grande longueur est séduisante, mais il faut garder à l'esprit que le volume total échantillonné est le second facteur important. En effet, si ce n'est plus le terme de diffusion moléculaire qui limite la résolution verticale de l'échantillon il reste l'impact de la cellule de mesure qui devient important si le volume total prélevé diminue.

Ainsi, l'usage d'au moins deux tubes est à privilégier, l'un avec un petit diamètre du côté qui sera maintenu fermé et l'autre avec un diamètre plus grand du côté qui sera maintenu ouvert. Ceci permet d'améliorer la résolution dans la stratosphère (la partie stratosphérique de l'échantillon se retrouvant

stockée dans le tube au plus petit diamètre), tout en s'assurant d'échantillonner un volume d'air important grâce au tube avec une section plus large.

C'est dans cette perspective que sont conçus les AirCores du LMD, combinant deux tubes de diamètres différents. L'objectif est d'optimiser le volume d'air prélevé tout en limitant l'impact que pourrait avoir la diffusion sur la partie stratosphérique de l'échantillon. Différents AirCores ont été développés au LMD au cours de cette thèse et ces calculs théoriques ont directement contribué à leur conception.

## II.4.2 Les différents AirCores utilisés dans cette thèse

### II.4.2.1 Description des AirCores

Dans cette thèse nous avons étudié les résultats obtenus avec 3 AirCores différents. Une représentation schématique, détaillant les configurations de ces AirCores comparées au premier AirCore de la NOAA est présentée en Fig. II.9.

Le tout premier AirCore, conçu par la NOAA (Karion et al., 2010), est présenté en noir. Il est constitué d'un seul tube de 152 m de long, de diamètre 1/4 de pouces (6,35 mm).

Les deux types de AirCores du LMD, avec lesquels nous avons travaillé durant cette thèse, sont ensuite présentés. Le AirCore haute résolution, "AirCore-HR", présenté en rouge a été conçu avec l'objectif d'obtenir une plus haute résolution verticale le long de la colonne atmosphérique. Il est composé d'un tube de 200 m de diamètre 1/8 de pouces (3.175 mm) et d'un tube de 100 m de diamètre 1/4 de pouces (6.35 mm) reliés entre eux pour former un système unique de 300 m de long. Le AirCore-Light (LMD-Light en violet), conçu pour être embarqué sous ballon météorologique, respecte un critère de masse stricte. Il combine un tube de 23 m, de diamètre 8 mm et un tube de 46 m, de diamètre 4 mm.

Enfin, le AirCore-GUF est présenté en bleu. Ce AirCore léger a été conçu et développé à l'Université Goethe de Francfort. Long de 100 m, le AirCore-GUF combine 3 tubes : un tube de 20 m de long, de 8 mm de diamètre, un tube de 40 m de long, de diamètre de 4 mm et un tube de 40 m de long, de diamètre 2 mm. Cette configuration à 3 tubes a été choisie avec l'objectif d'avoir la meilleure résolution possible dans la stratosphère avec un AirCore qui reste néanmoins léger. Plusieurs AirCores-GUF ont volé conjointement sur la même nacelle que le AirCore-HR et que les AirCores-Light du LMD lors des campagnes annuelles Strato-Sciences du CNES en 2014 et 2015. Les données de ces AirCores-GUF ont été traitées au LMD et seront donc également présentées dans cette thèse (cf chapitre IV).

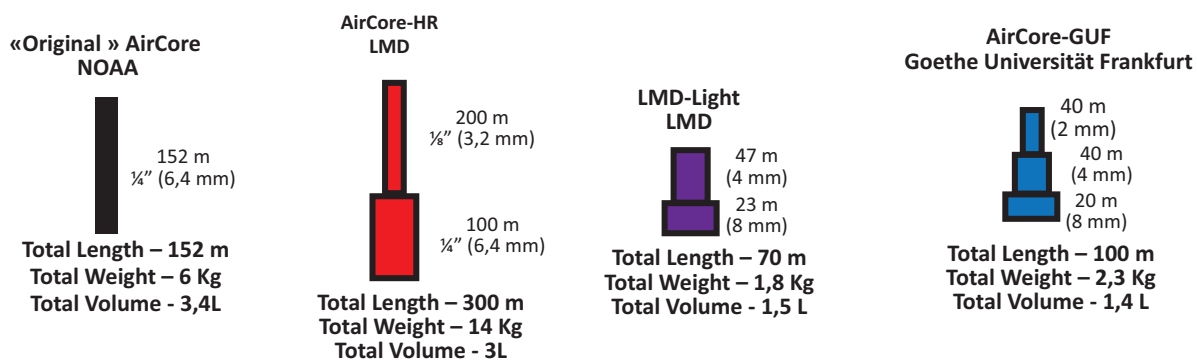


FIGURE II.9 – Représentation schématique des différents AirCores dont la résolution verticale est présentée en Fig. II.10

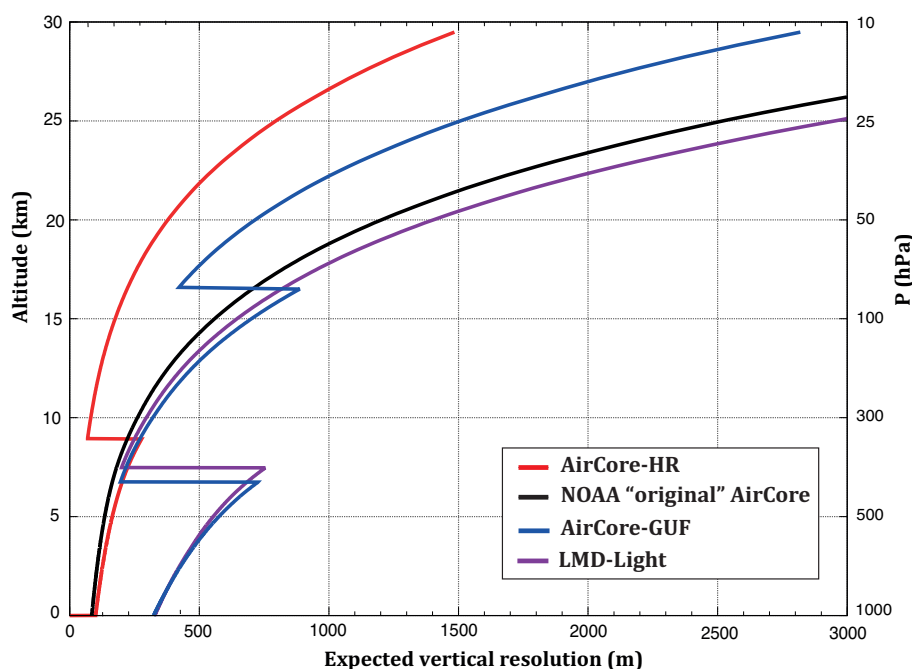
### II.4.2.2 Comparaison de la résolution verticale de différents AirCores

Pour calculer les résolutions verticales des différents AirCores, présentées en Fig. II.10, nous avons considéré un temps d'attente de 3 h à partir de l'instant où le tube est fermé avec l'échantillon prélevé avant le début de l'analyse. Ce temps d'attente de 3 h correspond au terme  $\Delta t_{att}(i)$  dans l'équation II.29. Il est identique pour tous les volumes  $i$  considérés dans le AirCore. En revanche, le temps de trajet, pour



un échantillon donné, stocké à une certaine distance dans le AirCore, pour arriver jusqu'à l'analyseur a été estimé individuellement pour chaque élément  $i$ . Ce temps correspond à  $\Delta t_{ana}(i)$ . En suivant l'équation II.29, les effets de la diffusion moléculaire ont alors été considérés durant un temps  $\Delta t_{att}(i) + \Delta t_{ana}(i)$ . Les effets de la dispersion de Taylor sont considérés pour le temps de trajet entre l'endroit où est stocké l'échantillon et son analyse ( $\Delta t_{ana}(i)$ ). Enfin l'impact du mélange dans la cellule de mesure est également pris en compte suivant les caractéristiques du tube dans lequel le volume  $i$  sera resté stocké.

Finalement, la figure II.10 illustre la comparaison de la résolution verticale des mesures de  $CO_2$  qui peut être attendue pour des échantillons prélevés avec différents AirCores (pour une analyse réalisée à 38.5 sccm, avec une pression de surface de 1000 hPa et un délai de 3 heures avant l'analyse). Une figure similaire peut être obtenue pour la résolution verticale des mesures de  $CH_4$  en remplaçant  $D_{CO_2}$  par  $D_{CH_4}$ .



**FIGURE II.10** – Résolution verticale théorique de différents AirCores donnée pour les mesures de  $CO_2$  pour un délai de 3 heures entre l'atterrissage et l'analyse. AirCore-HR (rouge), le premier AirCore de la NOAA (noir), AirCore-GUF (bleu), le AirCore-Light du LMD "LMD-Light" (violet)

Cette figure type de la résolution verticale, dans un cas idéalisé, où l'on analyse l'échantillon 3 heures après sa capture, permet de comparer la configuration de différents AirCores. On peut alors observer, sur la figure II.10, que le AirCore original de la NOAA, présenté en noir, permet d'obtenir une résolution verticale de 300 m à 10 km et de 1,2 km à 20 km.

Dans les tracés de la résolution verticale, le nombre de tubes dont les AirCores sont constitués apparaît au travers des cassures offrant une amélioration de la résolution verticale en altitude. Il ressort ainsi visuellement que la réduction du diamètre des tubes, dans lesquels, la partie de l'échantillon, prélevée à haute altitude, se retrouvera stockée, permet de réduire l'impact du mélange. Chaque tube additionnel, de diamètre plus fin, permet ainsi de gagner en résolution. Toutefois, la longueur totale et le volume prélevé restent des éléments importants, conditionnant la résolution verticale.

Parmi les AirCores présentés, c'est la résolution verticale du AirCore-HR qui est la meilleure. Elle est estimée être meilleure que 300 m jusqu'à 15 km et meilleure que 500 m jusqu'à 22 km (Fig II.10). La résolution qui peut être obtenue par un AirCore-LMD-Light est présentée en violet en Fig. II.10. Elle est la plus faible de tous les AirCores présentés. Toutefois, pour un dimensionnement deux fois moins long et plus de trois fois plus léger que le AirCore original de la NOAA, la résolution atteinte est intéressante. Elle permet de conserver les profils de  $CO_2$  avec une résolution verticale inférieure à 1000 m jusqu'à 17

km.

Avec un dimensionnement proche du AirCore-Light, le AirCore-GUF, présenté en bleu, permet, grâce à une troisième section de diamètre plus fin, d’obtenir une amélioration de la résolution verticale à haute altitude. La résolution attendue à 25 km devient ainsi meilleure que pour le AirCore original de la NOAA. Elle n’atteint toutefois pas celle du AirCore-HR. Le volume total prélevé, reste en effet un autre facteur limitant.

### II.4.2.3 Caractéristiques techniques des différents AirCores développés durant cette thèse

Cette partie présente les caractéristiques techniques détaillées, ainsi qu’une explication des choix ayant gouverné la conception des deux AirCores du LMD : le AirCore-HR et le AirCore-Light.

#### Le AirCore-HR

Le premier AirCore qui a été conçu est le AirCore-HR, dont l’objectif premier était de tester la possibilité d’obtenir des profils “haute résolution”.

Ce AirCore a été prévu pour participer aux campagnes annuelles de vols de ballons stratosphériques ouverts (BSO) du CNES. Ces ballons permettent l’emport de nacelles avec des charges utiles importantes (250 kg - 1 Tonne). Comparé au vol sous ballon météorologique où la charge utile sera limitée à 3 kg, les contraintes de masses et dimensionnement requis lors de ce type de vol sont plus faibles. Ceci a permis de concevoir quasi-librement un AirCore haute résolution, optimisant à la fois la longueur des tubes et le volume total prélevé.

Les proportions du AirCore-HR ont été choisies pour permettre d’obtenir la meilleure résolution possible dans la région de la haute troposphère - basse stratosphère (UTLS - de l’anglais, “Upper Troposphere - Lower Stratosphere”). Cette région particulière, localisée entre 8 et 15 km d’altitude, dans laquelle se trouve la tropopause, est une région où sont attendues de fortes transitions dans le profil de concentration vertical de plusieurs constituants atmosphériques en lien avec les échanges de masse d’air entre la troposphère et la stratosphère. La cassure dans la résolution verticale du AirCore-HR, marquant le changement de tube entre le tube de 100 m, conservant le bas du profil, et le tube de 200 m plus fin, conservant le haut du profil, est positionnée aux alentours de 9 km (Fig. II.10).

Le développement de ce premier AirCore a été réalisé avec le soutien de l’équipe de Pieter Tans de la NOAA/ESRL de Boulder (Colorado, USA) qui est à l’origine du concept du AirCore. Un premier séjour d’une semaine à Boulder, de l’ingénieur de recherche du LMD, François Danis, qui assure le développement technique de tous les AirCores au LMD, a permis de clarifier les éléments techniques pour démarrer la construction de ce nouvel instrument. Puis, un séjour de 2 mois de Colm Sweeney de la NOAA/ESRL, au LMD, financé par l’École polytechnique, a permis d’accélérer la prise en main du AirCore et de nous familiariser au traitement des données des AirCores.

TABLE II.2 – Caractéristiques du AirCore-HR

Tube	tube 1/4 pouces (6.35 mm)	tube 1/8 pouces (3.175 mm)
Diamètre (pouces/mm)	0.25 / 6.35	0.125 / 3.175
Épaisseur (pouces/mm)	0.02 / 0.508	0.02 / 0.508
Diamètre interne (pouces/mm)	0.21 / 5.334	0.085 / 2.159
Rayon interne (pouces/mm)	0.105 / 2.667	0.0425 / 1.0795
Longueur(m)	100	200
Volume (cm <sup>3</sup> )	2235	732
Masse (kg)	7.48	6.82
AirCore complet		
Volume total (cm <sup>3</sup> )	2967	
Masse totale (kg)	14.30	

Les caractéristiques détaillées du AirCore-HR sont présentées dans le tableau II.2 qui présente, le diamètre, l’épaisseur, le diamètre interne, le rayon interne, la longueur, le volume, et la masse de chacun des

deux tubes utilisés. Pour résumer, le AirCore-HR, combine deux tubes de diamètres différents, totalisant 300 m de longueur totale et permet de prélever l'air le long d'une colonne atmosphérique sous la forme d'un échantillon de près de 3L d'air, pour une masse totale de tube de 14.3 kg (Tab. II.2). La charge utile complète comprenant le AirCore-HR, les différentes vannes, l'électronique associée, les batteries pour alimenter l'électronique et la boîte de protection représente une masse totale proche des 30 kg.

### Les AirCores-Light

Dans la perspective de développer des AirCores déployables sous ballon météorologique, une version légère, le AirCore-light a été fabriquée. Plusieurs copies identiques de ce AirCore ont été fabriquées.

Un AirCore-Light du LMD combine deux tubes, dont le dimensionnement est choisi pour que la cassure dans la résolution verticale soit stratégiquement positionnée, proche de la cassure du AirCore-HR, aux alentours de 8 km. Les caractéristiques techniques détaillées, sur le même modèle que pour le AirCore-HR sont présentées dans le tableau II.3.

**TABLE II.3** – *Caractéristiques des AirCores-Light du LMD*

Tube	tube de 8 mm	tube de 4 mm
Diamètre (mm)	8	4
Épaisseur (mm)	0.25	0.15
Diamètre intérieur (mm)	7.5	3.7
Rayon intérieur (mm)	3.75	1.85
Longueur (m)	23	46
Volume (cm <sup>3</sup> )	1016	495
Masse (kg)	1.12	0.67
AirCore complet		
Volume total (cm <sup>3</sup> )	1511	
Masse totale (kg)	1.79	

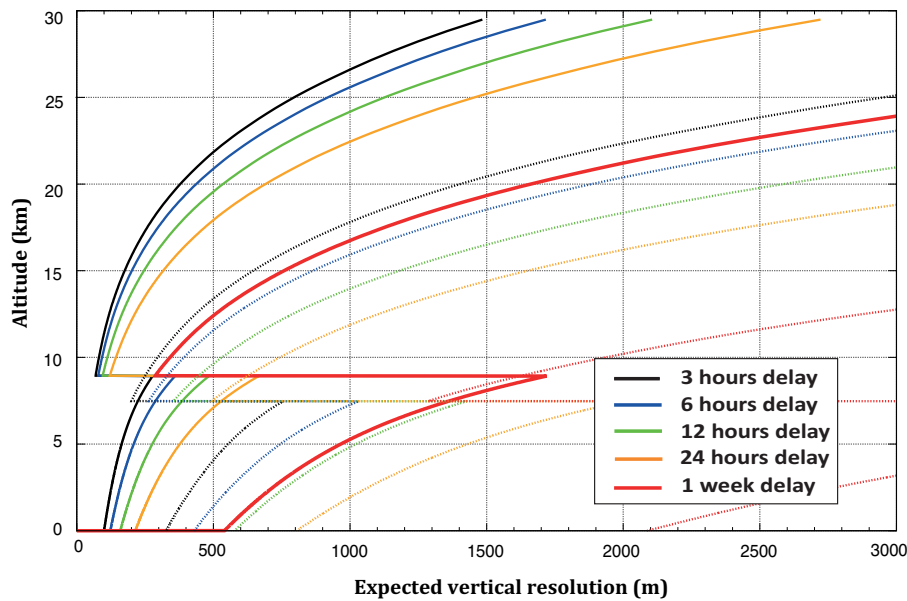
Ce modèle de AirCore permet d'échantillonner une colonne atmosphérique sous la forme d'un échantillon de 1,5 litres d'air reparti sur une longueur totale de 69 m. Avec l'ensemble des vannes, l'électronique et ses batteries associés ce système avoisine les 3 kg. Une attention toute particulière est portée à chaque élément pour limiter la masse totale et l'encombrement du système.

#### II.4.2.4 Influence du délai avant l'analyse sur la résolution

Le délai entre l'atterrissage et l'analyse de l'échantillon prélevé est un élément clé pour la résolution verticale. Les résolutions verticales présentées en Fig. II.10 sont valables pour un délai de 3 heures avant de débiter l'analyse. La figure II.11 présente la dégradation de la résolution verticale du AirCore-HR, en trait plein, et du AirCore-LMD-Light, en trait pointillé, pour différents délais de 3 h (en vert) à une semaine (en noir).

Les courbes en traits pleins présentant la résolution verticale du AirCore-HR permettent d'observer qu'avec un délai de 6 heures (en bleu) avec cet instrument, la résolution reste meilleure que 500 m jusqu'à 20 km. Attendre 12 heures après l'atterrissage réduit la résolution à 20 km à 500 m (courbe verte). L'impact du mélange pour 24 heures est encore augmenté (courbe orange) mais la résolution verticale, que l'on peut obtenir avec le AirCore-HR, reste cependant toujours meilleure que celle qu'on peut espérer avec un AirCore-Light pour un délai de seulement trois heures avant l'analyse (courbe noir pointillé).

La résolution verticale, qui peut être obtenue avec le AirCore-HR pour une semaine de délai (courbe rouge en trait plein), avoisine celle d'un AirCore-Light après seulement 6 heures de délai (courbe bleu en pointillé). Ce constat démontre, en plus de la haute résolution, la plus grande capacité du AirCore-HR à conserver l'échantillon prélevé. Inversement, cela permet de réaliser l'importance de limiter le plus possible le délai avant de procéder à l'analyse des échantillons prélevés avec un AirCore-Light. La récupération rapide des AirCores après le vol est un aspect indispensable pour obtenir des résultats intéressants avec cet instrument. C'est un défi logistique de tous les instants, à chaque vol : pour suivre le vol, estimer



**FIGURE II.11** – Influence du délai entre l'atterrissage et le début de l'analyse sur la résolution verticale des profils de  $\text{CO}_2$  qui peuvent être obtenus avec le AirCore-HR (en trait plein) ou le AirCore-Light (en trait pointillé). La résolution verticale théorique qui peut être attendue est présentée pour un délai de 3 h (en noir), 6 h (en bleu), 12 h (en vert), 24 h (en orange), 1 semaine (en rouge).

la zone atterrissage, accéder aux AirCores et réaliser leur analyse dans un temps limité après la capture d'un échantillon.

## II.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons détaillé les aspects techniques essentiels d'un AirCore. Le principe de fonctionnement d'un AirCore pour collecter continuellement l'air le long d'une colonne atmosphérique a été illustré. Puis, la chaîne d'analyse mise en place pour analyser les échantillons prélevés, valable pour l'ensemble des analyses réalisées sur les AirCores du LMD, a été présentée.

L'étude des différents phénomènes qui génèrent un mélange de l'échantillon nous a permis de montrer que trois phénomènes sont principalement à prendre en compte : (E1) la diffusion moléculaire, (E2) la dispersion de Taylor, et (E3) le mélange au sein de la cellule de mesure. Des mesures en laboratoire de la déformation de créneaux alternant des concentrations de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  différentes ont permis d'observer ces différents phénomènes (pour des mesures directes et des durées de stockage des créneaux dans le AirCore de 22 et 120 h). La comparaison de ces mesures avec une modélisation de ces phénomènes a permis de confirmer la cohérence de la description physique des phénomènes de mélange.

En utilisant la connaissance des phénomènes de mélange, nous avons présenté comment évaluer la résolution verticale théorique qui peut être attendue en fonction de l'altitude où a été prélevé l'air retenu dans l'échantillon. Les caractéristiques détaillées et les motivations techniques à l'origine des configurations retenues pour les différents AirCores développés au laboratoire, le AirCore-HR, le AirCore-Light, ont alors été présentées. Maintenant que nous avons vu de manière précise les aspects techniques du système qu'est un AirCore, nous allons détailler dans le Chapitre suivant comment passer de l'échantillon d'air prélevé à un profil de concentration vertical de gaz trace.

# Chapitre III

## De l'air échantillonné aux profils de concentration

### Sommaire

---

<b>III.1</b>	<b>Introduction . . . . .</b>	<b>43</b>
<b>III.2</b>	<b>Principe général du traitement des données . . . . .</b>	<b>44</b>
III.2.1	Étape 1 - Analyse de l'échantillon . . . . .	44
III.2.2	Étape 2 - L'exploitation des données de l'électronique embarquée . . . . .	45
III.2.3	Étape 3 - Le positionnement vertical de l'échantillon analysé . . . . .	47
<b>III.3</b>	<b>Prise en compte de la "perte de charge" . . . . .</b>	<b>48</b>
III.3.1	Mise en évidence de la perte de charge . . . . .	48
III.3.2	Modélisation de la perte de charge. . . . .	50
III.3.3	Profil final . . . . .	54
<b>III.4</b>	<b>Cas particuliers . . . . .</b>	<b>54</b>
III.4.1	Dysfonctionnement de la vanne de fermeture . . . . .	55
III.4.2	Profil de vol particulier. . . . .	57
<b>III.5</b>	<b>Étude des incertitudes associées . . . . .</b>	<b>58</b>
III.5.1	Méthode de calcul des incertitudes. . . . .	58
III.5.2	Discussion des incertitudes . . . . .	59
<b>III.6</b>	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>61</b>

---

### III.1 Introduction

Lors d'un vol sous ballons stratosphérique, les AirCores permettent d'échantillonner continûment la colonne atmosphérique lors de la descente. Le passage des mesures des rapports de mélange de gaz trace obtenues lors de l'analyse de l'échantillon prélevé à des profils verticaux de ces gaz comporte plusieurs étapes. Dans ce chapitre, nous présenterons les différentes étapes du traitement permettant de passer des concentrations mesurées (dans notre cas avec un analyseur Picarro) à des profils verticaux de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> avec leurs incertitudes associées. Pour illustrer le traitement des données, nous prenons l'exemple d'un profil vertical de CH<sub>4</sub> obtenu avec l'échantillon prélevé par le AirCore-HR lors de son 1<sup>er</sup> vol.

Dans une première partie (section III.2), les étapes clés permettant de positionner verticalement les rapports de mélange de l'échantillon analysé sont détaillées. Le positionnement vertical des profils de gaz trace est alors présenté selon l'approche la plus classique qui consiste à considérer un équilibre instantané entre les paramètres d'environnement (pression et température du AirCore notamment) et le AirCore. Toutefois, nous verrons ensuite (section III.3) que l'hypothèse de l'équilibre instantané de la pression du AirCore avec la pression ambiante n'est pas toujours valide. En effet, un phénomène assimilable à une

“perte de charge”, lié à une variation progressive de la pression dans le AirCore doit être pris en compte. Ensuite, nous présenterons dans une troisième partie (section III.4) qu’au cas par cas, le positionnement vertical devra également être corrigé pour prendre en compte des imprévus dans le fonctionnement des AirCores ou des profils de vol particuliers. Enfin, une fois toutes les étapes de traitements des données détaillées, nous présenterons dans une dernière partie l’incertitude qui peut être associée aux profils (section III.5).

## III.2 Principe général du traitement des données

Les phases importantes du traitement des données sont rassemblées dans les 3 étapes décrites dans cette partie.

### III.2.1 Étape 1 - Analyse de l'échantillon

Avant de commencer le traitement des données pour remonter aux profils verticaux échantillonnés par un AirCore, il est nécessaire d’analyser l’échantillon prélevé pour récupérer les informations sur la variation du rapport de mélange des gaz trace qui nous intéressent. Pour limiter la dégradation de la résolution verticale par la diffusion moléculaire, cette analyse doit être effectuée dans le délai le plus court possible après le vol (cf partie II.4.1).

Une fois la charge utile récupérée, le sécheur est retiré et le AirCore est connecté dans la chaîne de mesure (cf II.2.2). Le AirCore est tout d’abord maintenu fermé aux deux extrémités et l’on fait circuler du mélange basse concentration au travers du bypass. Une fois que les valeurs lues par l’analyseur correspondent aux valeurs attendues pour le gaz de référence, et que l’humidité ayant pu entrer dans les lignes de mesures lors de la connexion est évacuée, l’analyse de l’échantillon prélevé par le AirCore peut démarrer.

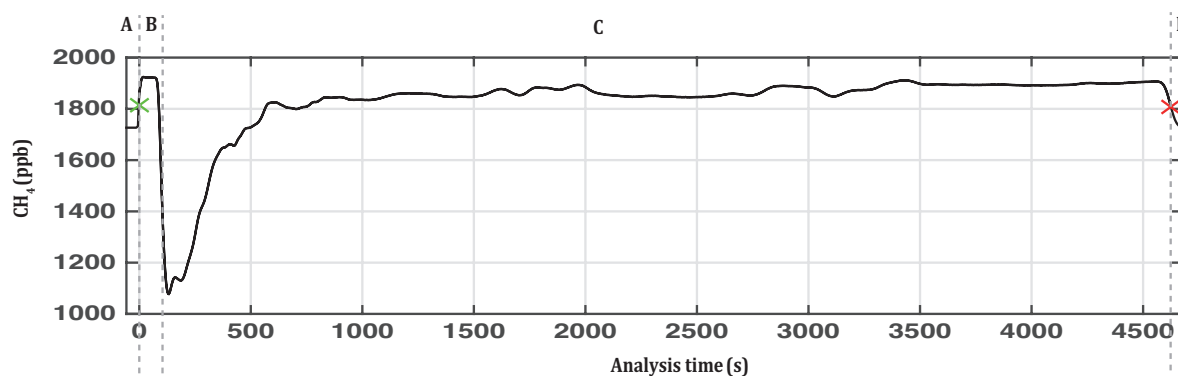
L’échantillon collecté est alors analysé en ouvrant simultanément les deux extrémités du tube. Le circuit du bypass est alors refermé et l’air circule depuis la bouteille contenant le mélange basse concentration, au travers du AirCore, jusqu’à l’analyseur, avant d’être rejeté en sortie de la pompe. L’analyse des AirCores au LMD est systématiquement réalisée en mesurant les rapports de mélange correspondant au haut du profil en premier. De plus, l’orifice à écoulement critique, placé en sortie du Picarro, assure que l’analyse est réalisée à un débit constant d’environ  $42 \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  (à  $20^\circ\text{C}$  et pression atmosphérique).

Après avoir réalisé l’analyse des échantillons, la première étape du traitement des données consiste à corriger les rapports de mélange mesurés par le Picarro par rapport aux échelles étalon du WMO (WMOX2007 pour  $\text{CO}_2$ , NOAA-2004 pour le  $\text{CH}_4$ ). Les rapports de mélange de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  en air sec, automatiquement calculés par le Picarro, sont transposés sur l’échelle du WMO. La correction est effectuée en calculant le biais entre la mesure des gaz de référence au moment de l’analyse et les valeurs du rapport de mélange de ces gaz calibrés sur l’étalon WMO.

La figure III.1 présente la mesure du rapport de mélange de  $\text{CH}_4$  (corrigée sur l’échelle WMO) dans l’échantillon collecté par le AirCore-HR lors de la campagne Strato-Sciences 2014. Sur cette figure, on peut distinguer les différentes phases d’analyse. Elles ont été séparées par des traits horizontaux et notées A, B, C et D.

Au début et à la fin de l’analyse (les phases marquées A et D), un rapport de mélange de  $\text{CH}_4$  de 1720 ppb est observé. Ce rapport de mélange est celui du gaz de référence “basse concentration” qui circule dans la chaîne de mesure lors de l’analyse. On retrouve ce gaz de part et d’autre de l’analyse de l’échantillon contenu dans le AirCore.

Au début de l’analyse, ce gaz de référence “basse concentration” est directement suivi par un gaz dont la valeur apparaît fixe à 1900 ppb (phase B). Il s’agit du gaz de référence “haute concentration” que l’on a utilisé pour remplir le AirCore en phase de préparation. Il reste dans le AirCore, un volume correspondant à la quantité d’air restant, lorsque le vol a atteint l’altitude maximale. Après ce gaz de remplissage, on retrouve l’échantillon d’air prélevé au cours de la descente par le AirCore (phase C) : depuis les concentrations de méthane faible dans la stratosphère, jusqu’aux concentrations plus importantes et plus stables dans la troposphère.



**FIGURE III.1** – Mesures par le Picarro du rapport de mélange  $CH_4$  de l'échantillon prélevé par le AirCore-HR durant le vol "EdS-Stratéole" le 29 Août 2014. Le  $CH_4$  est présenté en fonction de la durée de l'analyse en secondes. Le point marquant le début de l'analyse du contenu du AirCore-HR est indiqué par une croix verte ; le point marquant la fin de l'échantillon contenu dans le AirCore-HR est marqué par une croix rouge.

Afin d'extraire la section correspondant uniquement à l'air échantillonné, il faut identifier dans les données, les points marquant le début et la fin de l'analyse de l'air contenu dans le AirCore.

Le point marquant le milieu de la transition entre le rapport de mélange du gaz de référence "basse concentration" et du gaz de remplissage "haute concentration" restant dans le AirCore représente le début de l'analyse de l'air contenu dans le AirCore. Ce point entre les phases A et B correspond intuitivement au niveau de pression 0 hPa. Il est représenté par une croix verte sur la figure III.1. De manière équivalente, le milieu de la transition entre l'échantillon prélevé et le gaz de référence "basse concentration" marque la fin de l'analyse. Ce point est représenté par une croix rouge sur la figure III.1 entre les phases C et D.

Bien que cette étape du traitement des données paraisse relativement simple, la sélection des points marquant le début et la fin de l'échantillon contenus dans le AirCore est une étape sensible qui influence le positionnement final des rapports de mélange de gaz trace analysés sur un axe vertical (cf section III.5).

### III.2.2 Étape 2 - L'exploitation des données de l'électronique embarquée

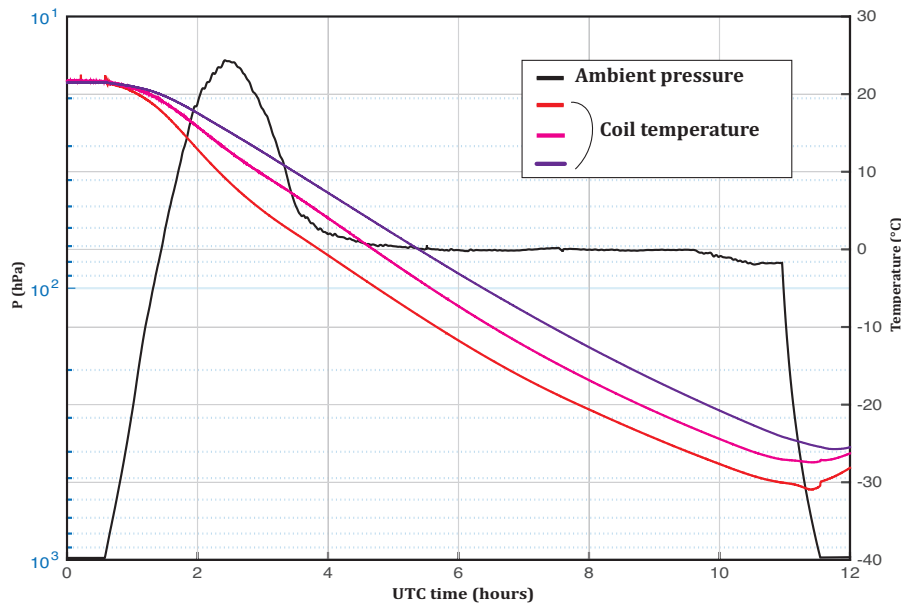
Les informations les plus importantes pour effectuer le positionnement vertical des profils de gaz trace échantillonnés par le AirCore sont : la pression ambiante et la température du AirCore. Un jeu de données précises de ces paramètres est essentiel au traitement des données pour obtenir les profils verticaux.

La deuxième étape consiste à vérifier et harmoniser les données collectées par l'électronique embarquée puis à sélectionner celles qui correspondent à la descente du AirCore, lorsque l'air a été échantillonné.

On commence par récupérer les données enregistrées : les mesures du capteur de pression, les températures relevées par les différentes sondes positionnées autour du AirCore ainsi que les données de positionnement GPS. Ces données sont systématiquement enregistrées par l'électronique en cours de vol en plus d'être parfois transmises en continue vers le sol. Il est nécessaire de vérifier qu'il n'y a pas d'erreur dans l'enregistrement de ces différentes données.

L'harmonisation des données consiste à sélectionner un vecteur temps, qui sera pris comme référence, et à interpoler toutes les données sur ce même vecteur. En effet, les différentes mesures sont effectuées de manière discrète, et enregistrées en fonction du temps UTC, mais avec des pas de temps entre deux mesures variables d'un paramètre à l'autre. L'évolution des différents paramètres d'environnement sera ainsi contenue dans des vecteurs de mêmes dimensions. On pourra ainsi associer entre elles les informations de pression, de température du AirCore, de température ambiante, d'altitude ou encore de positionnement GPS.

La figure III.2 présente ces données de première importance, mesurées lors du vol "EdS-Stratéole" du 29 Août 2014, que nous avons choisi comme exemple : la pression ambiante et les températures, relevées par 3 sondes de température, placées le long du AirCore-HR.



**FIGURE III.2** – Températures du AirCore-HR mesurées par 3 sondes, (traits rose, rouge et violet), présentées en °C et pression ambiante en hPa (ligne noire) en fonction de l'heure UTC le jour du vol. L'axe vertical présentant les valeurs de la pression est placé à gauche. Celui présentant la température est placé à droite.

L'évolution de la pression ambiante (présentée en noir) permet de constater que ce vol a un profil particulier. Il ne s'agit pas d'un profil type constitué d'une montée jusqu'à haute altitude suivi d'une simple descente sous parachute. Ici le vol a duré 12 heures, avec une montée d'environ 1h30 jusqu'au niveau du plafond aux alentours de 15 hPa, suivi d'une descente en deux temps d'environ 1 h, avec, entre les deux, un long plateau de près de 8 h, marqué aux alentours de 70 hPa. Ce profil atypique provient de contraintes scientifiques d'autres instruments embarqués sur la même nacelle, lors de ce vol. Ce vol sera présenté en détail dans la partie IV.2 du chapitre suivant.

En comparant les températures, relevées par les 3 sondes au cours du vol, on peut constater que le AirCore subit un fort refroidissement au fil des heures. La température du AirCore passe d'environ 20°C au départ du vol à près de -30°C, après un vol qui aura duré près de 12 heures. Cette forte diminution de la température peut être reliée au profil du vol. En effet, les instruments sont restés près de 8 h à 80 hPa à une altitude où la température de l'atmosphère est minimale, atteignant près de -60°C.

Par ailleurs, les trois sondes, positionnées à des endroits différents le long du AirCore, relèvent des températures légèrement différentes. Ces différences peuvent atteindre jusqu'à 5°C. Les différences observées sont attendues et s'expliquent naturellement par la distance par rapport à l'entrée du AirCore où sont positionnées les sondes. Le AirCore est isolé dans la boîte de protection et la seule partie exposée aux variations importantes de température extérieure est l'entrée du tube. Ainsi, une sonde placée proche de l'entrée du tube réagit plus rapidement aux changements de température qui ont lieu par cette extrémité, une seconde sonde placée en milieu du AirCore enregistre une variation de température plus progressive, et enfin une dernière sonde placée en bout du AirCore relève une variation de température moins importante. Les mesures traduisent simplement que l'équilibre de température s'établit de manière graduelle le long du AirCore. Dans un système moins bien isolé que le AirCore-HR les températures relevées par les différentes sondes sont plus proches mais les variations de température lors du vols sont plus importantes.

Dans la prochaine étape, pour effectuer le positionnement vertical, nous considérerons, dans l'étape suivante, la température moyenne du AirCore comme étant la moyenne de la température relevée par les 3 sondes à un instant donné. Toutefois, la différence de température relevée entre les différentes sondes sera l'un des éléments utilisés pour évaluer l'incertitude associée aux profils verticaux (cf section III.5).



### III.2.3 Étape 3 - Le positionnement vertical de l'échantillon analysé

La troisième et dernière étape consiste à relier les données préparées lors des deux premières étapes afin d'obtenir les profils verticaux de rapport de mélange.

Pour retrouver le niveau de pression où a été prélevé l'air correspondant à un point de mesure donné, on commence par calculer l'évolution du nombre de moles dans le AirCore lors de la descente. Pour ce faire, on considère que le système s'équilibre instantanément avec la pression ambiante et que l'air capturé s'ajuste très rapidement avec la température moyenne du AirCore. Nous verrons dans la partie III.3 comment affiner le positionnement vertical et prendre en compte qu'en réalité la variation de la pression s'établit progressivement sur toute la longueur du AirCore, en modélisant ce phénomène assimilable à une "perte de charge" dans un AirCore.

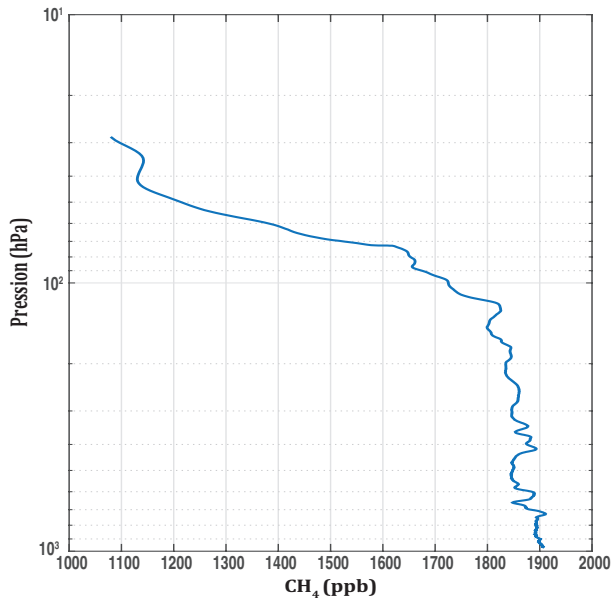
Dans le cas idéal qui sert d'exemple ici, on considère l'équilibre du système avec les paramètres d'environnement. La pression ambiante et la température moyenne du AirCore sont les deux facteurs dont l'évolution conditionne le nombre de moles d'air échantillonnées. En utilisant la loi des gaz parfait on peut écrire :

$$PV = nRT \Leftrightarrow n = \frac{PV}{RT} \quad (\text{III.1})$$

où P est la pression ambiante, V le volume intérieur du AirCore, n le nombre de moles, R la constante universelle des gaz parfaits en  $J.K^{-1}.mol^{-1}$  et T la température moyenne du AirCore.

Bénéficiant des mesures de la série temporelle des pressions ( $P_i$ ) et des températures ( $T_i$ ) lors du vol (Fig. III.2), il est possible de relier le nombre de moles dans le AirCore( $n_i$ ) à la pression atmosphérique à chaque instant durant le vol :

$$n_i = \frac{P_i V}{RT_i} \quad (\text{III.2})$$



**FIGURE III.3** – Profil vertical du rapport de mélange en  $CH_4$ , obtenu après analyse de l'air prélevé par le AirCore-HR lors du vol "Eds-Stratéole" le 29 Août 2014.

Le nombre de moles traversant l'analyseur augmente linéairement avec le temps. Le nombre de moles  $n_i$  à instant donné  $t_i$  de l'analyse peut être exprimé de la manière suivante :

$$n_i = n^{max} \frac{t_i}{\Delta t} \quad (\text{III.4})$$

Ce nombre est maximum lorsque le AirCore retombe à la surface de la Terre, c'est à dire :

$$n^{max} = \frac{P_s V}{RT_s} \quad (\text{III.3})$$

où  $P_s$  et  $T_s$  correspondent à la pression et à la température du AirCore lorsqu'il arrive à la surface.

Avant de pouvoir relier les rapports de mélange mesurés par le Picarro à la pression et l'altitude à laquelle ils correspondent, il faut établir une relation entre le nombre de moles analysées et le rapport de mélange mesuré.

Pour ce faire, on utilise le fait que l'orifice à écoulement critique contrôlant le débit volumique lors de l'analyse et l'environnement contrôlé de la cellule de mesure assurent que le même nombre de moles est analysé à chaque pas de temps. En d'autres termes, durant l'analyse, le nombre

où  $\Delta t$  est la durée totale de l'analyse entre le sommet et le bas du profil qui marque l'échantillon du AirCore.

En utilisant les équations III.2 et III.4, un niveau de pression unique peut être associé à chaque mesure de rapport de mélange du Picarro afin d'établir des profils verticaux.

Dans le cadre de notre exemple, avec les données de  $\text{CH}_4$  du premier vol du AirCore-HR, on obtient alors le profil vertical présenté en Fig III.3.

Les extrémités haute et basse d'un profil échantillonné avec un AirCore sont nécessairement affectées par un certain mélange avec les gaz de référence avec lesquelles ces extrémités de l'échantillon prélevé se retrouve en contact. Les parties de transitions, représentant un mélange entre l'air prélevé et les gaz de référence ne sont pas présentées. Ainsi, pour l'exemple de la Fig. III.3, le haut du profil commence à 27 hPa au lieu de 14 hPa (la pression minimale atteinte lors de ce vol) et le bas du profil commence à 976 hPa au lieu de 983 hPa.

Si l'on trouvait plus important l'analyse de la couche limite atmosphérique, plutôt que celle du sommet du profil, on pourrait inverser le sens d'analyse du AirCore, en commençant par analyser l'air prélevé en dernier, limitant ainsi le mélange avec le bas du profil à un temps très court, mais augmentant la durée du mélange entre l'air prélevé au sommet du profil et le gaz de remplissage. Au LMD, nous faisons le choix de commencer l'analyse des AirCores par le haut du profil, estimant la partie stratosphérique plus importante et plus fragile.

### III.3 Prise en compte de la “perte de charge”

Dans la partie précédente, nous avons supposé un équilibre instantané de la pression dans le AirCore avec la pression ambiante. Or, dans la réalité, une variation progressive de la pression est attendue. Ce phénomène, connu sous le nom de “perte de charge” doit être pris en compte. Dans cette partie nous allons présenter les résultats de mesures réalisés lors du vol du 1<sup>er</sup> AirCore pour mesurer la perte de charge et nous détaillerons l'usage d'un modèle pour calculer le nombre de mole contenu dans le AirCore.

#### III.3.1 Mise en évidence de la perte de charge

La variation de pression qui va se mettre en place entre l'extrémité fermée et l'extrémité ouverte d'un AirCore dépend des caractéristiques individuelles (longueur, diamètre) de chaque AirCore, mais aussi de la vitesse de la variation de la pression à l'entrée. Lors de phase de montée ou de descente rapide, le retard mis par la pression de l'air en bout de tube pour s'équilibrer pourra entraîner un déséquilibre de pression plus important avec la pression de l'air ambiant à l'entrée du tube qui aura varié rapidement. La perte de charge est différente pour chaque AirCore et à chaque nouveau vol. Elle doit donc être modélisée individuellement dans chaque cas.

Afin de déterminer cet effet, un capteur de pression différentielle a été utilisé lors du premier vol du AirCore-HR. Ce capteur a mesuré la différence de pression entre l'extrémité fermée du AirCore-HR et l'air ambiant. La charge utile avait été modifiée comme indiqué Fig. III.4.

A la sortie du AirCore-HR étaient positionnées deux vannes 3 voies successives. La première permettait de diriger la sortie du AirCore soit vers un capteur de pression différentielle, soit vers la seconde vanne 3 voies. La seconde vanne 3 voies permettait de faire circuler l'air de la chaîne de mesure au travers du bypass ou du AirCore. Cette configuration astucieuse permet de diriger la sortie du AirCore-HR vers le capteur de pression différentielle qui sert de bouchon de fermeture au système. Ce capteur mesure alors la différence de pression entre deux arrivées

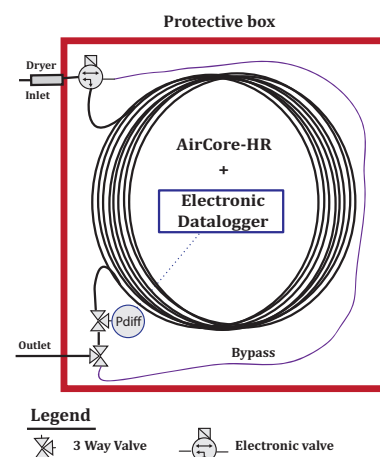
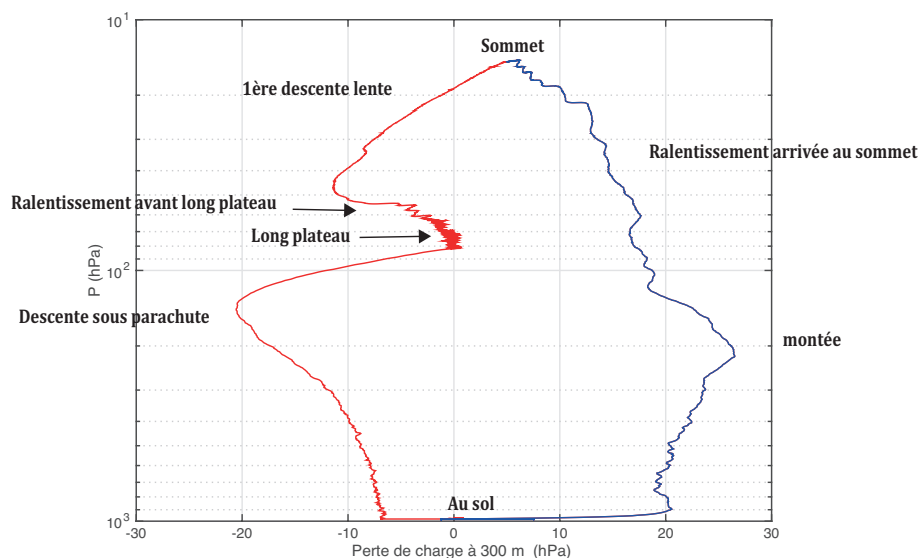


FIGURE III.4 – Schéma du AirCore-HR le 29 Août 2014.

d’air. En l’occurrence, entre l’air à l’extrémité fermée du AirCore et l’air à l’équilibre avec la pression ambiante dans la boîte de protection du AirCore-HR.

La pression différentielle mesurée lors de ce vol est présentée en Fig. III.5 en fonction de la pression ambiante lors du vol. La mesure effectuée lors de la montée est indiquée en bleu et la mesure lors de la descente est indiquée en rouge.

Durant la montée la différence de pression en bout de tube est positive. Cela traduit que la baisse de pression de l’air ambiant à l’entrée est plus rapide que la baisse de pression dans le AirCore. La perte de charge au bout du AirCore peut atteindre jusqu’à 25 hPa et est maximale vers 200 hPa. Ceci correspond à l’endroit où la vitesse d’ascension est maximale. A la pression minimale, aux alentours de 14 hPa, on a toujours au bout du tube une pression supérieure à la pression ambiante d’environ 5 hPa.



**FIGURE III.5** – Pression différentielle mesurée à l’extrémité fermée du AirCore-HR, en fonction de la pression ambiante lors du vol “Eds-Stratéole” le 29 Août 2014. La pression différentielle mesurée lors de la phase de montée est indiquée en bleu, la pression différentielle mesurée lors de la descente est indiquée en rouge.

A la descente, la perte de charge en bout du AirCore-HR est négative. Alors que la pression ambiante à l’entrée augmente rapidement, la pression au bout du tube met un certain temps à s’ajuster. On distingue également deux phases de variations successives de la perte de charge avec au milieu (entre 70 et 80 hPa) une phase d’équilibre où la perte de charge devient nulle. Ces différentes phases sont à mettre en relation avec le profil particulier de ce vol (Fig. III.2). Il faut en effet se rappeler que la descente est composée de deux phases avec entre les deux un long plateau de près de 7 heures entre 70 et 80 hPa. La première phase de variation de la perte de charge entre 14 et 70 hPa correspond à la première phase de descente. Ensuite, durant la phase de long plateau entre 70 et 80 hPa la pression dans le AirCore a le temps de s’équilibrer sur toute la longueur du tube. Ceci se traduit par une perte de charge nulle. La deuxième phase de variation entre 80 hPa et la surface correspond à la descente sous parachute. La perte de charge est maximale peu après le début de la descente vers 140 hPa, où la différence de pression mesurée atteint près de 20 hPa. La perte de charge diminue ensuite progressivement en se rapprochant de la surface. Ceci traduit le fait que la vitesse de chute du AirCore diminue progressivement alors que l’on se rapproche du sol. La portance des parachutes est en effet de plus en plus importante à mesure que la pression ambiante augmente et que l’air se densifie ce qui ralentit la chute de la charge utile.

Cette mesure de pression différentielle donne un aperçu de la perte de charge en bout de tube. Elle illustre bien le fait que l’hypothèse d’équilibre instantané de la pression dans le AirCore avec la pression ambiante doit être reconsidérée. Pour remonter précisément au nombre de moles échantillonnées à chaque

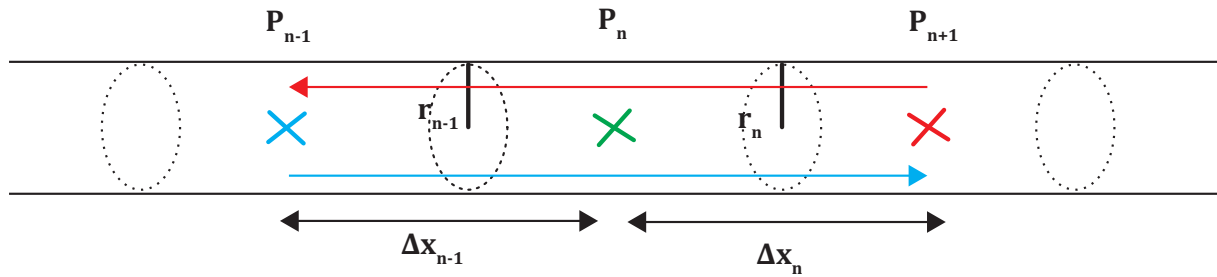
niveau de pression, il est nécessaire de modéliser la variation graduelle de pression entre l'extrémité ouverte et l'extrémité fermée d'un AirCore.

### III.3.2 Modélisation de la perte de charge

#### III.3.2.1 Modèle

L'objectif de la modélisation de la perte de charge est de représenter la variation graduelle de pression qui s'établit progressivement dans le tube lorsque la pression à une extrémité change. Pour modéliser la variation de la pression dans le AirCore, nous avons utilisé un code développé par Pieter Tans de la NOAA/ESRL.

Ce modèle est basé sur un découpage du système en  $n$  éléments de volume fini. Une représentation schématique d'une coupe transversale d'un tube est présentée en Fig. III.6. Chaque élément occupe une longueur de tube  $\Delta x_n$ , dont la section de tube est caractérisée par un rayon  $r_n$ . On définit alors la pression à l'extrémité de chacun des éléments. Ceci revient à définir un vecteur contenant  $n+1$  valeur de pression. L'élément de volume  $n$  étant compris entre la pression  $P_n$  et la pression  $P_{n+1}$ .



**FIGURE III.6** – Représentation schématique d'une coupe transversale de AirCore illustrant le découpage du AirCore en volumes finis servant pour la modélisation.

L'écoulement dans le AirCore est laminaire, avec un profil de vitesse de Poiseuille (cf partie II.3.1). On peut alors utiliser la loi de Poiseuille qui relie la perte de charge au débit dans un conduit cylindrique :

$$Q = \frac{\pi d^4}{128\mu} \frac{\partial P}{\partial x} \iff Q = \frac{\pi r^4}{8\mu} \frac{\partial P}{\partial x} \quad (\text{III.5})$$

où  $Q$  est le débit moyen de l'écoulement dans la conduite  $m^3.s^{-1}$ ,  $\mu$  est le coefficient de viscosité dynamique de l'air en  $Pa.s$  ( $kg.m^{-1}.s^{-1}$ ),  $d$  et  $r$  sont respectivement le diamètre et le rayon du tube en  $m$ ,  $P$  la pression en  $Pa$  ( $kg.m^{-1}.s^{-2}$ ),  $x$  la position en  $m$ .

D'après sa définition, un débit correspond à un volume par unité de temps,  $Q = \frac{\partial V}{\partial t}$ . Or, dans le cas du AirCore, bien que le volume géométrique du tube ne varie pas, on a en revanche une variation de la pression de l'air et de la température qui fait varier le nombre de moles prélevées à chaque instant. Si l'on compare le volume d'air total dans le AirCore à différents niveaux de pression, on observe une variation de volume, assimilable à un débit. En utilisant astucieusement la loi des gaz parfaits, on peut montrer que la variation de volume peut être transposée sous la forme d'une relation entre le volume géométrique et la variation de la pression. On a alors la relation :

$$Q = V \frac{1}{P} \frac{\partial P}{\partial t} \quad (\text{III.6})$$

où  $V$  représente un volume géométrique en  $m^3$ , typiquement donné par la relation  $\Delta x \pi r^2$  dans le cas d'un tube,  $P$  la pression du volume à un instant  $t$  donné, et  $\partial P$  la variation de la pression entre l'instant  $t$  et  $t + \Delta t$ .

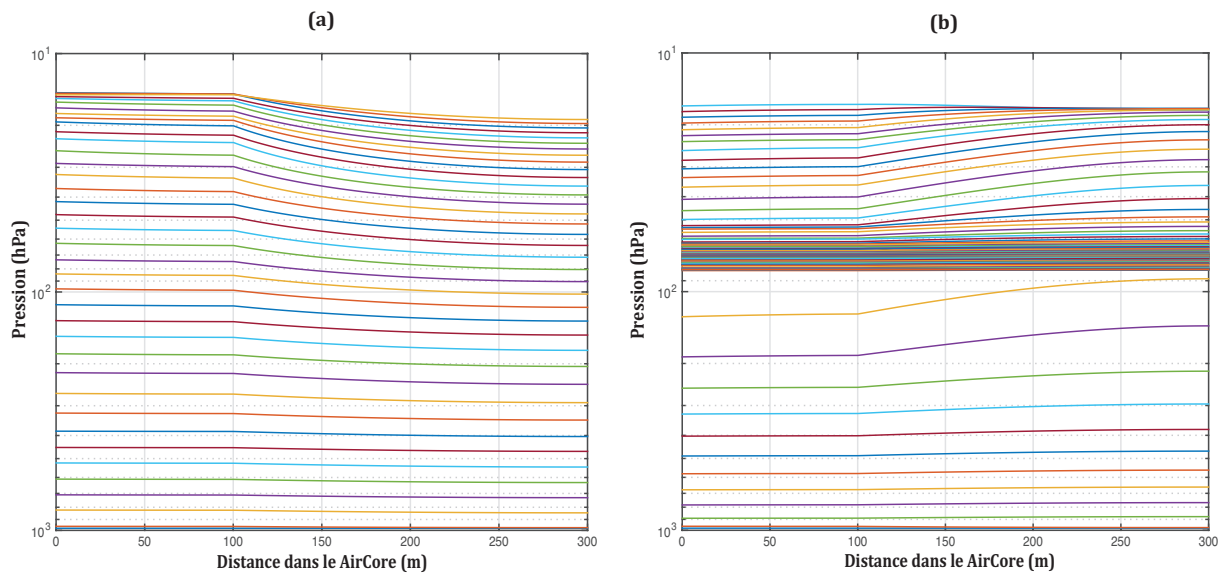
En combinant les relations III.5 et III.6 on peut écrire pour un volume  $n$  donné :

$$V \frac{1}{P} \frac{\partial P}{\partial t} = \frac{\pi r^4}{8\mu} \frac{\partial P}{\partial x} \quad (\text{III.7})$$

À partir de cette relation fondamentale, on peut modéliser la variation de la pression sur toute la longueur d’un AirCore, en fonction de l’évolution de la pression ambiante à l’entrée du tube, en calculant la pression  $P_n^{t_{i+1}}$  à  $t_{i+1}$  de l’ensemble des points de pression du vecteur  $P_n$ . En équilibrant les flux entrants et sortants à l’endroit où est définie la pression  $P_n$ , on retrouve une relation entre la variation de pression et le volume entré ou sorti du tube.

Lorsque la pression à l’extrémité ouverte du AirCore diminue, un débit sortant se met en place. À l’inverse, lorsque la pression à l’entrée du tube augmente, un débit entrant se met en place. Ces débits vont permettre de vider ou de remplir naturellement le AirCore. Le modèle traduit comment cette variation de pression à l’entrée se transmet progressivement dans le système.

Ainsi, la figure III.7 présente l’évolution de la variation de la pression dans le AirCore-HR, lors du vol “Eds-Stratéole” du 29 août 2014. La figure III.7 (a) présente l’évolution de la perte de charge à la montée. La figure III.7 (b) présente l’évolution de la perte de charge à la descente. Les différentes couleurs présentent la perte de charge à différents niveaux de pression atteints pour des pas de temps de vol régulier lors de la montée ou de la descente. La perte de charge est représentée sur toute la longueur du AirCore-HR.



**FIGURE III.7** – Évolution de la perte de charge en fonction de la distance dans le AirCore-HR lors du vol “EdS-Stratéole” du 29 Août 2014. (a) Évolution de la perte de charge à la montée; (b) Évolution de la variation de la perte de charge à la descente.

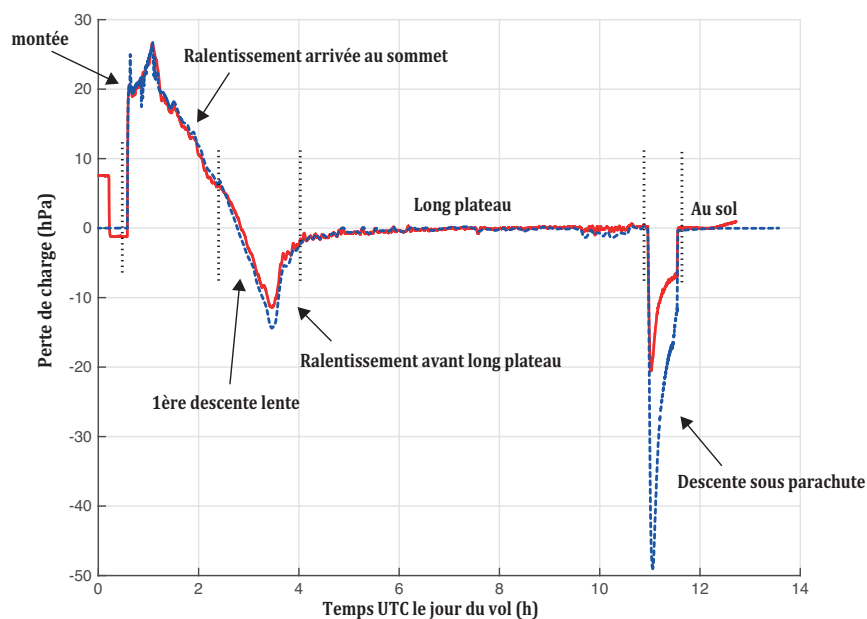
Sur les deux figures, des cassures dans la perte de charge sont visibles à 100 m. Ceci est propre à la configuration du AirCore-HR qui combine un tube de 100 m de diamètre 1/4 de pouces et un tube de 200 m de diamètre 1/8 de pouces. En effet, le débit varie en fonction du rayon du tube dans la loi de Poiseuille (équation III.5). On retrouve donc une perte de charge différente dans des tubes de diamètre différent.

La figure III.7 (a) doit être lue de bas en haut pour suivre l’évolution de la pression dans le tube dans le sens de la montée. Après un départ aux alentours de 980 hPa dans un état d’équilibre initial, la pression au bout du AirCore est plus importante que la pression à l’entrée. La perte de charge relative au niveau de pression à l’entrée est maximale en arrivant au plafond à 14 hPa. La pression au bout du tube n’est supérieure que de 5 hPa à la pression ambiante de l’air. À ce niveau cela représente une différence relative de +30%. On retrouve cette mesure au sommet du vol en figure III.5.

A l'inverse, la figure III.7 (b) doit être lue de haut en bas pour suivre l'évolution de la pression dans le tube dans le sens de la descente. Un retour rapide à un état d'équilibre est observé, avant que le déséquilibre de pression ne s'inverse. La pression à l'extrémité fermée du AirCore-HR est plus faible. Le débit entrant met un certain temps avant d'équilibrer la pression. Sur cette figure III.7 (b), on retrouve bien les différentes phases de descente du vol à la descente. En partant du sommet, on a une première phase de descente lors de laquelle une perte de charge s'établit dans le AirCore, avant d'avoir une phase entre 70 et 80 hPa où l'on retrouve un état d'équilibre. On constate que cette phase est longue, car les traits qui représentent des pas de temps réguliers lors de la descente se multiplient à ce niveau. La pression ambiante à l'entrée durant cette phase de plateau de 8 heures (Fig. III.2) varie peu et lentement ce qui laisse le temps à la pression de s'équilibrer sur toute la longueur du AirCore-HR. Dans la deuxième phase de descente, la perte de charge est très prononcée au départ avant de diminuer progressivement. Cela dénote à nouveau la vitesse de chute lors de la descente sous parachute qui diminue progressivement alors que la pression ambiante augmente.

### III.3.2.2 Validation du modèle

La comparaison de la perte de charge mesurée à 300 m avec la perte de charge modélisée à 300 m en fonction du temps de vol est représentée en figure III.8. La différence de pression mesurée durant le vol est présentée en rouge. C'est la même information qu'en Fig. III.5, présentée cette fois-ci en fonction du temps de vol. La différence entre la perte de charge modélisée à 300 m et la pression ambiante à l'entrée du tube est présentée en bleu pointillé.



**FIGURE III.8** – Évolution de la perte de charge à 300 m dans le AirCore-HR lors du vol “EdS-Stratéole” en fonction du temps. La valeur mesurée est indiquée en rouge. La valeur modélisée est indiquée en bleu pointillé.

En suivant l'évolution de la perte de charge à 300 m en fonction du temps (Fig. III.8), on retrouve les différentes phases de vol.

Au départ, dans la première demi-heure, la perte de charge modélisée est nulle. En effet, le AirCore-HR n'a pas encore décollé et la pression ambiante ne varie pas. On observe toutefois une variation de la perte de charge mesurée. Une suppression de quelques hPa est visible au départ, elle correspond au fait que le AirCore-HR est fermé aux deux extrémités (rempli de gaz de remplissage) et qu'il s'est légèrement réchauffé

par rapport à l’instant où il a été rempli. Le gaz s’est donc dilaté entraînant une légère surpression. Juste avant le décollage, l’extrémité servant d’entrée est ouverte. La surpression disparaît et un état d’équilibre avec l’air ambiant s’établit.

Dès le décollage, on observe une perte de charge. La pression de l’air ambiant diminue plus vite que la pression à 300 m dans le AirCore. On voit que le modèle et la mesure s’accorde parfaitement. La perte de charge atteint un maximum de + 25 hPa durant la montée avant de diminuer progressivement (mais en restant positive) jusqu’à atteindre le sommet vers 2h30.

Lors de la première phase de descente, entre 2h30 et 4h, la perte de charge s’inverse, on observe une perte de charge négative qui se met en place. Ceci traduit le fait que la pression ambiante augmente plus rapidement que la pression ne s’équilibre à 300 m au bout du AirCore-HR.

Ensuite, de 4h à environ 10h30, on observe un équilibre entre la pression sur toute la longueur du AirCore et la pression ambiante. Cette longue phase correspond au long plateau de 7h30, marqué à la descente, entre 70 et 80 hPa. L’accord entre le modèle et la mesure est excellent durant cette phase.

Enfin entre 10h30 et 11h30, on observe la deuxième phase de descente. C’est une phase de descente rapide sous parachute. On observe que le modèle présente une perte de charge plus importante que celle mesurée par le capteur de pression différentielle. Nous suspectons, qu’après le long plateau, la mesure de pression différentielle ait été biaisée sous l’influence du refroidissement important de la charge utile. En effet, le capteur de pression différentielle va avoir du mal à mesurer des valeurs extrêmes lorsqu’il est à très faible température. Par ailleurs, nous avons remarqué à l’analyse des données des fuites très mineures à l’extrémité fermée du AirCore-HR, liées à la contraction d’un tube en plastique servant de connexion entre la vanne 3 voies et le capteur de pression différentielle. Ces très faibles intrusions d’air ont pu réduire l’écart entre la pression au bout du AirCore et la pression ambiante.

L’accord entre le modèle et la mesure est par ailleurs excellent sur le reste du vol. Nous considérons donc que la perte de charge donnée par le modèle est correcte et utiliserons les résultats du modèle pour évaluer la perte de charge sur l’ensemble du AirCore.

### III.3.2.3 Calcul du nombre de moles

A partir du vecteur de pression que l’on modélise à chaque instant (Fig. III.7 (a) et (b)), on peut calculer le nombre de moles d’air effectivement présentes dans le AirCore à chaque instant. Il suffit en effet d’utiliser la loi des gaz parfaits et d’additionner le nombre de moles dans chacun des  $n$  éléments de volume que l’on a considéré.

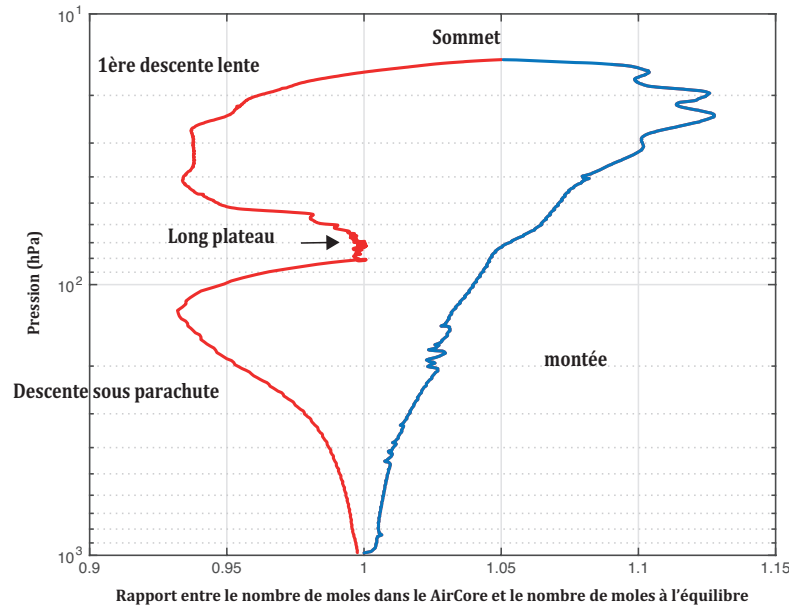
On a alors à l’instant  $t_i$  :

$$n_{mole}^i = \sum_{n=1}^N \Delta x_n \pi r_n^2 \frac{(P_n^i + P_{n+1}^i)}{2} \frac{1}{RT^i} \quad (\text{III.8})$$

où  $N$  représente le nombre de mailles spatiales,  $\frac{(P_n^i + P_{n+1}^i)}{2}$  la pression moyenne dans l’élément de volume  $n$  en Pa,  $R$  la constante des gaz parfait ( $8.314 \text{ J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ),  $T^i$  la température du AirCore à l’instant  $t_i$ .

La figure III.9 présente le rapport entre le nombre de moles effectivement dans le AirCore en prenant en compte la perte de charge et le nombre de moles dans le AirCore si on considère un état d’équilibre avec la pression ambiante. Ce rapport est présenté en bleu durant la phase de montée et en rouge durant la phase de descente. Lorsqu’il y a un état d’équilibre ce rapport vaut 1.

Lors de la montée, la perte de charge positive (Fig. III.7) entraîne un nombre de moles légèrement supérieur dans le AirCore par rapport à un état d’équilibre complet avec la pression ambiante (Fig. III.9). A la descente, c’est l’inverse, on voit que la perte de charge négative (Fig. III.7), entraîne un rapport légèrement inférieur à 1 (Fig. III.9). Le nombre de moles dans le AirCore est alors légèrement plus faible par rapport à un état d’équilibre avec la pression ambiante. En suivant l’évolution du rapport à la descente (en rouge), on retrouve à nouveau les trois différentes phases de descente de ce vol particulier. Une première phase de descente où la perte de charge entraîne un déséquilibre du nombre de moles réellement prélevées. Un équilibre entre le nombre de moles prélevées en considérant ou non la perte de charge lors de la phase de plateau entre 70 et 80 hPa. En effet, durant cette phase la perte de charge



**FIGURE III.9** – Évolution du rapport entre le nombre de moles effectivement dans le AirCore en prenant en compte la perte de charge et le nombre de moles dans le AirCore si on considère un état d'équilibre avec la pression ambiante. Ce rapport est présenté en bleu durant la phase de montée et en rouge durant la phase de descente.

devient nulle (Fig. III.8). Enfin, on observe à nouveau un déséquilibre du rapport lors de la deuxième descente sous parachute.

### III.3.3 Profil final

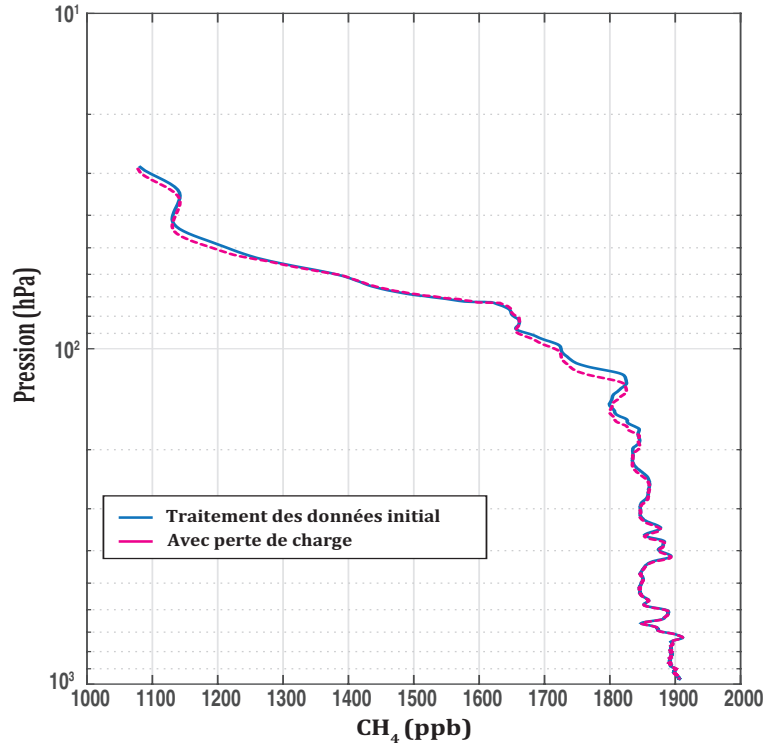
La connaissance de la variation de la pression dans le tube permet d'évaluer le nombre de moles réellement échantillonnées à chaque niveau de pression. Ceci permet d'affiner le positionnement vertical des rapports de mélange de gaz trace. En utilisant le nouveau vecteur d'évolution du nombre de moles dans le AirCore, donné par la relation III.8, on calcule un nouveau positionnement vertical présenté dans la figure III.10.

Le profil de  $\text{CH}_4$  prenant en compte la perte de charge est présenté en rose pointillé. Le positionnement du profil est maintenant décalé par rapport au profil présenté en Fig. III.3 qui est lui toujours tracé en bleu. La perte de charge à la descente est négative (Fig. III.7 (b)), ce qui induit un nombre de moles prélevées légèrement inférieur à ce qui serait prélevé dans un état d'équilibre (Fig. III.9). On peut observer que la correction du positionnement vertical va descendre certaines parties du profil à une pression plus importante. Ceci est cohérent avec le fait qu'en considérant la perte de charge on prélève un nombre de moles moins important à certains niveaux de pression. On attribue donc plus rapidement un niveau de pression plus important au même rapport de mélange analysé à débit constant avec le Picarro.

## III.4 Cas particuliers

Nous venons de voir que la prise en compte de la perte de charge permet d'améliorer le positionnement vertical. Toutefois, dans certains cas particuliers, d'autres aspects qui peuvent avoir un impact plus ou moins important sur le positionnement vertical doivent être pris en compte.





**FIGURE III.10** – Amélioration du positionnement vertical en considérant la perte de charge dans le AirCore-HR. Le profil en bleu est identique au profil présenté en Fig.III.3. Le profil présenté en rose pointillé correspond au nouveau positionnement prenant en compte la perte de charge.

### III.4.1 Dysfonctionnement de la vanne de fermeture

Une correction de positionnement relativement importante est à entreprendre en cas de dysfonctionnement de la vanne de fermeture censée conserver l'échantillon.

L'évolution des températures du AirCore du décollage jusqu'au temps d'analyse est présentée dans la figure III.11. La charge utile atterrit peu avant 12 heures. Puis, un réchauffement rapide et prononcé de la température est relevé par les 3 sondes entre 12 heures et 18 heures. La température moyenne du AirCore passe d'environ  $-25^{\circ}\text{C}$  à  $+20^{\circ}\text{C}$ .

Si le AirCore reste fermé entre l'atterrissage et l'analyse, le réchauffement subit va entraîner une surpression à l'intérieur du tube car l'air se dilate mais est maintenu dans un volume fixe. La variation de la pression, en suivant simplement la loi des gaz parfaits, dans un volume fixe avec un nombre de moles qui ne varie plus, sera égale à :

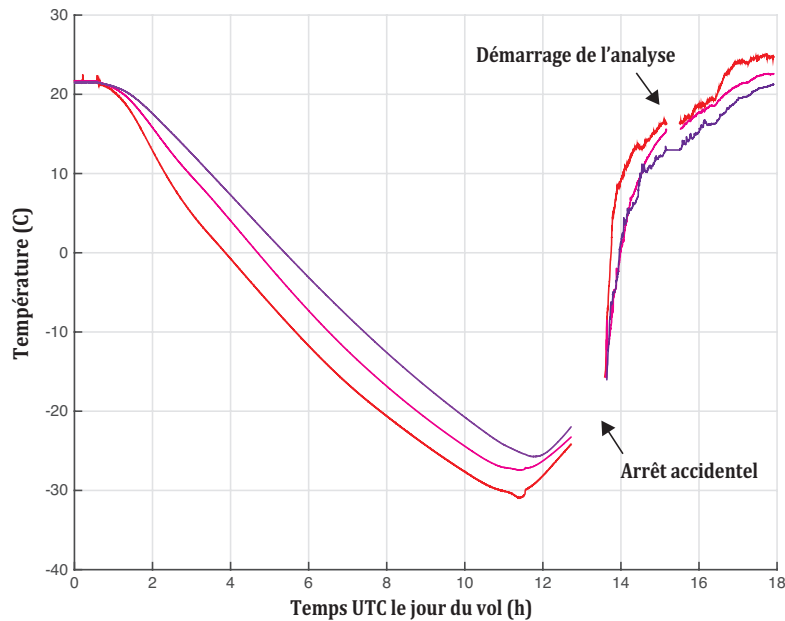
$$P_{\text{rechauffement}} = P_{\text{atterrissage}} \frac{T_{\text{rechauffement}}}{T_{\text{atterrissage}}} \quad (\text{III.9})$$

où les pressions sont en Pa, et les températures en K.

Si le AirCore n'est pas fermé (dysfonctionnement de la vanne), de l'air s'en échappera par l'extrémité ouverte et on perd progressivement le bas de la colonne d'air échantillonné au fur et à mesure que l'air se réchauffe. En suivant simplement la loi des gaz parfaits, dans un volume et à une pression fixe, il restera un nombre de moles dans le AirCore équivalent à :

$$n_{\text{restant}} = n_{\text{atterrissage}} \frac{T_{\text{atterrissage}}}{T_{\text{rechauffement}}} \quad (\text{III.10})$$

où les nombre de moles  $n$  sont donnés en moles, et les températures en K.



**FIGURE III.11** – Évolution de la température des trois sondes de température positionnées le long du AirCore en fonction du temps du vol.

Ce fut malheureusement le cas lors du premier vol du AirCore-HR. En effet, on observe deux interruptions dans l'enregistrement des données de température Fig. III.11. La première correspond à une déconnexion accidentelle de l'alimentation de l'électronique à l'atterrissage. La seconde correspond à une déconnexion intentionnelle de l'électronique pour démarrer l'analyse du AirCore qui débute vers 15 heures.

La déconnexion accidentelle a eu lieu lors de l'atterrissage de la charge utile dans la forêt. Le câble d'alimentation de la batterie à l'électronique s'est retrouvé arraché ce qui a eu pour effet de maintenir le AirCore-HR ouvert jusqu'à ce qu'il nous parvienne vers 13h30. Dans le laps de temps entre 12h00 et 13h30, sa température s'est réchauffée de  $-25^{\circ}\text{C}$  à  $-15^{\circ}\text{C}$ . Ceci a entraîné une perte d'une fraction de l'échantillon.

Il faut corriger le positionnement vertical de l'échantillon, en considérant que le nombre de moles totales prélevées correspond à  $n_{restant}$ . La pression maximale que l'on trouvera en bas du profil correspondra au niveau de pression où a été prélevé cette quantité de moles  $n_{restant}$ . Toute la suite du profil est alors perdue.

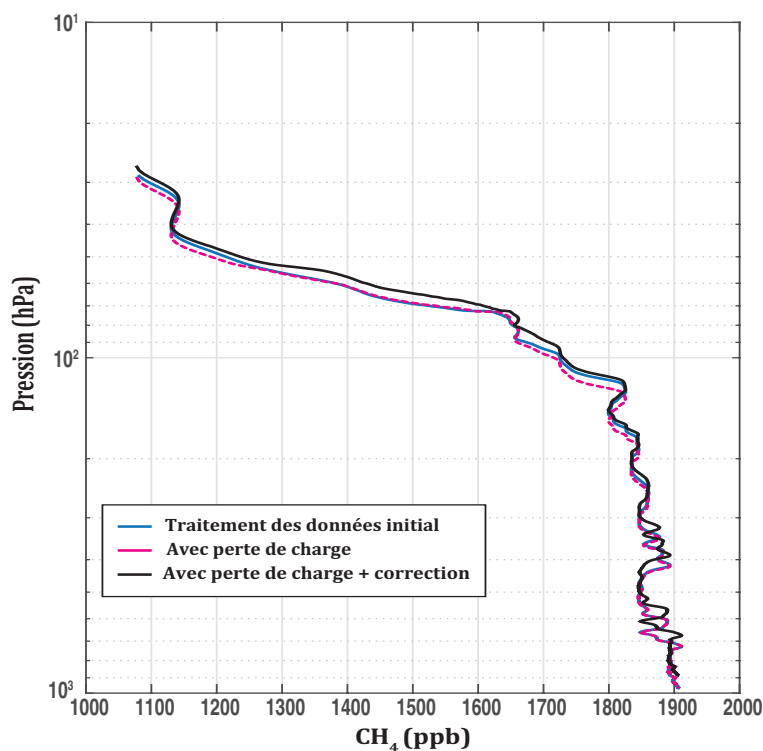
Dans le cas du vol "EdS-Stratéole", cela revient à corriger le positionnement vertical des profils prélevés avec le AirCore-HR de près de 80 hPa en bas du profil. C'est une correction importante qui décale beaucoup la partie basse du profil mais a également des répercussions sur l'ensemble du profil. En effet, la relation III.4 devient :

$$n_i = n_{restant} \frac{t_i}{\Delta t} \quad (\text{III.11})$$

Le nombre maximum de moles prélevées restant dans le AirCore  $n_{max}$  est égal à  $n_{restant}$ .

Sur la figure III.12, on peut voir le nouveau positionnement vertical du profil de  $\text{CH}_4$  tracé en noir en considérant cette correction additionnelle en plus de la perte de charge. Les profils de  $\text{CH}_4$  positionnés lors des deux précédentes étapes sont toujours affichés en bleu lorsqu'on considère un état d'équilibre avec la pression ambiante et en rose pointillé lorsque l'on corrige le positionnement en prenant en compte la perte de charge.

On y voit l'impact cumulé des différentes améliorations de positionnement successives. Les corrections



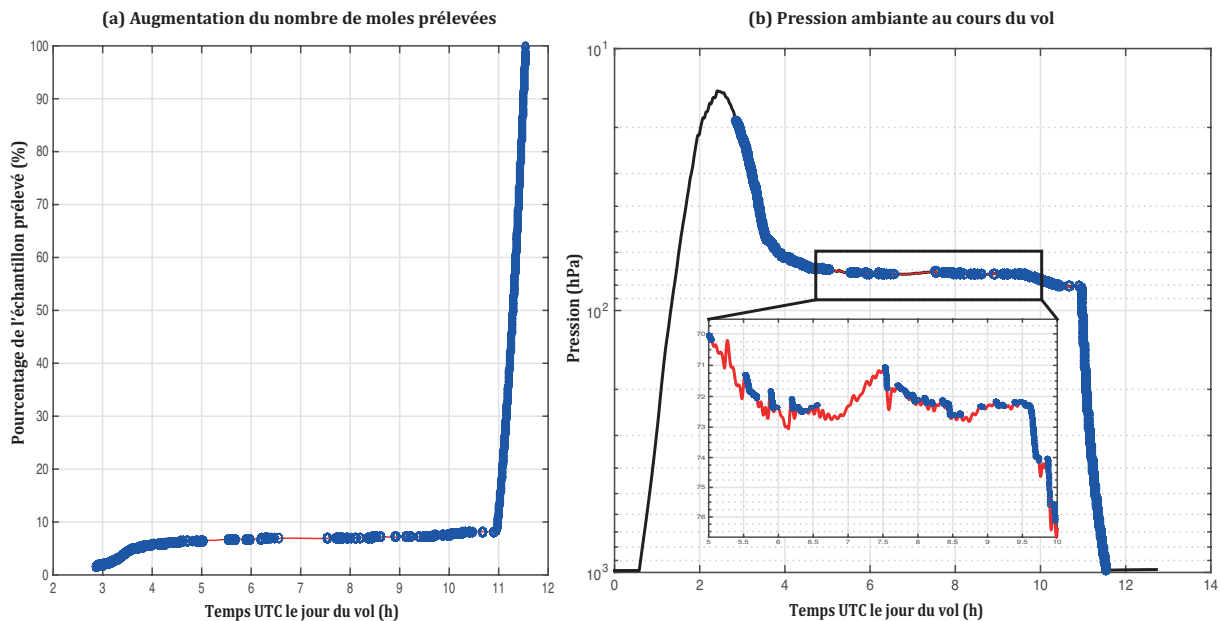
**FIGURE III.12** – Profil final de  $\text{CH}_4$  prenant en compte l'ensemble des améliorations de positionnement (noir). Le profil initial obtenu en considérant un état d'équilibre avec l'air ambiant est toujours affiché en bleu. Le profil prenant en compte uniquement une correction pour la perte de charge est présenté en rose pointillé.

liées au dysfonctionnement de la vanne sont importantes pour le bas du profil (près de 80 hPa) et ont un impact plus restreint sur le haut du profil (de l'ordre de 3 hPa dans la stratosphère). Le positionnement qui découle de cette correction sera considéré comme le positionnement final.

### III.4.2 Profil de vol particulier

Une correction plus anecdotique peut être à effectuer en raison d'un profil de vol particulier. L'exemple du vol de 2014 avec une descente en deux temps et un long plateau en est un bon exemple. Au-delà des effets de la variation de la perte de charge qui est marquée par deux temps successifs entrecoupés par un état d'équilibre (Fig. III.5), on doit prendre en compte de légères oscillations de la pression entre 70 et 80 hPa lors de la phase de plateau. La pression n'est pas stable durant ce long plateau mais on observe de légères phases de montée et de descente sur quelques hPa. Ceci a pour effet de vider très légèrement puis de remplir à nouveau très légèrement l'AirCore rendant nécessaire de détailler à quels instants on prélève réellement de l'échantillon et d'éliminer les instants où de l'air est rejeté.

La figure III.13 (a) présente l'évolution du pourcentage de l'échantillon prélevé en fonction du temps de vol. La figure III.13 (b) présente l'évolution de la pression ambiante en fonction du temps de vol. Les instants où le nombre de moles augmente sont marqués par des cercles bleus sur les deux figures. On voit apparaître sur la figure III.13 (a) qu'entre la 5<sup>ème</sup> et la 10<sup>ème</sup> heure de vol, l'évolution de nombre de moles prélevées est très faible. Toutefois, cette évolution est marquée par des phases de perte d'échantillon, où le nombre de moles diminue légèrement. Ceci est visible par l'absence de cercles bleus. Lorsque l'on regarde en détail sur la figure III.13 (b), on voit apparaître dans le zoom sur la pression entre 5 et 10 heures que ces phases correspondent généralement à de légères remontées de la pression ambiante, mais parfois de l'échantillon peut être prélevé en remontant à un niveau de pression plus bas alors que la température



**FIGURE III.13** – Influence d'un profil de vol particulier sur l'évolution du nombre de moles prélevées par un AirCore. (a) Évolution du pourcentage de l'échantillon prélevé en fonction du temps de vol avec des cercles bleus lorsque l'on prélève de l'échantillon ; (b) Pression ambiante en fonction du temps de vol en noir. Pression ambiante à la descente en rouge avec des cercles bleus lorsque l'on prélève de l'échantillon.

du AirCore s'est refroidie. En sélectionnant uniquement les instants où le nombre de moles augmente, on obtient un vecteur représentant l'évolution croissante du nombre de moles, éliminant les phases où l'on perd de l'échantillon.

On remarque toutefois en observant la figure III.13 (a) que durant cette phase entre 70 et 80 hPa on prélève finalement moins de 1% de l'échantillon. Ces corrections, très faibles, sont à prendre en compte uniquement dans le cas de profils de vol particulier. Dans un cas normal, on aurait une évolution constante du nombre de moles avec l'augmentation de la pression. Ces corrections ont déjà été prises en compte sur la figure III.12 dans le profil final présenté en noir.

## III.5 Étude des incertitudes associées

### III.5.1 Méthode de calcul des incertitudes

Nous venons de voir que le positionnement vertical des profils nécessite plusieurs étapes. Au fil de ces étapes, différentes hypothèses peuvent influencer le positionnement vertical final qui sera obtenu. On perçoit en effet que des incertitudes sont à considérer à la fois dans les mesures instrumentales, mais également vis à vis des choix faits par l'utilisateur pour le traitement des données.

Afin d'évaluer les incertitudes à associer aux profils de concentration, nous avons utilisé la méthode Monte-Carlo qui vise à calculer une valeur numérique approchée en utilisant des procédés aléatoires. Plus concrètement dans notre cas, nous avons itéré plusieurs fois le traitement des données en faisant varier aléatoirement les différentes mesures et les choix de l'utilisateur dans leurs plages d'incertitudes respectives.

Nous avons pris en compte les sources d'incertitudes suivantes :

- (i) La précision de l'analyseur : la précision des mesures du Picarro a été définie comme une distribution de probabilité gaussienne du rapport de mélange autour de la mesure corrigée sur l'échelle WMO à partir des spécifications de l'instrument qui ont pu être retrouvées en laboratoire. (i.e une déviation de 0.5 ppb pour CH<sub>4</sub> et de 0.07 ppm pour le CO<sub>2</sub> (Crosson, 2008))

- (ii) le profil de température moyen : afin de prendre en compte la variabilité de la mesure de température, le profil de température a été choisi aléatoirement entre les mesures réalisées par les 3 sondes des températures.
- (iii) le profil de pression : une incertitude correspondant à la précision du capteur de pression a été utilisée. (entre 0.1 Pa si des mesures avec un capteur Paroscientific. Inc.© étaient disponibles à  $\sim 10$  Pa avec d'autres capteurs de pression (Honeywell.©)).
- (iv) la sélection de l'échantillon : le choix du point exact des points marquant le début et la fin de l'air contenu dans le AirCore a un impact sur l'altitude et le positionnement vertical des extrémités du profil. Ainsi, une incertitude aléatoire de  $\pm 1$  point de mesure du Picarro a été définie à chaque extrémité du profil.
- (v) la correction du positionnement liée à la perte potentielle d'une partie de l'échantillon dans les cas où le AirCore est maintenu ouvert après atterrissage : une incertitude de  $\pm 1^\circ\text{C}$  à  $5^\circ\text{C}$  dans la température de réchauffement du AirCore à l'instant où il sera manuellement fermé a été considérée suivant les cas. Cela correspond typiquement à une incertitude de 5 à 20 hPa associée à la correction du positionnement du bas du profil.

Ainsi, le traitement des données pour obtenir les profils verticaux a été répété 1000 fois permettant de produire un jeu de 1000 profils légèrement différents à la fois en terme de concentration et en terme de positionnement vertical. L'incertitude des rapports de mélange à une position verticale donnée peut alors être calculée à partir de ce jeu de profils. Cette incertitude permet de traduire l'ensemble des incertitudes liées à l'analyse et au traitement de données.

### III.5.2 Discussion des incertitudes

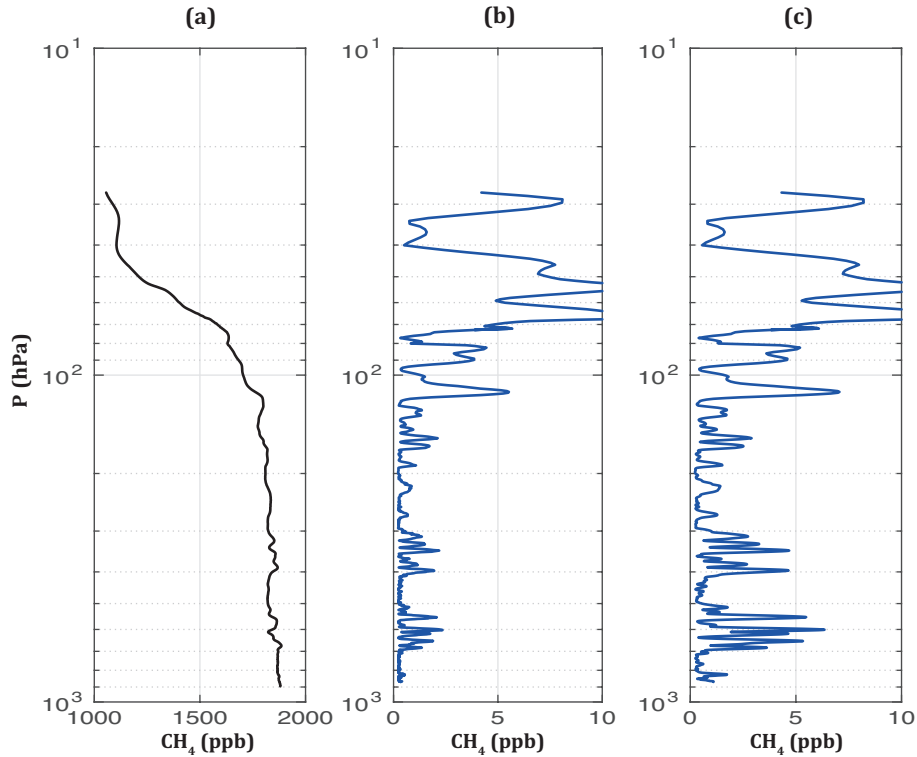
Nous continuons avec l'exemple du profil de  $\text{CH}_4$  du AirCore-HR du 29 Août 2014 pour calculer les incertitudes qui y sont associées. Dans ce cas, les incertitudes sont à calculer pour les 5 sources d'incertitudes différentes identifiées (cf partie III.5.1) car nous avons effectivement eu à corriger le positionnement du bas du profil (cf partie III.4). Toutefois, pour pouvoir discuter également des incertitudes dans un cas idéalisé où la vanne de fermeture aurait fonctionné nous avons choisi de présenter également les incertitudes totales calculées sans prendre en compte l'incertitude liée à la correction du positionnement du bas du profil.

Ainsi, les incertitudes résultantes qui peuvent être associées au profil de  $\text{CH}_4$  sont présentées en Fig. III.14. La figure III.14 (a) présente un rappel du profil vertical final du  $\text{CH}_4$ . La figure III.14 (b) présente les incertitudes dans le cas idéalisé du fonctionnement normal (en prenant en compte uniquement les sources d'incertitudes (i-iv)). Enfin, la figure III.14 (c) montre les incertitudes totales qui peuvent être associées au profil vertical de  $\text{CH}_4$  de ce vol en prenant en compte toutes les incertitudes précédemment listées.

Les incertitudes sont fortement liées aux différentes structures verticales que l'on observe dans le profil Fig. III.14 (a). En effet, le fort gradient du  $\text{CH}_4$  dans la stratosphère implique par exemple que la moindre variation du positionnement vertical dans cette partie du profil fait augmenter l'erreur sur le rapport de mélange que l'on retrouve à ces niveaux. En descendant vers le bas du profil, on note que c'est là où de fortes structures verticales de quelques dizaines de ppb sont marquées que les incertitudes sont les plus fortes.

Finalement, l'incertitude moyenne sur le profil de  $\text{CH}_4$  (Fig. III.14 (c)) est de 2.78 ppb. Dans la stratosphère, au-dessus de 160 hPa, les incertitudes sur  $\text{CH}_4$  sont plus importantes, et peuvent dépasser 10 ppb par endroit, elles sont en moyenne de 6.78 ppb dans cette portion. Dans la troposphère, l'incertitude moyenne sur le profil de  $\text{CH}_4$  est inférieure à 2 ppb avec parfois des valeurs dépassant les 5 ppb lorsque des structures de transport vertical avec des variations de 30 ppb ou plus sont retrouvées dans la troposphère (Fig. III.14 (a)).

Dans le cas idéalisé où la vanne de fermeture retenant l'échantillon aurait fonctionné (Fig. Fig. III.14 (b)), l'incertitude moyenne sur le profil ne serait plus que de 1.48 ppb. La contribution de l'incertitude liée à la correction du positionnement du bas du profil à l'erreur totale est donc importante. Dans le cas d'un fonctionnement normal du AirCore on peut espérer une meilleure précision sur le positionnement vertical du profil.



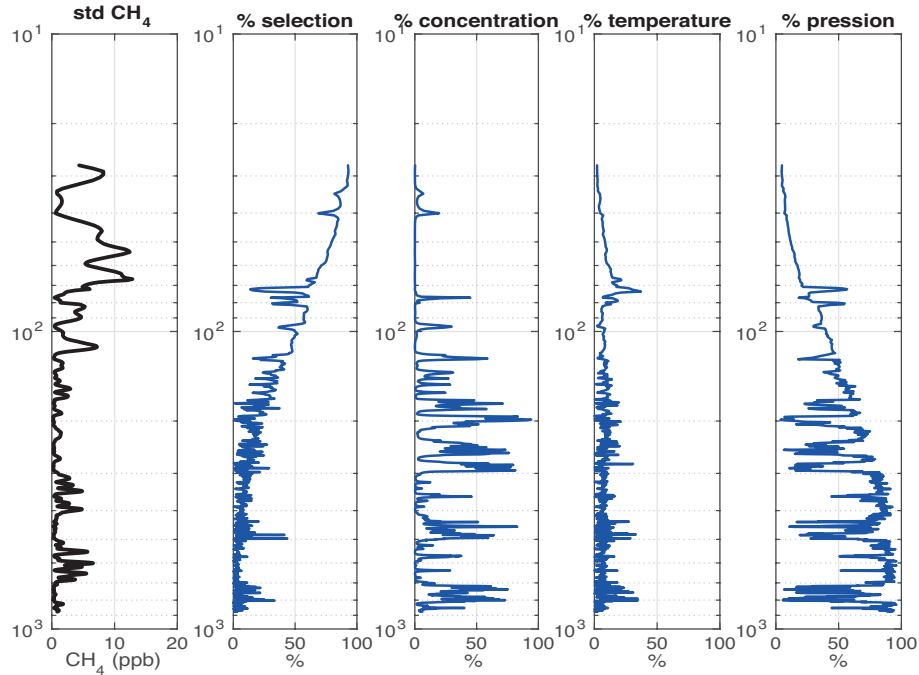
**FIGURE III.14** – (a) profil vertical de  $\text{CH}_4$  obtenu avec les mesures de l'air échantillonné par le AirCore-HR le 29 août 2014, (b) incertitudes associées au profil de  $\text{CH}_4$  dans un cas idéalisé sans prendre en compte la perte potentielle d'échantillon en bas du profil, (c) incertitudes totales associées au profil de  $\text{CH}_4$  en prenant en compte toutes les sources d'incertitudes identifiées.

Pour évaluer plus précisément la contribution des différentes sources d'incertitudes à l'incertitude totale, nous les avons toutes prises en compte séparément. Ainsi la fraction de l'incertitude totale qui peut être reliée aux différentes sources d'incertitudes est présentée en figure III.15.

La figure III.15 (a) rappelle l'incertitude totale associée au profil de  $\text{CH}_4$  (c'est l'équivalent de la figure III.14 (c)). Ensuite, les figures III.15 (b,c,d et e) présentent le pourcentage de l'erreur totale liée aux différentes sources d'incertitudes (cf partie III.5.1). On observe donc en Fig. III.15 (b) l'influence de la sélection des points marquant le début et la fin de l'échantillon par l'utilisateur, en Fig. III.15 (c) l'influence de la mesure des rapports de mélanges par le Picarro, en Fig. III.15 (d) l'influence des mesures des capteurs de températures et en Fig. III.15 (e) la correction du positionnement liée à la perte d'échantillon en bas du profil. Dans le cadre de ce vol, nous avons bénéficié des mesures d'un capteur de pression Paroscientific Inc© dont l'incertitude sur la mesure de pression de l'ordre de 0.1 Pa est complètement négligeable et n'est donc pas représentée ici.

La source d'incertitude dominante dans la stratosphère est liée à la sélection des points marquant le début et la fin de l'échantillon (Fig. III.15 (b)). Cela fait ressortir qu'une erreur de sélection du point marquant le début de l'échantillon de seulement un point de mesure impacte le positionnement vertical de la partie stratosphérique des profils. En effet, l'ensemble de l'air stratosphérique échantillonné dans le cas de ce vol ne représente que 8% de l'échantillon total (~150 points des ~1800 points que comprend le profil total), alors que cela représente  $\approx 15$  km des 25 km du profil. Ainsi, une différence de positionnement d'un point de mesure a un effet non négligeable.

La comparaison des figures III.14 (b) et III.14 (c) révèle que l'incertitude liée à la correction de la pression du bas du profil a une influence importante sur les incertitudes estimées dans la partie troposphérique alors que les incertitudes de la partie stratosphérique ne sont pas vraiment influencées par cette source d'erreurs. Dans la troposphère, sur le bas du profil, la perte d'une fraction de l'échantillon



**FIGURE III.15** – (a) Rappel des incertitudes totales associées au profil de  $\text{CH}_4$  en prenant en compte toutes les sources d'incertitudes identifiées. Pourcentage de l'erreur totale liée à (b) la sélection des points marquant le début et la fin de l'échantillon par l'utilisateur, (c) la mesure des rapports de mélanges par le Picarro, (d) les mesures des capteurs de températures, (e) la correction du positionnement liée à la perte d'échantillon en bas du profil

contribue à environ 80% de l'incertitude totale tandis que dans la stratosphère l'influence de cette source d'erreurs n'est plus que de 30%.

L'influence de la variabilité dans les mesures des 3 sondes de températures (Fig. III.2) n'a qu'une influence très minime sur les incertitudes totales. Bien que des écarts de quelques  $^{\circ}\text{C}$  soient observés entre les mesures, la tendance générale de variation de la température au cours du vol est mesurée de la même manière par les 3 sondes. L'augmentation du rapport entre le nombre de moles prélevées aux différents niveaux de pression et le nombre de moles totales échantillonnées est donc quasiment inchangé en considérant l'une ou l'autre des mesures.

L'incertitude de mesure des rapports de mélange par le Picarro devient prédominante quand les autres sources d'incertitudes deviennent négligeables. C'est à dire notamment quand peu de variations sont observées le long du profil (Fig. III.14 (a))

Chaque AirCore ayant des caractéristiques uniques et une histoire différente à chaque vol, il est nécessaire de recalculer les incertitudes pour chaque situation. Les incertitudes ont ici été présentées pour le  $\text{CH}_4$ . Elles sont calculées en suivant la même méthodologie pour le  $\text{CO}_2$ .

## III.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons pris l'exemple du premier vol du AirCore-HR du LMD pour détailler les différentes étapes du traitement des données. Trois étapes principales sont à considérer. Il s'agit premièrement de préparer les données issues de la mesure des rapports de mélange effectuée par l'instrument Picarro. Deuxièmement, d'harmoniser les données des paramètres d'environnement mesurés par l'électronique embarquée. Enfin, dans une troisième étape, nous avons montré de manière générale comment passer de ces données préparées dans les étapes préalables au positionnement vertical d'un profil.

Nous avons ensuite discuté du phénomène de perte de charge lié à une variation progressive de la

pression dans le AirCore et sa modélisation. Nous avons présenté comment prendre en compte la perte de charge qui se met en place dans un AirCore en fonction des conditions individuelles de chaque vol et de chaque AirCore. Le positionnement vertical a été affiné en reconsidérant l'hypothèse d'un équilibre instantané de la pression dans le AirCore avec la pression ambiante.

Nous avons ensuite vu que certains cas particuliers entraînent des corrections plus ou moins importantes du positionnement. Ainsi, nous avons montré que dans le cas d'un dysfonctionnement de la vanne de fermeture, une correction du positionnement relativement importante était à prendre en compte. De manière plus anecdotique, nous avons dans le cas de certains vols, avec de longues phases de plateau comprenant de petites remontées, il était nécessaire d'éliminer des données d'environnement certains points où l'on avait perdu de très petites quantités de l'échantillon.

Pour finir, nous avons présenté une méthode de calcul des incertitudes liées aux profils. Cette méthode prend en compte : les erreurs de mesures des instruments, celles du Picarro pour la mesure des rapports de mélange, mais aussi celles des capteurs de pression et de température lors du vol, sans oublier les choix de l'utilisateur dans le traitement des données et l'influence de potentielles erreurs supplémentaires dans certains cas particuliers. Pour chacune des sources d'incertitudes identifiées, un grand nombre de tirages aléatoires dans les distributions caractérisés par les incertitudes ont été effectués. Pour le profil de  $\text{CH}_4$  considéré comme exemple dans ce chapitre, l'incertitude globale a été évaluée à 2,78 ppb. Cette incertitude est plus importante là où des variations importantes du  $\text{CH}_4$  sont retrouvées, notamment dans la stratosphère où un gradient fort de  $\text{CH}_4$  est marqué. La moindre erreur de positionnement se traduit par une forte variation de la valeur de  $\text{CH}_4$  dans cette partie du profil. Nous avons également montré que le dysfonctionnement de la vanne de fermeture du AirCore implique une correction du positionnement du bas du profil qui contribue fortement à l'incertitude sur le positionnement du bas du profil.

Le profil final prenant en compte l'ensemble des corrections est celui que nous considérerons par la suite pour présenter les différents profils obtenus lors des différents vols de AirCores du LMD.

Cette thèse constitue le premier travail permettant de rassembler toutes les connaissances de la communauté scientifique sur le AirCore et le traitement des données associées. La compréhension et la mise en œuvre d'une chaîne de traitement des données opérationnelle ont constitué une part importante du temps. La validation expérimentale de la perte de charge et calcul des incertitudes associés sont des éléments nouveaux apportés par ce travail.



## Chapitre IV

# Analyse des profils verticaux de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> acquis lors des campagnes Strato-Sciences 2014, 2015 et 2016

### Sommaire

---

<b>IV.1</b>	<b>Introduction . . . . .</b>	<b>63</b>
<b>IV.2</b>	<b>Les campagnes Strato-Sciences . . . . .</b>	<b>64</b>
IV.2.1	Présentation générale . . . . .	64
IV.2.2	Les campagnes Strato-Sciences 2014, 2015, et 2016 . . . . .	66
IV.2.3	Résumé des instruments pour chaque campagne. . . . .	71
<b>IV.3</b>	<b>Les profils AirCore . . . . .</b>	<b>73</b>
IV.3.1	Analyse des mesures . . . . .	73
IV.3.2	Description de l'ensemble des profils mesurés lors des campagnes Strato-Sciences . . . . .	73
<b>IV.4</b>	<b>Évaluation des mesures des AirCores . . . . .</b>	<b>78</b>
IV.4.1	Validation de la résolution verticale des AirCores . . . . .	78
IV.4.2	Validation par comparaison avec d'autres instruments . . . . .	83
<b>IV.5</b>	<b>Leçons apprises à partir des campagnes . . . . .</b>	<b>85</b>
IV.5.1	L'importance du profil de vol . . . . .	85
IV.5.2	Rôle du sécheur . . . . .	86
<b>IV.6</b>	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>88</b>

---

### IV.1 Introduction

Dans le chapitre II, nous avons vu le principe de fonctionnement d'un AirCore et présenté les différents AirCores développés au LMD. Dans le chapitre III, nous avons montré comment passer de la mesure dans l'échantillon prélevé des concentrations en gaz aux profils verticaux. Ce nouveau chapitre présente l'ensemble des profils obtenus lors des différentes campagnes menées au cours de cette thèse.

De 2014 à 2016, les AirCores du LMD (le AirCore-HR et les AirCores-Light) ont participé à différents vols lors de 3 campagnes annuelles de vols de ballons stratosphériques ouverts (BSO) du CNES. Ces campagnes baptisées Strato-Sciences ont eu lieu à Timmins en Ontario au Canada en 2014 et 2015 et à Kiruna en Suède en 2016. Une nouvelle campagne est déjà programmée à Alice Springs en Australie pour 2017. Ces campagnes ont offert les premières opportunités de vols aux AirCores du LMD.

Dans une première partie, nous reviendrons rapidement sur l'organisation des campagnes Strato-Sciences, présenterons les ballons stratosphériques ouverts (BSO) permettant d'emporter des nacelles multi-instruments et détaillerons la composition des nacelles ainsi que les trajectoires des vols auxquels

des AirCores du LMD ont participé. Dans une deuxième partie, les profils verticaux obtenus avec les AirCores lors des différents vols seront présentés avec leurs incertitudes associées.

Les nacelles multi-instruments des campagnes Strato-Sciences ont permis de faire voler conjointement des AirCores de résolutions verticales différentes ainsi que d'autres instruments notamment des spectromètres à diodes lasers ayant mesuré les mêmes paramètres atmosphériques (CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub>). Nous profiterons donc des mesures simultanées de plusieurs AirCores de résolutions différentes pour montrer que les profils haute résolution obtenus avec l'air échantillonné par le AirCore-HR peuvent être dégradés précisément vers une résolution plus basse pour réaliser des comparaisons avec les profils de AirCores de résolutions différentes. Par ailleurs, nous présenterons une comparaison qualitative avec des mesures indépendantes réalisées par des spectromètres à diode lasers à bord des nacelles.

Enfin, dans une dernière partie, nous présenterons les enseignements que nous avons pu tirer de ces premiers vols. Ces trois premières campagnes ont permis d'acquérir de nombreux résultats dont nous avons beaucoup appris, à la fois techniquement sur le fonctionnement des AirCores et théoriquement sur le traitement des données. Nous montrerons notamment l'influence que la trajectoire de vol peut avoir sur l'échantillonnage de l'air ainsi que les interactions suspectées entre le perchlorate de magnésium que l'on utilise comme sécheur et les rapports de mélange CO<sub>2</sub>.

En conclusion, nous reprendrons les principaux enseignements tirés des premières campagnes et présenterons les perspectives de tests à envisager.

## IV.2 Les campagnes Strato-Sciences

### IV.2.1 Présentation générale

Les premiers lancers de AirCores du LMD ont été réalisés lors des campagnes BSO annuelles du CNES. Avant de présenter les résultats de nos mesures, nous revenons donc rapidement sur cet outil particulier que sont les BSO et présentons plus spécifiquement les vols auxquels nous avons participé.

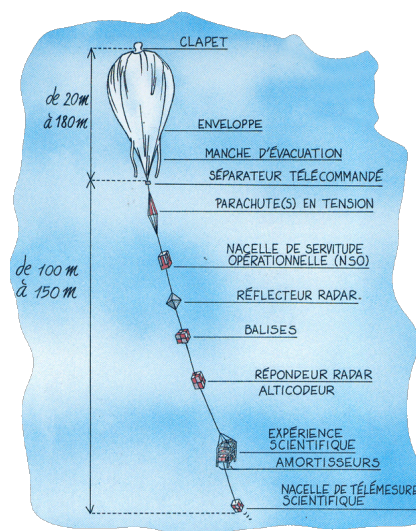
#### IV.2.1.1 Les ballons stratosphériques ouverts

Le principe des ballons stratosphériques ouverts reste très simple : gonflé à l'hélium, le ballon navigue dans le ciel au gré des courants atmosphériques en emportant une chaîne de vol comportant jusqu'à une tonne d'instruments scientifiques. On peut voir sur la figure IV.1, une représentation des principaux éléments composant un BSO.

Les ballons utilisés sont de grandes enveloppes de polyéthylène, ouvertes à leurs bases, et disposant de clapets à leurs sommets dont l'ouverture peut être commandée. L'enveloppe est prévue pour conserver le volume d'air permettant d'atteindre l'altitude maximum définie (généralement entre 30 et 40 km). Au delà, une partie de l'hélium s'échappe par l'ouverture à la base.

Ce que l'on appelle communément la "chaîne de vol" est l'ensemble des éléments accrochés sous le ballon. Celle-ci débute avec un ensemble de parachutes, suivi d'une première nacelle dite de "servitude opérationnelle" qui assure les liaisons radio et satellite pour le contrôle du ballon et des instruments.

On a ensuite à plusieurs dizaines de mètres d'écart différents balises et transpondeurs qui permettent aux radars des tours de contrôle de localiser le ballon à tout



**FIGURE IV.1** – Principaux éléments d'un ballon stratosphérique ouvert. © Conception J.-P. Penot(CNES) / Illustration B.Nicolas

moment. En bout de chaîne on trouve la nacelle avec les expériences scientifiques, suivi dans certains cas de sondes de température et d'humidité.

La taille de l'enveloppe du ballon varie suivant la masse de charge utile à emporter et peut contenir typiquement de 100.000 à 800.000  $m^3$  d'hélium. Du sommet d'un ballon jusqu'au bas de la charge utile il peut y avoir entre 150 et 300 m de distance.

On peut voir deux ballons sur la photographie (Fig. IV.3). Le ballon de gauche est l'enveloppe principale, le ballon de droite est appelé ballon auxiliaire. Il sert à soulever la charge utile pour assurer un décollage en douceur et se vide en vol mais reste captif de la chaîne de vol. En fin de vol, le centre de contrôle au sol télécommande la séparation entre la chaîne de vol et l'enveloppe du ballon. L'ouverture de parachutes est activée pour ralentir la vitesse d'atterrissage ou d'amerrissage de la nacelle. De son côté l'enveloppe se déchire et se vide avant de retomber au sol.

### IV.2.1.2 Organisation d'une campagne

Si le principe est simple, la mise en œuvre de tels ballons nécessite un savoir-faire particulier, des infrastructures et une logistique adéquate que seul des agences spatiales comme le CNES ou la NASA ont la capacité d'assurer. Dans le cadre des campagnes Strato-Sciences du CNES de 100 à 150 tonnes de matériel sont déplacées pour assurer le vol de plusieurs expérimentations scientifiques différentes au cours d'un mois de campagne. Au cours de la campagne, plus de 100 personnes, opérationnels du CNES, d'agences spatiales partenaires et scientifiques se croisent sur le site. Plusieurs mois avant le début d'une campagne, ballons, chaînes de vol, éléments du segment sol et nacelles scientifiques européennes sont expédiés depuis la base historique du CNES ballon à Aire-sur-Adour pour rejoindre le lieu de campagne.

Du côté scientifique, cette logistique particulière impose une organisation très planifiée de la préparation des expérimentations scientifiques qui sont amenées à participer à un vol. L'ensemble du matériel doit être vérifié et préparé plusieurs mois à l'avance et il ne sera donc pas possible de réaliser des tests supplémentaires durant les mois où le matériel est en transit vers et depuis le lieu de campagne.

Les lieux de campagne sont soigneusement sélectionnés sur des sites existants ou développés en partenariat avec d'autres agences spatiales à travers le monde (Fig. IV.2). Généralement, les zones géographiques alentours présentent une faible densité démographique, des vents au sol qui ne sont pas trop importants et un lieu qui permet d'assurer le suivi logistique.

C'est ainsi qu'au travers d'un partenariat avec l'Agence Spatiale Canadienne (ASC) le site de l'aéroport de Timmins, au Canada, a été choisi pour installer une base de lancement où ont successivement eu lieu les campagnes Strato-Sciences 2014 et 2015. En 2016, la campagne a eu lieu au centre spatial d'Esrange (maintenu par l'agence spatiale sué-

Les sites de lancement ballons du CNES

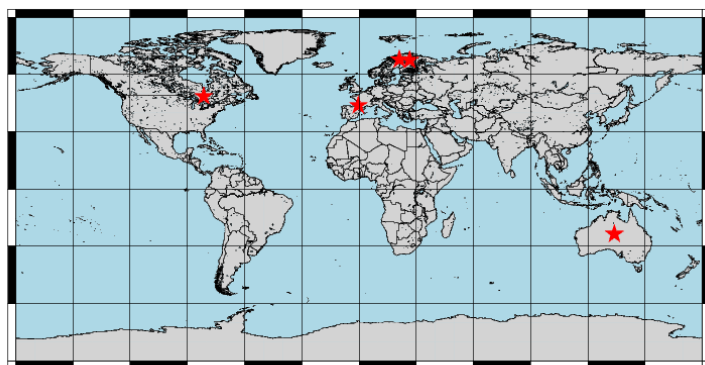


FIGURE IV.2 – Les différents sites de lancement de ballons du CNES et autres sites de lancement AirCore.

doise - Swedish Space Corporation) près de Kiruna au Nord de la Suède et en 2017 la campagne est planifiée à Alice Springs au centre de l'Australie.

Pour lancer un ballon stratosphérique ouvert il faut ensuite savoir attendre que les vents soient favorables. Un météorologue prépare les prévisions de trajectoires en mesurant régulièrement la direction et la force des vents dans les différentes couches d'airs pour assurer un profil de vol optimal suivant les besoins exprimés par les scientifiques et assurer que la dérive de la charge utile lors de la descente sous parachute se termine en zone sûre. Enfin, une autorisation des autorités de navigation aérienne est nécessaire et une

attention particulière est portée à la traversée des couloirs aériens lors de l’ascension ou de la descente.



**FIGURE IV.3** – Préparation du lâcher de la nacelle du vol CLIMAT sur l’aire de lancement de la base de ballons stratosphériques de Timmins (Ontario, Canada) le 22 août 2015

Sur le site de Timmins, les lâchers de ballons sont souvent réalisés à la tombée de la nuit, accompagnés d’une météo clémente, ce qui donne lieu à un spectacle unique (Fig. IV.3). Lors des phases de préparation et du lâcher à proprement parler plus de 10 personnes sont nécessaires car le moindre heurt pourrait endommager la charge utile ou l’enveloppe du ballon.

A titre indicatif, sur la carte (Fig. IV.2) figure aussi le site de Sodankyla, où des lancers réguliers de AirCores sont réalisés au travers d’une collaboration entre le Center For Isotope Research (CIO) de la RijksUniversiteit de Groningue au Pays-Bas qui développe des AirCore légers de moins de 3 kg et l’institut météorologique Finlandais (FMI - Finnish Meteorology Institute) habilité à les lancer. La ville de Sodankyla est située en Finlande, environ 200 km à l’est du site d’Esrang en Suède. Ce site présente un intérêt particulier en relation avec le travail qui sera présenté dans le chapitre V qui suivra. C’est à Sodankyla que j’ai pu réaliser en tant qu’observateur ma première campagne de mesures avec des AirCores en Juillet 2014 avant de participer à la campagne Strato-Sciences avec le AirCore-HR. J’avais pu y découvrir avec Colm Sweeney de la NOAA (en séjour 2014 au LMD) et Huilin Chen les aléas d’une campagne de mesure de AirCores.

## IV.2.2 Les campagnes Strato-Sciences 2014, 2015, et 2016

Les trois campagnes Strato-Sciences 2014, 2015 et 2016 ont offert les premières opportunités de vols aux différents AirCore du LMD. Lors de chacune de ces campagnes nos instruments ont participé à au moins un vol sur des nacelles regroupant plusieurs instruments. Ces vols particuliers embarquant plusieurs instruments permettent de regrouper des mesures complémentaires ou de comparer des méthodes de mesures différentes des mêmes paramètres atmosphériques. Ils nécessitent également de trouver un accord sur les trajectoires de vol suivant les différents objectifs scientifiques. Ces trois campagnes Strato-Sciences 2014, 2015 et 2016 se sont toutes déroulées sous la direction du Chef de Mission Stéphane Louvel. Avant de présenter dans la partie IV.3 les résultats de nos mesures, puis de détailler en partie IV.5, les enseignements de ces premiers vols, nous rappelons ici rapidement les vols auxquels nous avons participé en listant les instruments embarqués, en présentant les trajectoires suivies lors des vols et les éventuels problèmes rencontrés.

### IV.2.2.1 La campagne Strato-Sciences 2014

Pendant l’été 2014, s’est déroulée la première campagne scientifique sur le site de Timmins. La campagne Strato-Sciences 2014 a eu lieu du 11 août au 27 septembre 2014 et comprenait 6 vols scientifiques. Le AirCore-HR a volé pour la première fois, lors de l’un de ces vols : le vol “EdS-Stratéole” (Effet de Serre-Stratéole).

Lors de ce vol, le CNES a choisi de placer conjointement un ensemble d’instruments dans une seule plate-forme modulaire (Fig. IV.4) pour les tester simultanément. Ces instruments ont été groupés car il sont concentrés sur l’étude de différents paramètres atmosphériques et de gaz à effet de serre, et plusieurs sont candidats pour prendre part à des vols longue durée durant la campagne Stratéole-2 en 2020.

La plate-forme utilisée pour rassembler les instruments est présentée en Fig. IV.4. Cette nacelle a été développée historiquement en 1975 par le CNES pour transporter un module contenant des panneaux solaires à calibrer. Elle est baptisée “CASOLBA” pour CALibration de cellules SOLaires sur vol BALLon d’après le nom de la première expérience scientifique qu’elle a permis d’emporter. C’est la même nacelle qui a servi à rassembler les instruments pour le vol EdS-Stratéole en 2014 et les vols CLIMAT en 2015 et 2016.

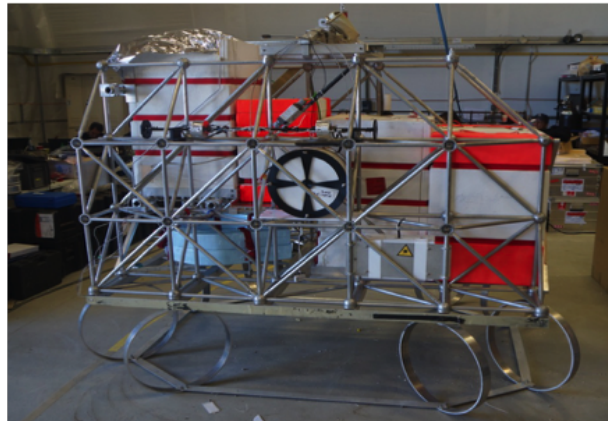
On peut voir sur la Fig. IV.4 l’ensemble des instruments qui ont participé au vol “EdS-Stratéole” en 2014 :

- 2 spectromètres à diodes laser PicoSDLA qui mesurent la concentration des gaz  $\text{CH}_4$  et  $\text{CO}_2$  développés par le Groupe de Spectroscopie Moléculaire et Atmosphérique (GSMA) de l’université de Reims-Champagne Ardenne (URCA) et la Direction Technique de l’Institut National des Sciences de l’Univers (DT-INSU) (Durry et al., 2004; Ghysels et al., 2011);
- 3 AirCores qui prélèvent un échantillon pour la mesure des gaz à effet de serre ( $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ) : 2 AirCore-GUF développés par l’Université Goethe de Francfort en Allemagne (GUF) et le AirCore Haute Résolution (AirCore-HR) développé au LMD;
- 1 compteur de particules : LOAC, développé au Laboratoire de Physique et Chimie de l’Environnement et de l’Espace (LPC2E) à Orléans (Renard et al., 2016);
- 1 instrument pour la mesure de l’Ozone : B-Bop, développé par le LMD;
- 1 hygromètre à point de givre : SAWfPHY, pour la mesure de vapeur d’eau stratosphérique développé par le LMD dans la perspective de vol longue durée Stratéole-2;
- et enfin 1 instrument pour mesurer précisément la pression et la température : Tsen, également développé par le LMD dans la perspective de vol longue durée Stratéole-2;

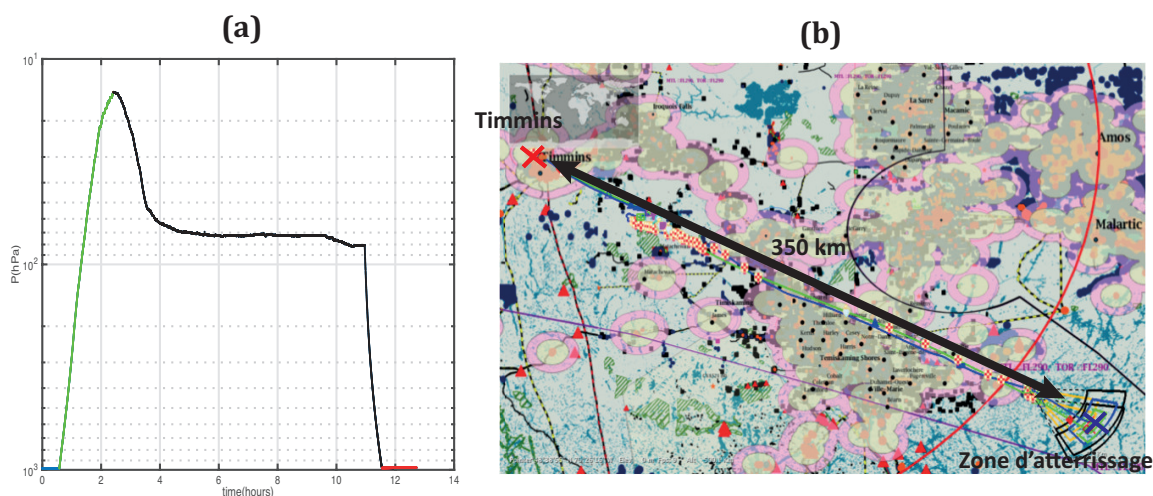
L’ensemble de la nacelle avec tous les instruments représente une masse totale de 275 kg.

La figure IV.5 (a) présente les différentes phases du vol de 2014. C’est l’équivalent de la mesure du capteur de pression présentée en Fig. III.2 où l’on fait simplement apparaître en différentes couleurs les différentes phases du vol. Ce vol réalisé de nuit aura duré 11 heures. Le lancement a été effectué à 00 :34 UTC soit en fin de journée vers 20 :30 à Timmins. Après une ascension de 2 heures présentée en vert, le ballon atteint le plafond aux alentours de 14 hPa (environ 28 km), puis la descente est présentée en noir. On rappelle que pour les AirCores, le tube se vide à la montée puis échantillonne progressivement l’air ambiant de la descente. C’est donc la phase de descente qui nous intéresse particulièrement pour retracer l’historique de l’air échantillonné. On peut remarquer que dans le cas de ce vol, la descente a duré près de 9 heures et a été effectuée en trois temps : (1) Une première descente vers une altitude d’environ 20 km (environ 75 hPa); (2) Lorsque le ballon a atteint cette altitude une phase de plateau a été maintenue avec 6 heures de dérive en faisant une descente très lente jusqu’à la limite de sécurité de 18 km (90 hPa). Cet aspect particulier de la trajectoire est requis pour les mesures de vapeur d’eau de l’hygromètre SAWfPHY qui nécessite de réaliser des mesures de nuit dans la basse stratosphère entre 70 et 100 hPa; (3) En fin de vol, la séparation entre ballon et charge utile a été déclenchée vers 11 :00 UTC et 85 hPa entraînant la dernière phase de descente sous parachute. Pour les AirCores sur ce vol (AirCore-HR et les deux AirCores-GUF) c’est finalement durant cette dernière phase de descente que l’essentiel de l’échantillon d’air est prélevé. Nous verrons que ce profil particulier avec une descente en plusieurs temps a perturbé l’échantillonnage de  $\text{CO}_2$  du AirCore-HR lors de ce premier vol.

La figure IV.5 (b) présente la trajectoire, projetée au sol, suivie par le ballon. Dans le cadre d’un vol de plus de 11 heures comme le vol “EdS-Stratéole”, la charge utile se retrouve à 350 km de Timmins. Le ballon



**FIGURE IV.4** – Nacelle du vol “EdS-Stratéole” avec l’ensemble des instruments intégrés à bord. Base de ballon stratosphérique de Timmins, Ontario, Canada. 28 Août 2014.



**FIGURE IV.5** – (a) Plan du vol “EdS-Stratéole” le 29 Août 2014 avec les différentes phases de fonctionnement d’un AirCore : La phase de préparation, au sol avant le décollage (bleu), la montée le tube se vide (vert), la phase de descente (noir), au sol le tube est fermé (rouge) ; (b) Trajectoire du vol “EdS-Stratéole” avec toutes les informations de sécurité au sol spécifiques pour le CNES

a survolé toutes les zones peuplées, marquées par des cercles concentriques vert et rose, pour terminer sa course dans une zone de forêt rassemblant les critères de sûreté pour la descente. La commande de séparation entre l’enveloppe et la charge utile a été donnée juste avant la limite de visibilité du ballon par les antennes radio depuis Timmins marqué par le trait rouge. C’est une équipe spécialisée qui se charge de récupérer les différents éléments de la chaîne de vol et l’enveloppe retombés au sol. L’accès à la zone d’atterrissage se fait le plus souvent par hélicoptère et les différents éléments sont hélitreuillés vers une zone de rendez-vous (la route ou la clairière la plus proche) d’où les éléments sont remorqués.



**FIGURE IV.6** – Analyse de l’échantillon prélevé par le AirCore-HR sur le terrain, près du point d’atterrissage de la nacelle “EdS-Stratéole” le 29 Août 2014, Québec, Canada.

Pour les AirCores, le délai d’attente avant l’analyse de l’échantillon prélevé doit être réduit au minimum. Pour limiter le délai avant l’analyse, il est préférable de se rendre au plus près du point d’atterrissage. En coordination avec l’équipe de récupération, nous installons les instruments de mesures sur groupe électrogène dans une espace dégagé le plus proche possible du lieu d’atterrissage. La nacelle est rapportée depuis le point d’atterrissage jusqu’à ce lieu défini. Lors du vol “EdS-Stratéole”, le retour de la charge utile a été particulièrement rapide puisque nous avons entamé l’analyse de l’air échantillonné par le AirCore-HR, 3 heures seulement après l’atterrissage (Fig. IV.6). Les équipes allemandes de l’université de Francfort ont procédé de la même manière pour l’analyse de leurs AirCores. Les deux AirCores-GUF ont pu être analysés respectivement avec 3 et 4 heures de délai.

Les AirCores (AirCore-HR et AirCore-GUF) dont c’était le premier vol ont échantillonné de l’air avec succès. Toutefois, les AirCores-GUF ne disposaient pas de

système de fermeture automatique pour retenir l’échantillon prélevé. Arrivés très froids au sol et s’étant réchauffés rapidement une partie de l’air échantillonné s’en est donc échappé jusqu’à l’intervention manuelle de l’équipe de récupération pour mettre en place des bouchons. Nous avons pu estimer qu’une partie de l’échantillon correspondant à l’air prélevé entre 983 et environ 780 hPa s’en est échappé. Le AirCore-HR disposait d’un système de fermeture mais l’alimentation de l’électronique qui le commandait

s'est retrouvée arrachée à l'atterrissage et le système est donc également resté ouvert avant que l'équipe de récupération ne place un bouchon. Lors du réchauffement du AirCore-HR durant la phase d'attente nous avons pu estimer qu'une partie du profil correspondant aux 80 derniers hPa échantillonnés s'est échappé, ramenant le bas du profil continu dans le AirCore à environ 900 hPa (cf partie III.4).

La description des premières mesures avec le AirCore-HR a fait l'objet d'un article sur cet instrument dans la revue Atmospheric Measurement Techniques (Membrive et al., 2016). Cet article est actuellement en cours de révision.

#### IV.2.2.2 La campagne Strato-Sciences 2015

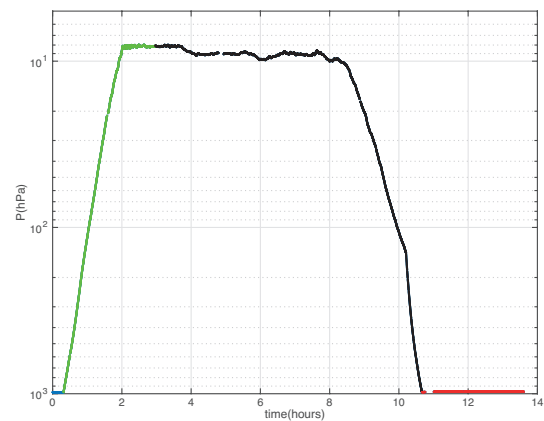
Pendant l'été 2015 (du 12 août au 30 septembre), une nouvelle campagne de 6 vols a de nouveau eu lieu sur la base de Timmins. Côté LMD, 2015 a été l'occasion de développer de nouveaux AirCores plus légers avec l'objectif de les déployer prochainement sous ballons météorologiques : les AirCores-Light. 3 AirCores du LMD, (le AirCore-HR et 2 AirCores-Light) ont participé au vol d'ouverture baptisé CLIMAT pour « Combinaison de Lasers et d'Instruments *in situ* de Mesures dans l'Atmosphère Terrestre ». Puis les 2 AirCores-Light ont pu revoler lors d'un deuxième vol, baptisé H<sub>2</sub>O. Malheureusement suite à un défaut de l'électronique des AirCores, les résultats de ce vol ne sont pas exploitables.

De manière similaire au vol "EdS-Stratéole" de 2014, le vol CLIMAT a regroupé sur la même nacelle 12 instruments basés sur des technologies différentes développées au sein de divers laboratoires français et européens, mais répondant à un même objectif scientifique : l'étude de variables climatiques essentielles, et tout particulièrement la mesure précise de profils de concentration *in situ* des trois principaux gaz à effet de serre (H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub>), ainsi que la détection des aérosols. Ont participé au vol :

- 4 spectromètres à diode laser PicoSDLA (CH<sub>4</sub>, CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O et H<sub>2</sub>O-Strat) ;
- 2 spectromètres à diode laser compacts AMULSE (CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub>) développés au GSMA ;
- 5 AirCores à diverses résolutions verticales : 2 AirCores-GUF de l'université de Francfort analysés avec un Picarro (CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>/CO), 2 AirCore-Light et le AirCore-HR du LMD analysés avec un Picarro (CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>) ;
- 1 hygromètre à point de givre : SAWfPHY ;
- 1 compteur de particules : LOAC.

La figure IV.7 présente les différentes phases du vol CLIMAT 2015. Ce vol également réalisé de nuit aura duré 10 heures. Le lancement a été effectué peu après 00 :15 UTC soit en fin de journée vers 20 :15 à Timmins (Fig. IV.3). Après une phase d'ascension typique de 2 heures présentée en vert, le ballon atteint le plafond aux alentours de 8 hPa (environ 32 km). On remarque que, lors de ce vol, le ballon est maintenu au plafond sous les 10 hPa durant près de 6 heures, puis la descente est réalisée en une seule phase continue entre 8h30 et 10h30 UTC : d'abord en maintenant ouvert le clapet du ballon jusqu'à environ 120 hPa, puis sous parachute sur la fin de la descente. Cette descente d'un seul tenant sans marquer de pause a été spécifiquement demandée afin d'éviter des ruptures dans l'échantillonnage des AirCores lors d'une phase de plateau. L'attente de 6 heures au plafond est liée au besoin de récupération rapide des AirCores et permet un atterrissage peu après le lever du soleil, facilitant l'intervention des équipes de récupération pour accéder à la charge utile retombée au sol.

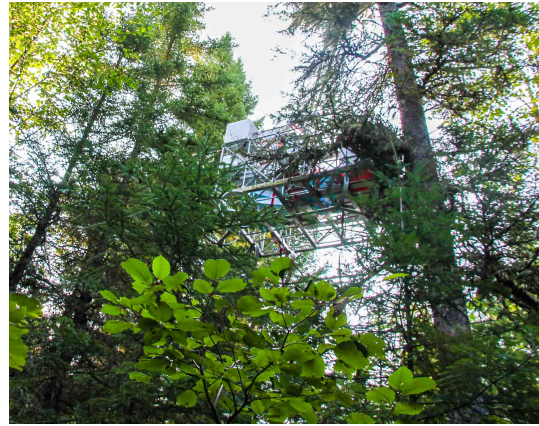
La nacelle de ce vol a fini sa course suspendue dans un arbre (Fig. IV.8). La récupération a donc duré plus longtemps que l'année précédente. Toutefois, la nacelle a pu être ramenée au lieu où nous étions installés pour l'analyse dans un délai de seulement 5 heures après l'atterrissage. Ainsi, les délais avant le début de l'analyse ont été de 5 heures, 6 heures et 7 heures pour les trois AirCores du LMD. Les échantillons prélevés par les AirCore-Light dont la résolution verticale se dégrade plus rapidement ont



**FIGURE IV.7** – Plan du vol "CLIMAT" le 23 Août 2015 avec les différentes phases de fonctionnement d'un AirCore : La phase de préparation, au sol avant le décollage (bleu), la montée le tube se vide (vert), la phase de descente le tube se ferme (noir), au sol le tube est fermé (rouge)

été analysés avant l'échantillon du AirCore-HR. De leur côté les deux AirCore-GUF sur ce vol ont été analysés respectivement avec 5 heures et 6 heures de délai.

Lors de ce vol, tous les AirCores du LMD disposaient d'un système de fermeture. Toutefois, un problème avec l'électronique du AirCore-HR a conduit à une coupure de l'enregistrement des données de température du AirCore-HR et n'a pas permis de tester le fonctionnement de la nouvelle vanne motorisée devant assurer la fermeture du système à l'atterrissage. Nous avons pu estimer que seul 50 hPa ont été perdu, ramenant le bas du profil de 972 hPa à environ 920 hPa. Pour les AirCores-Light du LMD dont c'était le premier vol le système de fermeture (composé d'une vanne à clapet, retenue ouverte par un fil que l'on brûle en chauffant une résistance quelques secondes à l'atterrissage) a fonctionné pour l'un des AirCores-Light. Sur le second AirCore-Light le fil n'a pas brûlé et la vanne est restée ouverte. Une partie correspondant à l'échantillon prélevé entre 972 et environ 790 hPa a été perdue (ce système ayant subi des variations thermiques plus importantes que le AirCore-HR, la perte d'échantillon est plus importante). Côté AirCores-GUF seul un des deux AirCores disposait d'un système de fermeture automatique. Ce système ayant fonctionné, un AirCore-GUF a retenu un profil complet, pour l'autre le bas de profil doit être remonté à environ 770 hPa.



**FIGURE IV.8** – Atterrissage de la nacelle du vol “CLIMAT” au sommet d’un arbre le 29 Août 2016.

La description générale des objectifs scientifiques et des résultats préliminaires du vol CLIMAT ont fait l'objet d'un court article de la revue “Météo et Climat” ([Membrive et al., 2015](#)).

### IV.2.2.3 La campagne Strato-Sciences 2016

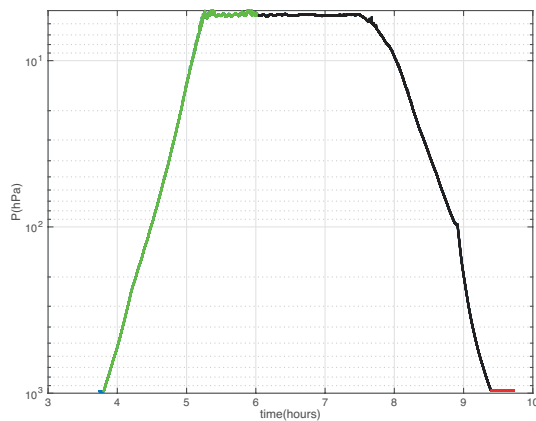
Pendant l'été 2016, la campagne Strato-Sciences 2016 s'est déroulée du 25 Août au 6 Septembre sur la base spatiale d'Esrange près de Kiruna au Nord de la Suède et ne comptait que deux vols. La même nacelle que celle du vol CLIMAT en 2015 a été sélectionnée pour l'un de ces vols en 2016. Cette fois 4 AirCores du LMD ont été placés sur la nacelle : le AirCore-HR et 3 AirCore-Light mais aucun AirCore-GUF de l'université de Francfort n'a participé au vol cette année. Au total, ont participé au vol, les instruments suivants :

- 4 spectromètres à diode laser PicoSDLA (CH<sub>4</sub>, CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O et H<sub>2</sub>O-Strat) ;
- 3 spectromètres à diode laser compacts AMULSE (CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> et Bi-Gaz CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>) ;
- 4 AirCores : le AirCore-HR et 2 AirCores-Light (l'un avec sécheur et l'autre sans sécheur) analysés avec un Picarro (CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>) et 1 AirCore-Light sans sécheur développé par le LMD et analysé par le LSCE avec un Picarro H<sub>2</sub>O/HDO ;
- 1 compteur de particules : LOAC.

Comme indiqué en Fig. IV.9 ce vol a la particularité d'avoir été effectué de jour et de n'avoir duré que 5h30. Le décollage a eu lieu aux alentours de 3h45 UTC soit au lever du soleil vers 5h45 locale et l'atterrissage vers 9h20 UTC. Les conditions locales pour ce vol ont fait que la charge utile n'a atterri qu'à 150 km de la base d'Esrange soit à 2 heures de route. Le choix a donc été fait de laisser les instruments de mesures sur la base et d'aller simplement récupérer les AirCores pour réaliser les mesures sans avoir à déplacer le Picarro. La récupération de la nacelle a été effectuée en moins de 2h après le vol, permettant un retour à la base avec les AirCores pour débiter l'analyse moins de 5 heures après le vol.

Au cours de cette campagne, côté LMD nous avons réalisé une mesure comme les années précédentes avec le AirCore-HR avec sécheur. En revanche, avec 2 AirCores-Light nous avons testé de faire voler l'un avec sécheur et l'autre sans sécheur. Pour le AirCore-Light qui a volé avec sécheur nous avons attendu un délai de 24 heures supplémentaires avant de procéder à l'analyse de l'échantillon prélevé pour vérifier l'impact d'un délai long (de plus de 24h). Les données de cette campagne réalisée très récemment sont encore préliminaires.





**FIGURE IV.9** – Plan du vol “CLIMAT” le 29 Août 2016 avec les différentes phases de fonctionnement d’un AirCore : la montée le tube se vide (vert), la phase de descente (noir), au sol le tube est fermé (rouge)

des profils de AirCores déployés indépendamment depuis 2 localisations ayant échantillonné des colonnes d’airs très proches. Ceci pourra nous renseigner sur la variabilité spatiale et temporelle des gaz à effet de serre  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  le long de la colonne atmosphérique.

Concernant le fonctionnement des AirCores, le AirCore-HR a parfaitement fonctionné et a échantillonné la colonne atmosphérique complète. Côté AirCore-Light, le système de fermeture (vanne à clapet, retenue ouverte par un fil que l’on brûle en chauffant une résistance quelques secondes à l’atterrissage) a été légèrement revu pour assurer un meilleur contact entre le fil et la résistance. Les AirCores-Light se sont donc bien tous fermés en arrivant au sol.

Toutefois, une erreur en phase préparation a fait que 2 AirCores-Light ont malencontreusement été placés en vol avec les deux extrémités ouvertes. Du côté où ils auraient dû être fermé un bouchon semi-hermétique était placé en double sécurité qui a permis d’assurer un fonctionnement normal des AirCores lors de l’échantillonnage, mais a laissé ressortir une partie de l’échantillon lorsque la pression dans les AirCores a augmenté sous l’effet du réchauffement. Nous avons pu constater qu’une partie correspondant aux 95 premiers hPa stratosphériques s’est échappée de ces AirCores. Il s’agissait des deux AirCore-Light sans sécheurs, celui analysé par le LMD et celui mis à la disposition du LSCE.

### IV.2.3 Résumé des instruments pour chaque campagne

Le tableau IV.1 présente de manière synthétique le rappel des différents instruments qui ont volé ensemble lors de chacun de ces vols. On remarque que lors de ces trois années, la configuration du vol a peu changé embarquant souvent les mêmes instruments. Malgré tout, suivant les années, des ajustements ont été faits sur le profil de vol en fonction des expérimentations scientifiques prioritaires.

A chaque vol, les AirCores ont rencontré des succès techniques ou des difficultés de fonctionnement différentes. Le tableau IV.2 résume les statuts de fonctionnement des vannes d’entrée et de l’électronique. Les corrections résultantes sur le positionnement vertical du profil sont précisées en commentaire.

Par ailleurs, ce vol a été l’occasion de nombreuses collaborations scientifiques. D’une part, nous avons collaboré avec Françoise Vimeux et Olivier Cattani du Laboratoire des Sciences du Climat et de l’Environnement (LSCE) en leur mettant à disposition l’un des 3 AirCores-Light afin de tester la mesure d’isotopes de la vapeur d’eau avec un AirCore.

D’autre part, nous avons accueilli Huilin Chen et deux de ses doctorants de l’université de Groningen à Kiruna pour réaliser le recyclage de la partie stratosphérique de l’air échantillonné par le AirCore-HR dans un second système d’échantillonnage nommé “Stratospheric Air Sub-Sampler” (Mrozek et al., 2016). Leur présence a permis d’organiser un vol de AirCore synchronisé depuis la Finlande grâce à la collaboration privilégiée entretenue avec l’Institut Météorologique Finlandais. Ce AirCore lancé à 8h00 du matin le jour du vol était synchronisé temporellement avec le AirCore lâché à 150 km de là en suède par le CNES. Avec cette synchronisation unique, réalisée pour la première fois, nous allons donc pouvoir comparer

**TABLE IV.1** – Rappel des différents instruments qui ont volé conjointement sur les mêmes nacelles lors des différents vols des campagnes Strato-Sciences 2014, 2015 et 2016 auxquelles des AirCores du LMD ont participé. Lorsque plusieurs instruments du même type ont volé ils sont listés. Autrement la présence de l'instrument est indiquée par un X et l'absence de l'instrument par -.

	2014 (EdS-Stratéole)	2015 (CLIMAT)	2016 (CLIMAT)
AirCores LMD	AirCore-HR	AirCore-HR 2 AirCores-Light	AirCore-HR 3 AirCores-Light
AirCores GUF	2 AirCores-GUF	2 AirCore-GUF	-
Pico-SDLA	Pico-SDLA CO <sub>2</sub> Pico-SDLA CH <sub>4</sub>	Pico-SDLA CO <sub>2</sub> Pico-SDLA CH <sub>4</sub> Pico-SDLA H <sub>2</sub> O Pico-SDLA Strat	Pico-SDLA CO <sub>2</sub> Pico-SDLA CH <sub>4</sub> Pico-SDLA H <sub>2</sub> O Pico-SDLA Strat
AMULSE		AMULSE CH <sub>4</sub> AMULSE CO <sub>2</sub>	AMULSE CH <sub>4</sub> AMULSE CO <sub>2</sub> AMULSE CO <sub>2</sub> /CH <sub>4</sub>
SAWfPHY	X	X	-
LOAC	X	X	X
Tsen	X	-	-

**TABLE IV.2** – Récapitulatif du fonctionnement des différents AirCores. La colonne fermeture indique le statut de fonctionnement de la vanne de fermeture du système. La colonne électronique précise si les données ont été enregistrées. La colonne sécheur précise si un tube de 10 cm avec du perchlorate de magnésium était placé à l'entrée du AirCore. La colonne délai donne le temps d'attente entre l'atterrissage du AirCore et l'analyse de l'air échantillonné. Enfin une colonne commentaires sert à préciser les corrections apportées aux profils.

2014 (EdS-Stratéole)					
	fermeture	électronique	sécheur	délai	commentaires
AirCore-HR	Problème	OK	avec	3h	Perte du profil de 983 à 900 hPa.
AirCore-GUF1	Manuelle	OK	avec	3h	Perte du profil de 983 à 780 hPa.
AirCore-GUF2	Manuelle	OK	avec	4h	Perte du profil de 983 à 780 hPa.
2015 (CLIMAT)					
	fermeture	électronique	sécheur	délai	commentaires
AirCore-HR	Problème	Problème	avec	7h	Perte du profil de 972 à 920 hPa.
AirCore-Light1	OK	OK	avec	5h	Profil complet
AirCore-Light2	Problème	OK	avec	6h	Perte du profil de 972 à 790 hPa.
AirCore-GUF2	OK	OK	avec	5h	Profil complet
AirCore-GUF3	Manuelle	OK	avec	6h	Perte du profil de 972 à 770 hPa.
2016 (CLIMAT)					
	fermeture	électronique	sécheur	délai	commentaires
AirCore-HR	OK	OK	avec	6h	Profil complet
AirCore-Light1	OK - Pb Strato	OK	sans	5h	Test H <sub>2</sub> O/HDO (sans sécheur)
AirCore-Light2	OK - Pb Strato	OK	avec	5h	Perte du profil 0 à 95 hPa.
AirCore-Light3	OK	OK	sans	30h	Profil complet

## IV.3 Les profils AirCore

### IV.3.1 Analyse des mesures

Dans cette partie, l'ensemble des profils de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub> mesurés par les différents AirCores au cours des campagnes Strato-Sciences vont être présentés. Il est important de rappeler que le traitement des données permettant d'aboutir aux profils verticaux doit être réalisé individuellement pour chaque AirCore et chaque vol.

Le traitement des données de tous les AirCores embarqués sur les campagnes Strato-Sciences a été réalisé au LMD, à la fois pour les AirCores du LMD mais aussi pour les échantillons prélevés par les AirCore-GUF en utilisant la méthodologie présentée au chapitre III. C'est un travail assez long qui doit être réalisé avec soin.

La figure IV.10 présente une synthèse du traitement des données du premier vol du AirCore-HR en 2014 en suivant les étapes de traitement présentées Chapitre III. Les figures de synthèses similaires sont réalisées pour chacun des AirCores à chaque vol.

On rappelle que pour aboutir au positionnement vertical des rapports de mélange mesurés dans les échantillons prélevés par les AirCores, trois étapes sont nécessaires.

**Étape 1** On retrouve en Fig. IV.10 (a) les mesures de rapport de mélange de l'échantillon prélevé par le AirCore analysé par l'analyseur Picarro.

**Étape 2** En figure IV.10 (b) et (c) on retrouve les données d'environnement : respectivement le profil de pression du vol avec la mesure de la température du AirCore et la température ambiante de l'air lors du vol. A partir du profil de la température ambiante (Fig. IV.10 (c)) nous estimons le niveau de la tropopause en suivant la définition de la tropopause donnée par l'organisation météorologique mondiale (WMO) en utilisant un algorithme décrit par [Reichler et al., 2003](#). Dans le cas du vol "EdS-Stratéole" présenté ici, la position de la tropopause est ainsi estimée précisément à 162.1 hPa.

**Étape 3** Enfin, on observe en Fig. IV.10 (d) et (e), les profils de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub> obtenus lors de ce premier vol en prenant en compte toutes les corrections de positionnement spécifiques à l'histoire du AirCore-HR durant ce vol. Les variations de CH<sub>4</sub> sur la colonne étant importante avec un fort gradient dans la stratosphère, un zoom sur la partie troposphérique dans une fenêtre entre 200 et 1000 hPa est ajouté pour le CH<sub>4</sub>.

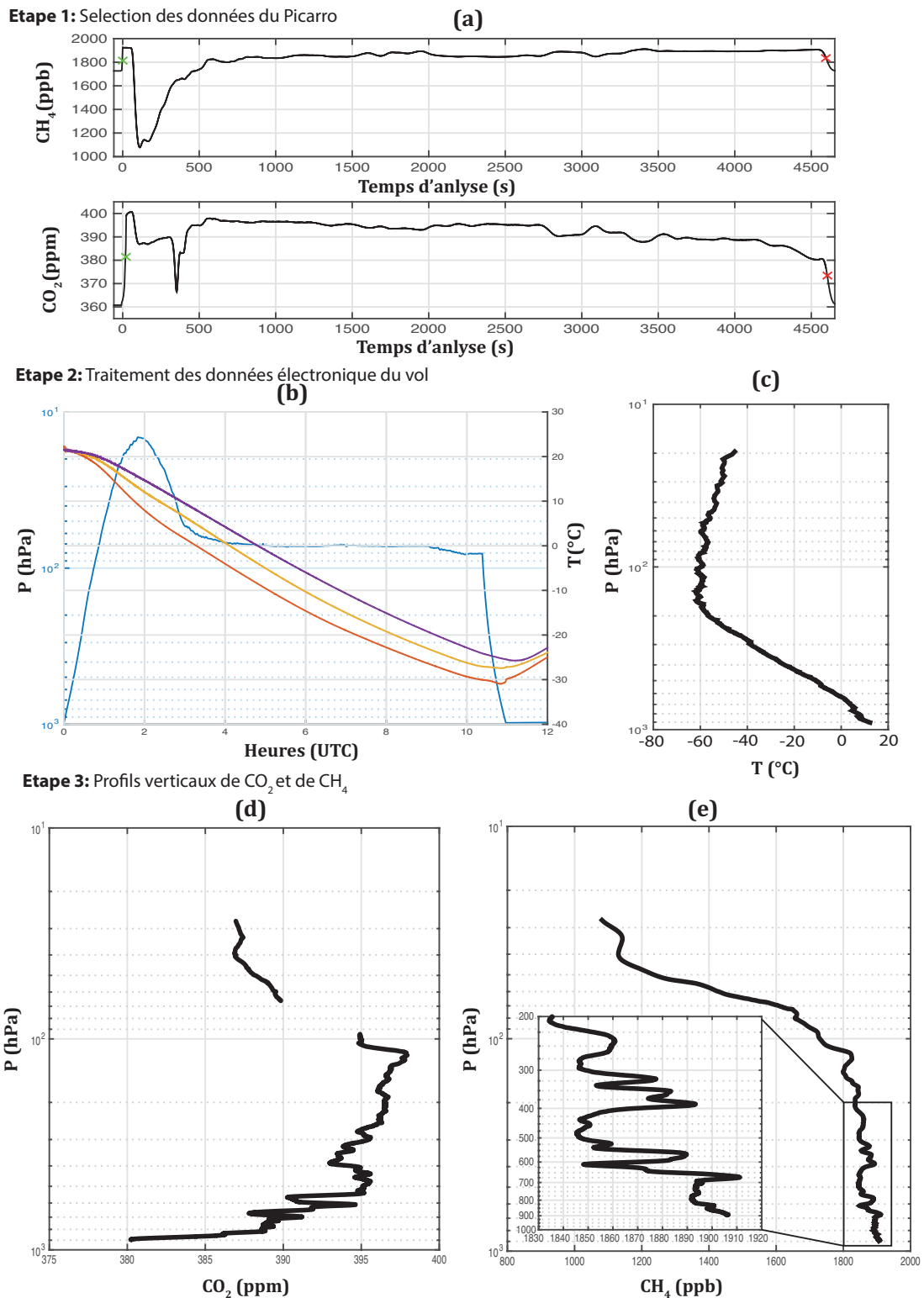
### IV.3.2 Description de l'ensemble des profils mesurés lors des campagnes Strato-Sciences

#### IV.3.2.1 Description générale des profils de AirCores

La figure IV.11 présente l'ensemble des profils de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub> mesurés durant les trois campagnes Strato-Sciences 2014, 2015 et 2016. La tropopause est indiquée en traits pointillés sur les figures. Elle se situe vers 160 hPa à Timmins en 2014 et 2015 et vers 250 hPa à Kiruna en 2016. La figure IV.12 présente l'ensemble des incertitudes associées au positionnement vertical de chacun des profils. Ces incertitudes sont calculées en utilisant la méthode présentée en partie III.5. Chaque profil étant unique, les incertitudes associées à chaque profil sont calculées individuellement en s'adaptant à chaque cas particulier (cf Tab. IV.2).

Avant de rentrer dans les détails des profils de chaque campagne, on peut déjà commenter les aspects généraux de profils verticaux de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub> qui illustrent les principales caractéristiques de la variation verticale de ces gaz.

Les profils de CH<sub>4</sub> présentent une concentration assez constante (entre 1850 et 1950 ppb) de la surface à la tropopause. Dans la stratosphère on observe une forte décroissance du méthane. Ces deux phases troposphérique et stratosphérique du méthane sont typiquement attendues. Dans la troposphère, on a un mélange relativement efficace des concentrations de méthane. Suivant la localisation des sources, on observera alors des valeurs plus ou moins proches de la valeur de fond actuellement d'environ 1880 ppb. Dans la stratosphère en revanche on a une forte destruction du méthane par oxydation avec le radical OH qui se forme dans cette couche atmosphérique.



**FIGURE IV.10** – Synthèse du AirCore-HR lors du vol EdS-Stratéole en Août 2014. Les figures sont organisées suivant les étapes du traitement des données présentées au chapitre III. Étape 1 : sélection des points marquant le début et la fin de l'échantillon. (a) Analyse des rapports de mélange de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub> mesurés par le Picarro - Étape 2 : Données de bord, (b) mesure de la pression ambiante et de la température du AirCore et (c) mesure de la température ambiante lors du vol. - Étape 3 : Profils finaux de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub>. (d) profil final de CO<sub>2</sub>, (e) profil final de CH<sub>4</sub>

Pour le profil de  $\text{CO}_2$ , la valeur des rapports de mélange augmente jusqu'à atteindre un maximum au-dessus de la tropopause. La valeur du  $\text{CO}_2$  décroît ensuite progressivement dans la stratosphère. Ces valeurs plus basses de  $\text{CO}_2$  dans la stratosphère sont attendues en lien avec le taux d'échange entre la haute troposphère et la basse stratosphère qui peut prendre plusieurs années ( $\sim 2\text{-}3$  ans, soit environ une différence de 6 ppm entre le haut de la troposphère et le bas de la stratosphère) (Andrews et al., 2001 ; Engel et al., 2009). Les concentrations de  $\text{CO}_2$  retrouvées dans la stratosphère correspondent donc aux valeurs des moyennes des années précédentes progressivement transportées dans les différentes strates de la stratosphère et le rapport de mélange du  $\text{CO}_2$  décroît alors graduellement. Les variations dans la partie troposphérique du profil où l'on observe une décroissance du  $\text{CO}_2$  plus ou moins intense en se rapprochant de la surface s'expliquent elles par la localisation géographique et la saison d'été. En effet, en été la région autour de Timmins est principalement un puits de  $\text{CO}_2$  de part l'activité intense de la biosphère. Aux hautes latitudes de Kiruna, la végétation est moins dense ce qui peut expliquer qu'en 2016 la décroissance du  $\text{CO}_2$  vers la surface soit moins prononcée.

De manière générale, une comparaison entre les profils de  $\text{CO}_2$  et de  $\text{CH}_4$  de chaque vol révèle une variabilité de  $\text{CO}_2$  plus importante proche de la surface, tandis que la variabilité de  $\text{CH}_4$  est plus importante dans la moyenne à haute troposphère et dans la stratosphère. Ceci est en accord avec la présence des puits et des sources de  $\text{CO}_2$  en surface (associés à l'absorption par l'activité photosynthétique des plantes et aux émissions anthropogéniques) alors que le  $\text{CH}_4$  a principalement des sources à la surface et son puits dans la stratosphère où il est dégradé par oxydation avec le radical hydroxyle (OH). Par ailleurs, en observant attentivement les structures de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  le long de la verticale, on remarque que les variations des rapports de mélange de  $\text{CO}_2$  et de  $\text{CH}_4$ , sont souvent anti-corrélées entre les deux rapports de mélange.

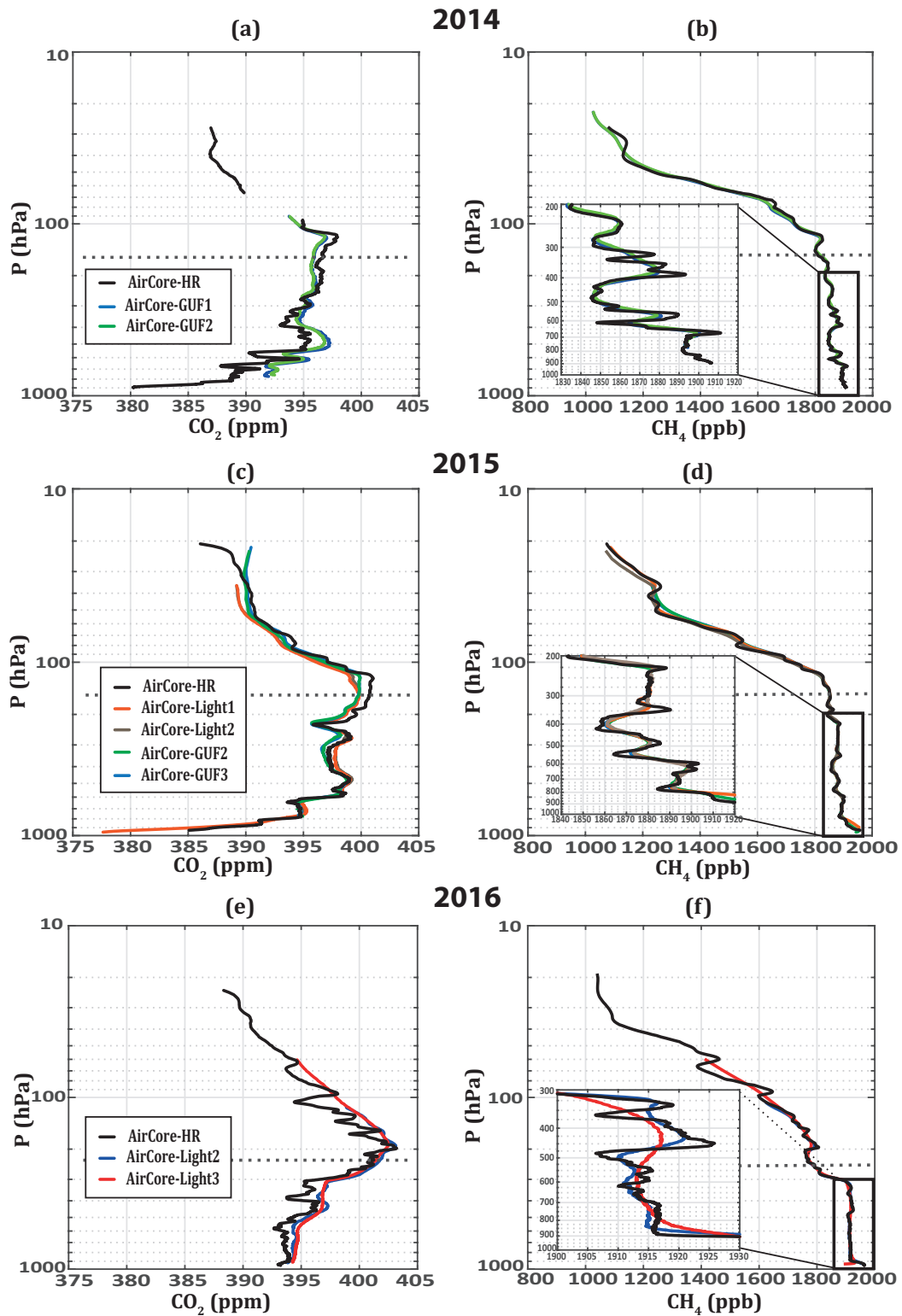
D'autre part, en regardant l'ensemble des courbes, on peut noter que l'accord entre les profils mesurés par les différents AirCores est remarquable. Notamment pour le  $\text{CH}_4$ , quelle que soit l'année, les profils coïncident parfaitement. A la différence de résolution près, les courbes des profils échantillonnés par les différents AirCores permettent de retrouver exactement les mêmes structures verticales en terme de positionnement et de rapports de mélange. Pour les profils de  $\text{CO}_2$ , l'accord est bon mais, suivant les vols, des différences dans les rapports de mélange allant parfois jusqu'à quelques ppm peuvent apparaître. Nous suspectons que ces différences soient liées au sécheur qui peut agir légèrement différemment entre les AirCores. Pour éclairer ce point nous avons fait l'expérience de lancer un AirCore-Light sans sécheur lors du vol CLIMAT de 2016. Les résultats de cette expérience sont discutés dans la partie IV.5.

La différence de résolution entre les mesures du AirCore-HR dont les profils sont systématiquement présentés en noir et les profils des autres AirCore plus basse résolution apparaît très nettement. Les profils verticaux de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  du AirCore-HR révèlent des structures plus fines le long de la colonne atmosphérique. Dans les échantillons plus restreints de ces AirCores, les effets combinés de la diffusion moléculaire, de la dispersion de Taylor et du mélange dans la cellule de l'analyseur ont lissé les structures les plus fines (cf chapitre II). Les structures les plus importantes du profil sont néanmoins bien retrouvées par les AirCores plus basse résolution.

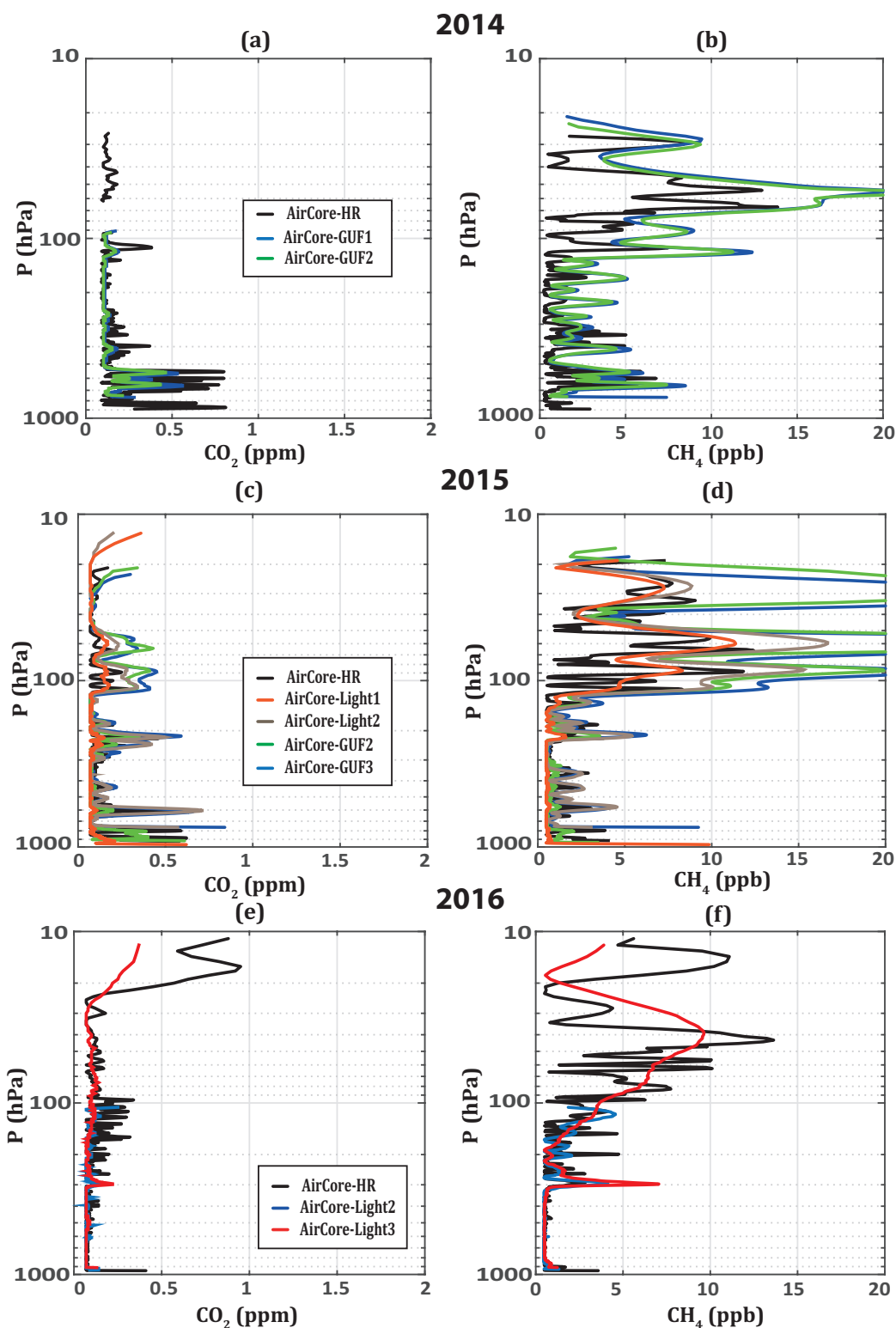
La présentation conjointe de l'ensemble des profils de chacun des vols permet de démontrer la répétabilité des mesures AirCores. L'accord entre les structures et le positionnement vertical des mesures est en effet excellent ce qui démontre que d'un AirCore à l'autre, à la résolution près, les mêmes mesures sont retrouvées par l'ensemble des AirCores ayant échantillonné la même colonne d'air. Afin de comparer précisément les mesures des AirCores de différentes résolutions, il est nécessaire de les ramener à la même résolution verticale. Ceci est possible en appliquant le filtrage qui convient sur les profils haute résolution du AirCore-HR ; nous présenterons un exemple en partie IV.4.1.

Globalement, les incertitudes liées au positionnement des profils varient peu entre les différentes années (Fig. IV.12). Les incertitudes moyennes sur toute la colonne sont de l'ordre de 3 ppb (moins de 0,2 %) pour le  $\text{CH}_4$  et de 0.3 ppm (moins de 0,1 %) pour le  $\text{CO}_2$  même si ponctuellement lors de gros gradients, un décalage de positionnement vertical peut entraîner une incertitude importante.

Ainsi, on retrouve des valeurs d'incertitudes plus prononcées dans les partie stratosphériques des profils de  $\text{CH}_4$  (Fig. IV.12 (b), (d) et (e)). Les incertitudes moyennes de  $\text{CH}_4$  dans la partie stratosphérique de la colonne sont de l'ordre de 7 ppb avec des valeurs pouvant parfois dépasser les 20 ppb localement. Dans la partie troposphérique, alors que les concentrations de  $\text{CH}_4$  sont assez constantes, les incertitudes



**FIGURE IV.11** – Synthèse de tous les profils mesurés par des AirCores lors des différentes campagnes Strato-Sciences 2014, 2015 et 2016. Pour chaque année les profils de CO<sub>2</sub> sont placés à gauche, soit respectivement les figures (a), (c) et (e) et les profils CH<sub>4</sub> sont placés à droite soit respectivement les figures (b), (d) et (f)



**FIGURE IV.12** – Synthèse de l'incertitude associée à chacun des profils mesurés par des AirCores lors des différentes campagnes Strato-Sciences 2014, 2015 et 2016. Selon le même ordre qu'en Fig. IV.11 les incertitudes sur les profils de CO<sub>2</sub> sont placées à gauche soit respectivement les figures (a), (c) et (e) et de la même manière les incertitudes sur les profils CH<sub>4</sub> sont placées à droite soit respectivement les figures (b), (d), et (f)

moyennes sur le profil de CH<sub>4</sub> sont plus faibles, de l'ordre de 2 ppb. On retrouve parfois des gradients plus abrupts comme aux alentours de 300 hPa dans le profil obtenu à Kiruna en 2016 (Fig. IV.11 (f)) qui se traduisent alors localement par une incertitude plus importante (Fig. IV.12 (f)).

De la même manière, dans les profils de CO<sub>2</sub>, les incertitudes peuvent être reliées aux variations le long du profil. Le gradient le plus abrupt est retrouvé dans le bas de la troposphère en 2015. On observe alors que l'incertitude associée augmente fortement, dépassant les 1,5 ppm. En effet, la moindre erreur de positionnement décale ce gradient de quelques hPa, ce qui se traduit par une augmentation de l'incertitude. Globalement, les incertitudes de CO<sub>2</sub> restent assez faibles, en lien avec les variations assez progressives des rapports de mélange de CO<sub>2</sub> le long de la verticale. Les incertitudes présentées ici ne prennent en compte que les sources d'erreurs listées en partie III.5.1 et n'ont pas vocation à traduire les éventuels biais de quelques ppm entre les profils de CO<sub>2</sub> qui pourraient provenir des sècheurs utilisés à l'entrée des AirCores (cf. partie IV.5).

#### IV.3.2.2 Les profils obtenus à Timmins en 2014 et 2015

Les vols 2014 et 2015 ont été réalisés depuis Timmins avec quasiment exactement un an d'intervalle. Si l'on compare la variation de CO<sub>2</sub> entre les profils de 2014 et 2015 on trouve une augmentation entre 2 et 4 ppm de CO<sub>2</sub> dans la troposphère. Au niveau des profils de CH<sub>4</sub> la variation est plus délicate à observer, les profils conservent environ les mêmes concentrations dans la troposphère.

On peut également remarquer qu'une partie des profils de CO<sub>2</sub> est manquante en 2014. En effet l'échantillonnage du CO<sub>2</sub> a rencontré un problème dans la stratosphère lors de ce vol uniquement. Ce problème sera discuté en partie IV.5.

#### IV.3.2.3 Les profils mesurés à Kiruna en 2016

Un aspect très intéressant du profil de CO<sub>2</sub> du AirCore-HR lors du vol à Kiruna en 2016 est la partie stratosphérique du profil. On remarque que le rapport de mélange de CO<sub>2</sub> décroît progressivement dans la stratosphère après avoir atteint des valeurs maximales de l'ordre de 403 ppm à la tropopause. Le long de cette décroissance, on remarque des variations régulières de l'ordre de 2 ppm à mesure que l'on monte en altitude. Ces structures pourraient correspondre à la variation saisonnière du CO<sub>2</sub> en surface lors des dernières années.

En effet, si l'on imagine que le CO<sub>2</sub> est principalement transféré entre la troposphère et la stratosphère dans les zones de convection forte au niveau de la zone de convergence inter-tropicale ou dans le cas de Kiruna au niveau du front polaire. Les concentrations que l'on retrouve dans la stratosphère correspondrait à un transport par une circulation du type Brewer-Dobson et pourraient correspondre à la variation saisonnière en surface de l'hémisphère nord ces dernières années.

Ainsi, ces structures ouvrent des perspectives de recherches intéressantes notamment pour étudier l'âge de l'air et le transport des masses d'air à partir des mesures de CO<sub>2</sub> stratosphériques.

## IV.4 Évaluation des mesures des AirCores

### IV.4.1 Validation de la résolution verticale des AirCores

Lors des vols des campagnes Strato-Sciences, plusieurs AirCores de résolutions verticales différentes ont volé à bord d'une même nacelle. Nous avons développé une méthode utilisant le calcul théorique de la résolution verticale pour comparer précisément les profils du AirCore-HR avec ceux de AirCores plus basse résolution : notamment les AirCores-GUF ou les AirCores-Light du LMD. En plus de permettre une comparaison précise des profils du AirCore-HR avec ceux de plus basse résolution des autres AirCores, ce travail permet de valider le calcul théorique de la résolution verticale présentée en partie II.4.1.

Partant du principe que l'air échantillonné par le AirCore-HR est la représentation la plus proche de la réalité de la variation des rapports de mélange le long de la colonne atmosphérique dont nous disposons, nous avons dégradé numériquement les profils obtenus avec le AirCore-HR à la résolution verticale plus basse des AirCores-Light ou des AirCores-GUF.



#### IV.4.1.1 Dégradation de la résolution verticale du AirCore-HR à celle d'un AirCore-Light

Il est important de noter que les résolutions verticales présentées en Fig. II.10 étaient calculées pour une atmosphère standard et en supposant un profil échantillonné entre 10 et 1000 hPa. Afin de prendre en compte l'échantillonnage qui a réellement eu lieu durant chaque vol et comment l'air s'est retrouvé stocké dans les tubes, la résolution verticale des AirCores doit être recalculée avec les paramètres spécifiques du jour du vol pour le CO<sub>2</sub> et le CH<sub>4</sub>. Pour dégrader précisément les profils obtenus avec le AirCore-HR vers une autre résolution, il est en effet impératif de prendre en compte la répartition de la colonne d'air dans les AirCores de plus basse résolution durant le temps d'attente. Il faut donc calculer la résolution du AirCore basse résolution pour le bon délai d'attente après récupération, en considérant la pression maximale stockée dans le AirCore (différente de 1000 hPa) et la relation pression-altitude le long de la colonne d'air échantillonnée le jour du vol (différente de l'atmosphère standard).

La dégradation des profils du AirCore-HR est alors réalisée en effectuant une convolution avec une fenêtre Gaussienne dont la déviation standard correspond à la résolution verticale du AirCore basse résolution. Ainsi :

$$g(x) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{x^2}{2\sigma^2}\right) \quad (\text{IV.1})$$

où  $\sigma$  est la déviation standard (i.e la résolution verticale) à une altitude  $x$ .

On peut alors calculer une version "dégradée" du profil vertical du AirCore-HR dans la résolution d'un autre AirCore. Pour le CH<sub>4</sub>, à une position  $x_0$  donnée, on a :

$$X_{CH_4}(x_0) = \int CH_4(x)g(x - x_0)dx \quad (\text{IV.2})$$

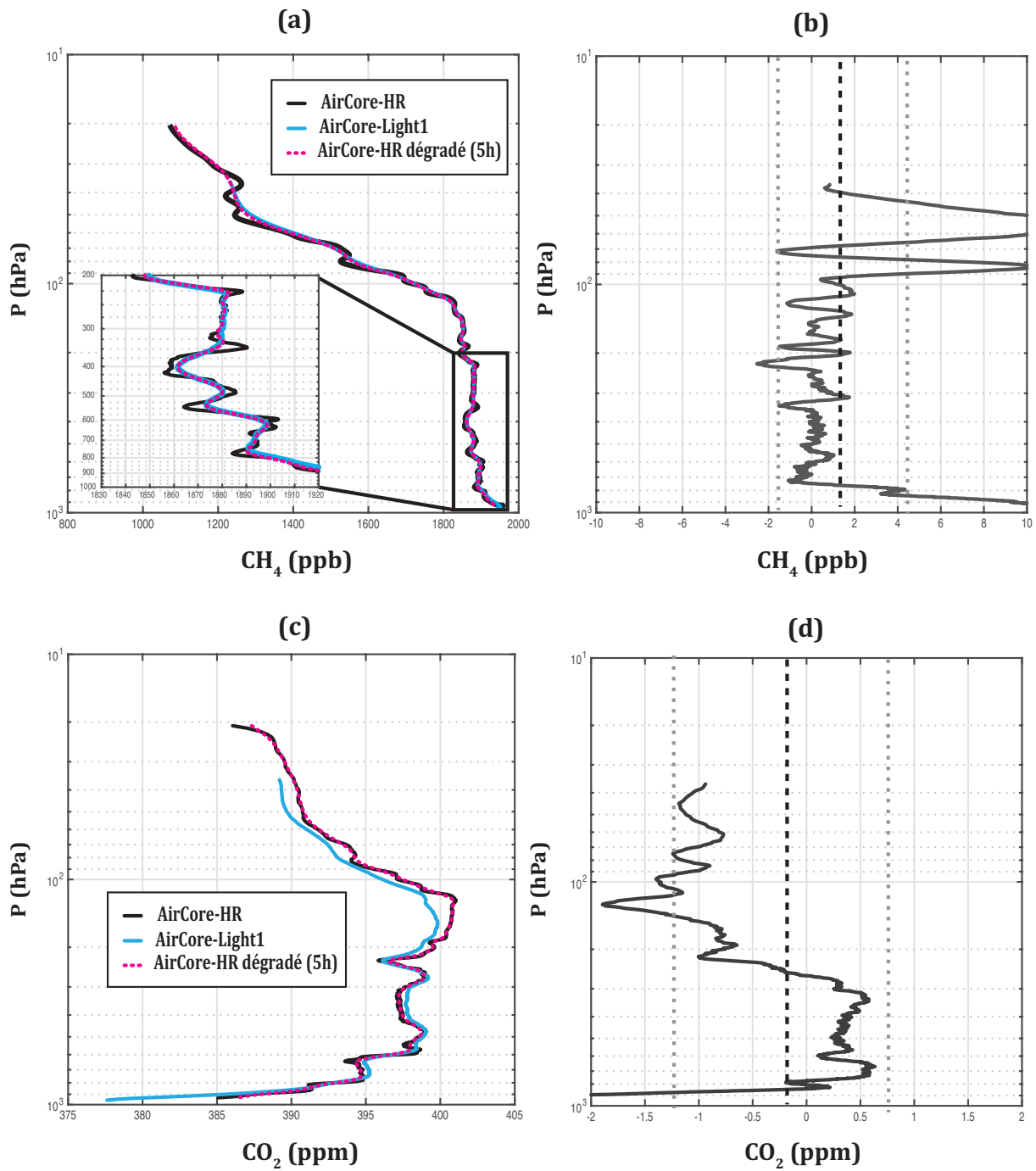
La version dégradée des profils de CO<sub>2</sub> est calculée de la même façon, en utilisant la résolution verticale théorique calculée pour le CO<sub>2</sub>.

Pour servir d'exemple, nous avons choisi de présenter la dégradation du profil du AirCore-HR mesuré lors du vol CLIMAT en 2015 vers la résolution du AirCore-Light1. L'analyse du AirCore-Light1 avait alors débuté 5 heures après l'atterrissage.

Les figures IV.13 (a) et (c) présentent respectivement les profils de CH<sub>4</sub> et de CO<sub>2</sub> du AirCore-HR en noir, du AirCore-HR dégradé à la résolution du AirCore-Light1 en rose pointillé et du AirCore-Light1 en bleu. Les figures IV.13 (c) et (d) présentent la différence entre le profil AirCore-Light1 mesuré et le profil AirCore-HR dégradé. Un trait pointillé noir indique alors la valeur moyenne de la différence et les deux traits plus fins en pointillés gris indiquent l'écart-type.

Dans le profil de CH<sub>4</sub> du AirCore-HR dégradé (Fig. IV.13 (a)), toutes les structures plus fines, capturées par la haute résolution, se retrouvent effacées. Ce profil dégradé coïncide alors parfaitement avec le profil du AirCore-Light à la fois en terme de structures et de valeur de rapports de mélange. Les différences entre le profil de CH<sub>4</sub> obtenu avec le AirCore-Light et le profil dégradé du AirCore-HR (Fig. IV.13 (b)) présentent un biais d'environ  $1.5 \pm 3$  ppb dans la troposphère. La variation moyenne est en accord avec les 3 ppb d'incertitude moyenne que l'on peut associer aux profils de CH<sub>4</sub>. Si l'on regarde de plus près, l'accord est excellent entre 800 et 100 hPa où le biais n'est plus que de  $0.2 \pm 1.6$  ppb. Dans cette partie du profil où les concentrations de méthane sont assez stables, la différence moyenne entre le profil du AirCore-HR dégradé et le AirCore-Light est nulle avec une variation des écarts de moins de 2 ppb entre les profils. Des différences fortes sont retrouvées là où de forts gradients verticaux sont observés (i.e dans la stratosphère et dans le cas de ce vol vers la surface). En se reportant à la figure IV.12, on retrouve que les différences observées entre les profils sont inférieures aux incertitudes annoncées.

Concernant les profils de CO<sub>2</sub> (Fig. IV.13 (c)), on retrouve que lorsque la plus faible résolution du AirCore-Light est prise en compte, les deux mesures de AirCores révèlent des structures très proches. Toutefois, un biais variable subsiste entre les profils (Fig. IV.13 (d)). La différence moyenne entre le AirCore-Light1 et le profil dégradé du AirCore-HR est de  $-0.2 \pm 1.0$  ppm. Pour le CO<sub>2</sub> où l'on veut mesurer précisément des variations le long de la colonne atmosphérique de l'ordre du ppm ces différences entre les profils sont assez importantes. Nous suspectons que les sécheurs de différentes tailles des différents AirCores ont pu affecté différemment les échantillons de CO<sub>2</sub> capturés. Nous avons donc fait l'expérience en 2016 de faire voler un AirCore sans sécheur. Cette expérience sera décrite en partie IV.5.2.



**FIGURE IV.13** – Dégradation des profils du AirCore-HR vers la résolution du AirCore-Light pour les profils mesurés lors du vol CLIMAT à Timmins le 23 Août 2015. (a) Profils de CH<sub>4</sub> du AirCore-HR, AirCore-HR “dégradé” et du AirCore-Light1. (b) Différence entre les profils de CH<sub>4</sub> du AirCore-HR “dégradé” et du AirCore-Light1. (c) Profils de CO<sub>2</sub> du AirCore-HR, AirCore-HR “dégradé” et du AirCore-Light1. (d) Différence entre les profils de CO<sub>2</sub> du AirCore-HR “dégradé” et du AirCore-Light1. Un trait pointillé noir indique alors la valeur moyenne de la différence entre le profil du AirCore-Light1 et le profil du AirCore-HR “dégradé”. Les deux traits plus fins en pointillés gris indiquent l’écart-type de cette moyenne

### IV.4.1.2 Impact d'un délai pour l'analyse

Dans le cadre d'un déploiement sous ballons météorologiques, des délais plus importants pourraient être rencontrés pour récupérer les AirCores en cas de difficultés avec une logistique moins importante que pour les campagnes Strato-Sciences. Pour observer la dégradation dans un AirCore-Light avec un délai plus long, nous avons choisi de tester lors de la campagne de 2016 l'impact du temps d'attente sur la résolution finale du AirCore. Ainsi, nous avons attendu 24 heures supplémentaires par rapport à l'analyse du AirCore-HR pour analyser l'échantillon prélevé par l'un des AirCores-Light. Le délai d'analyse du AirCore-HR était déjà de 6 heures après l'atterrissage portant le délai avant analyse de l'échantillon prélevé avec le AirCore-Light3 à 30 heures après l'atterrissage.

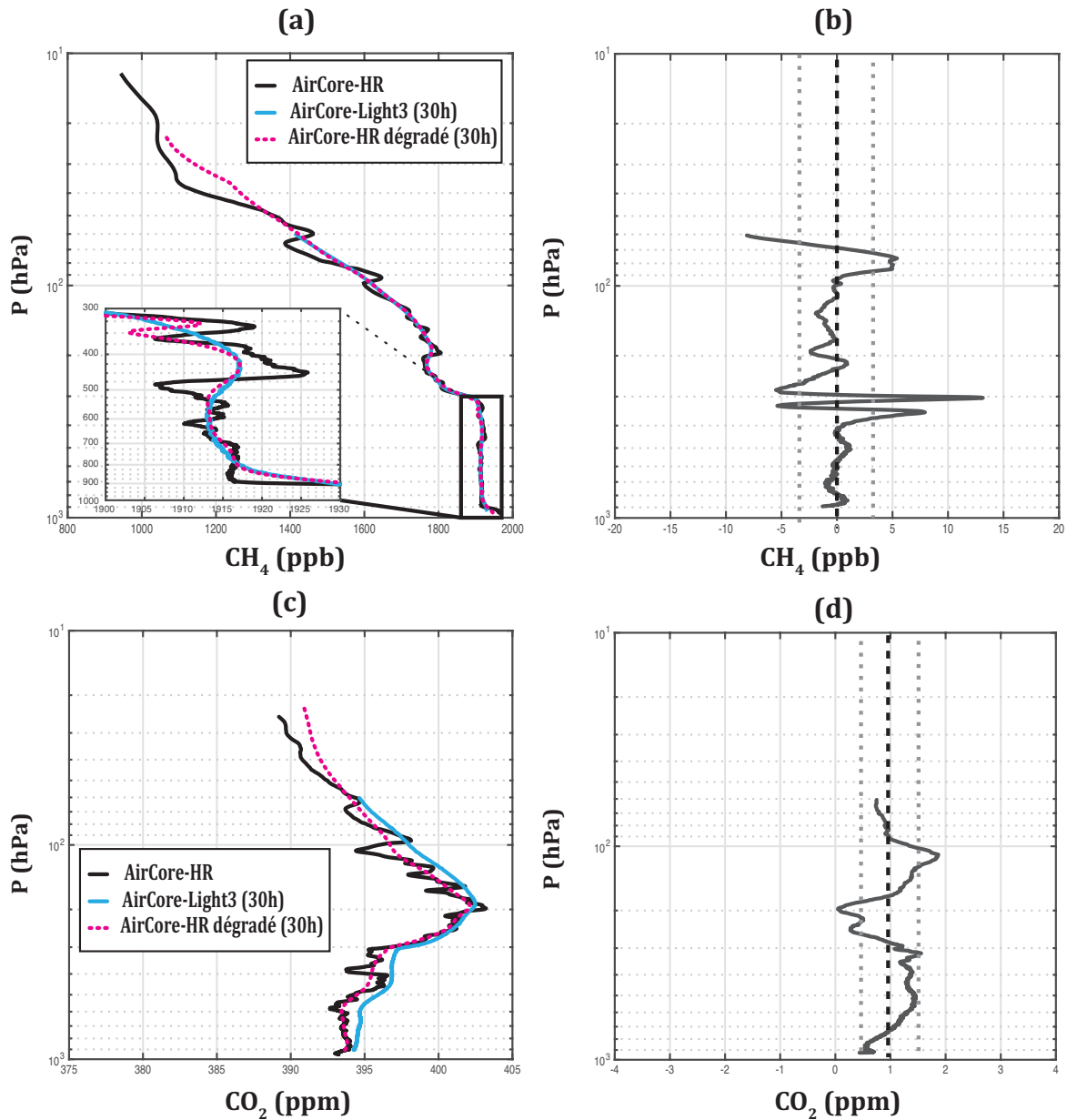
La figure IV.14 montre les résultats de cette expérience. En Fig. IV.14 (a) et (c) on retrouve respectivement les différents profils de  $\text{CH}_4$  et de  $\text{CO}_2$  et en Fig. IV.14 (b) et (d) on retrouve la différence entre les profils AirCore-Light3 et les profils AirCore-HR dégradé à la résolution AirCore-Light pour 30 heures de délai. A nouveau le profil du AirCore-HR est tracé en noir, le profil du AirCore-HR dégradé en rose pointillé et le profil avec lequel on compare est présenté en bleu clair. Un trait pointillé noir indique la valeur moyenne de la différence et les deux très plus fins en pointillés gris indiquent l'écart-type de cette moyenne.

Dans les profils obtenus avec le AirCore-Light3, les structures verticales les plus fines se retrouvent totalement effacées (Fig. IV.14 (a) et (c)). Comparé au profil du AirCore-HR, ces profils de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  ne permettent plus d'observer les petites structures verticales. Toutefois, les grandes variations caractéristiques le long du profil sont toujours présentes. Ainsi, la forte décroissance du  $\text{CH}_4$  et du  $\text{CO}_2$  dans la stratosphère et les variations progressives de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  dans la troposphère sont encore retrouvées.

La différence moyenne entre le profil de  $\text{CH}_4$  du AirCore-HR dégradé et celui du AirCore-Light3 est de  $-0.3 \pm 3,6$  ppb (Fig. IV.14 (c)). Globalement la différence entre les profils est très faible et confirme à nouveau le calcul de la résolution verticale. Une variation plus prononcée de la différence entre les profils de  $\text{CH}_4$  est marquée aux alentours de 300 hPa. Cette variation coïncide avec un fort gradient de  $\text{CH}_4$  retrouvé dans les profils à ce niveau. Les incertitudes associées aux profils verticaux de  $\text{CH}_4$  en 2016 (Fig. IV.12 (f)) présentent d'ailleurs un pic à ce niveau. Par ailleurs, ce fort gradient se retrouve positionné très proche de la cassure dans la résolution entre les deux tubes de diamètres différents du AirCore-Light situé ici vers 350 hPa. Ceci fait ressortir une difficulté à modéliser précisément la résolution à la transition entre deux tubes et se traduit par une variation de 5 ppb dans la différence entre les profils (Fig. IV.12 (a) et (b)).

Entre les profils de  $\text{CO}_2$ , la différence moyenne est de  $1 \pm 0.4$  ppm. En terme de structures la dégradation du profil de  $\text{CO}_2$  du AirCore-HR permet de retrouver la forme du profil du AirCore-Light3 ce qui contribue à valider la résolution théorique que l'on calcule. En revanche, on observe un biais entre les profils de  $\text{CO}_2$  différent de celui de l'année précédente. Ce biais reste toutefois de l'ordre d'1 ppm.

Le très bon accord entre les profils de  $\text{CH}_4$  du AirCore-HR dégradés vers une résolution plus basse résolution et les profils de  $\text{CH}_4$  mesurés par des AirCore-Light pour différents délais démontrent la validité du calcul de la résolution. A la résolution près, les mesures que révèlent les échantillons prélevés par différents AirCores sont identiques. Pour le  $\text{CO}_2$ , l'accord demeure bon en terme de structures mais les causes de biais entre les profils restent à préciser.



**FIGURE IV.14** – Dégradation des profils du AirCore-HR vers la résolution du AirCore-Light analysé avec un délai de 30 heures après l’atterrissage pour les profils mesurés lors du vol CLIMAT à Kiruna le 29 Août 2016. (a) Profils de  $\text{CH}_4$  du AirCore-HR, AirCore-HR “dégradé” et du AirCore-Light3. (b) Différence entre les profils de  $\text{CH}_4$  du AirCore-HR “dégradé” et du AirCore-Light3. (c) Profils de  $\text{CO}_2$  du AirCore-HR, AirCore-HR “dégradé” et du AirCore-Light3. (d) Différence entre les profils de  $\text{CO}_2$  du AirCore-HR “dégradé” et du AirCore-Light3. Un trait pointillé noir indique la valeur moyenne de la différence. Les deux traits plus fins en pointillés gris indiquent l’écart-type de cette moyenne.

### IV.4.2 Validation par comparaison avec d'autres instruments

L'emport des AirCores sur des nacelles multi-instruments, nous a offert l'opportunité de comparer les profils verticaux prélevés avec différents instruments à bord d'une même nacelle. Notamment, avec les instruments Pico-SDLA, des spectromètres à diodes laser qui permettent de mesurer le CO<sub>2</sub> et le CH<sub>4</sub> (Durry et al., 2004; Ghysels et al., 2011). Ces mesures hautes fréquences ont une résolution verticale plus grande que n'importe quel AirCore puisque des mesures sont acquises en quasi-continu. Différentes versions de ces instruments utilisant des diodes lasers dans des longueurs d'ondes sensible au CO<sub>2</sub>, au CH<sub>4</sub> ou à la vapeur d'eau sont développées par le GSMA avec la collaboration de la DT-INSU. Les mesures des différents constituants reposent alors sur l'inversion des nombreux spectres d'absorption acquis à chaque niveau de pression. Ces inversions sont réalisées en utilisant les connaissances *a priori* sur les spectres d'absorption issues de bases de données spectroscopiques ajustées aux conditions de pression et température ambiante.

Pour effectuer une comparaison avec les données AirCore, nous avons dégradé la résolution des profils acquis par les instruments Pico-SDLA à la résolution du AirCore-HR suivant le même principe que pour comparer deux AirCores (cf partie IV.4.1.1).

Les figures IV.15 (a), (c), et (e) présentent les comparaisons entre les mesures de CO<sub>2</sub> ou de CH<sub>4</sub> entre les instruments Pico-SDLA et le AirCore-HR lors de différents vols. Les figures IV.15 (b), (d), (f) présentent la différence entre les profils Pico-SDLA et les profils AirCore-HR. Comme pour les comparaisons de AirCores, un trait pointillé noir indique la valeur moyenne de la différence et deux traits plus fins en pointillés gris indiquent l'écart-type de cette moyenne.

Le premier cas (Fig. IV.15 (a) et (b)) présente la comparaison des mesures des profils de CH<sub>4</sub> entre le AirCore-HR et l'instrument Pico-SDLA CH<sub>4</sub> lors du vol "EdS-Stratéole" en 2014. Malheureusement, lors de ce vol les mesures Pico-SDLA n'ont eu lieu qu'à la montée faute de batterie suffisante pour aller jusqu'au bout du vol qui a duré 12 heures. Les profils mesurés par le Pico-SDLA CH<sub>4</sub> et le AirCore-HR ont donc été mesurés à 350 km et à près de 10 heures d'écart.

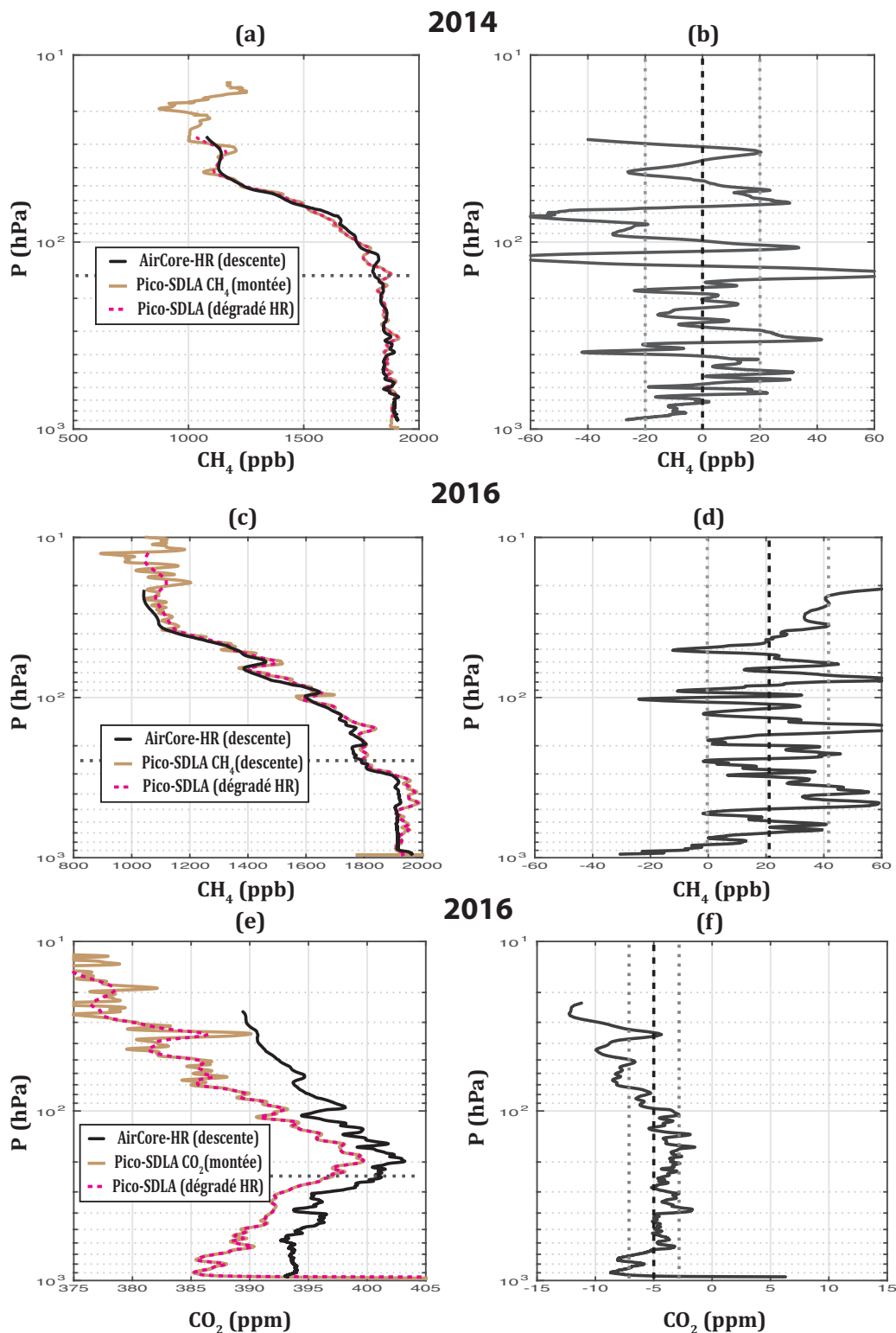
On ne peut donc que commenter qualitativement ces données. Bien que les structures verticales les plus fines ne coïncident pas parfaitement, les structures le long de la verticale sont positionnées de manière quasi identiques. Notamment, la pente qui marque la décroissance du CH<sub>4</sub> dans la stratosphère est retrouvée au même niveau. C'est un bon indicateur car malgré la distance de 350 km entre les profils on s'attend à retrouver des valeurs proches dans la stratosphère. Une plus petite structure, marquée entre 30 et 40 hPa est d'ailleurs retrouvée au même niveau par les deux profils. La valeur moyenne de la différence entre le profil Pico-SDLA dégradé et le profil AirCore-HR est de  $0,1 \pm 20,3$  ppb. Les valeurs retrouvées entre les mesures Pico-SDLA et AirCore-HR sont donc en moyenne très proches même si on retrouve des écarts importants (de l'ordre de 1 à 3 %).

Des comparaisons entre les mesures CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> obtenu avec l'analyse de l'échantillon prélevé par le AirCore-HR et les mesures des Pico-SDLA CH<sub>4</sub> et Pico-SDLA CO<sub>2</sub> lors du vol CLIMAT en 2016 sont ensuite présentées. Les mesures du Pico-SDLA CH<sub>4</sub> sont cette fois celles de la descente correspondent donc à l'air prélevé par le AirCore-HR. En revanche, les mesures du Pico-SDLA CO<sub>2</sub> sont celles de la montée (les données de la descente étant encore en cours de traitement). Dans le cas de ce vol à Kiruna il n'y a toutefois que 100 km et 3 heures entre la fin de la montée et l'atterrissage.

Sur les profils de CH<sub>4</sub> (Fig. IV.15 (c)), l'accord en terme de positionnement est excellent entre le AirCore-HR et les mesures du Pico-SDLA CH<sub>4</sub>. Dans la stratosphère, plusieurs structures bien marquées le long de la pente du CH<sub>4</sub> sont retrouvées exactement aux mêmes niveaux barométriques. Toutefois, en s'intéressant aux différences entre les courbes (Fig. IV.15 (d)), un biais de l'ordre de  $20,3 \text{ ppb} \pm 21 \text{ ppb}$  est retrouvé sur la colonne. L'écart-type de la différence entre les profils est similaire à celui retrouvé entre les profils de CH<sub>4</sub> entre Pico-SDLA et AirCore-HR à Timmins en 2014 mais cette fois un biais s'y ajoute.

Pour les profils de CO<sub>2</sub> (Fig. IV.15 (f)), une variation similaire des concentrations de CO<sub>2</sub> le long de la verticale est retrouvée entre les mesures Pico-SDLA CO<sub>2</sub> et les mesures AirCore-HR. Les structures sont retrouvées aux mêmes positions par les deux instruments mais un biais moyen de  $-5,13 \pm 1,94$  ppm apparaît. Les valeurs mesurées par le Pico-SDLA CO<sub>2</sub> sont plus faibles que celles retrouvées à partir de l'air échantillonné par le AirCore-HR.

Les comparaisons entre les profils obtenus avec les Pico-SDLA et le AirCore-HR montrent qu'un bon



**FIGURE IV.15** – Comparaison entre les profils de CH<sub>4</sub> mesurés par des AirCores et le Pico-SDLA CH<sub>4</sub> lors du vol “EdS-Stratéole” de 2014. (a) Profils verticaux de CH<sub>4</sub> du AirCore-HR, du AirCore-GUF et du Pico-SDLA, (b) Différence entre le profil du Pico-SDLA et du AirCore-HR, Comparaison entre les profils de CH<sub>4</sub> mesurés par des AirCores et le Pico-SDLA CH<sub>4</sub> lors du vol CLIMAT de 2016. (a) Profils verticaux de CH<sub>4</sub> du AirCore-HR, du AirCore-HR dégradé et du Pico-SDLA, (b) Différence entre le profil du Pico-SDLA et du AirCore-HR. Un trait pointillé noir indique la valeur moyenne de la différence. Les deux traits plus fins en pointillés gris indiquent l’écart-type de cette moyenne.

accord est retrouvé en terme de structures. Les variations des constituants le long de la verticale sont retrouvées de manière très proche ce qui conforte le positionnement vertical des AirCores. Toutefois, des biais existent entre les mesures des instruments. Ceux-ci restent de l'ordre du % et ces biais ne vont pas dans le même sens pour le CO<sub>2</sub> et le CH<sub>4</sub> ni même suivant les campagnes. Ces comparaisons illustrent que les plates-formes multi-instruments sont un support privilégié pour embarquer et tester des instruments différents mesurant les mêmes paramètres atmosphériques.

Les biais pourraient provenir d'infimes erreurs dans la mesure de pression ou de température ambiante servant à inverser les mesures Pico-SDLA. Le moindre biais ou erreur dans ces mesures se répercute alors directement sur les valeurs finales en sortie. Cela peut sembler anodin mais les mesures des différents capteurs de pression à bord de la nacelle présentent des écarts de l'ordre de 1-2 hPa et la mesure de la température ambiante est une mesure très délicate à réaliser. Suivant les côtés de la nacelle exposé au rayonnement solaire ou non des températures qui diffèrent de plus de 10°C peuvent être retrouvées par sondes situées à moins d'un mètre d'écart. Par ailleurs, des biais supplémentaires peuvent provenir des paramètres spectroscopiques utilisés.

Côté AirCore, les influences extérieures sont limitées puisque l'analyse de l'air échantillonné est réalisé au sol dans la cellule de mesure du Picarro maintenu dans des conditions de pression et de température constante. Les concentrations sont ensuite ramenées à l'échelle WMO grâce à la mesure des gaz de référence avant et après l'analyse.

Pour évaluer précisément les concentrations, il faudrait faire voler ces instruments conjointement avec un système qui capture l'air à plusieurs niveaux de pression dans des flasques indépendantes dont l'analyse en laboratoire donnerait une information très précise de la concentration en CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> en plusieurs points le long de la verticale. C'est le seul moyen de véritablement comparer les mesures de ces instruments.

Pour les mesures de 2016, des comparaisons supplémentaires n'ont pas encore pu être réalisées. Notamment, avec les mesures effectuées par les instruments AMULSE. En 2015, lors du vol CLIMAT, ces systèmes avaient rencontré des difficultés avec le module de communication de la nacelle du CNES compromettant les mesures. D'autre part, la mesure de l'air échantillonné par un AirCore lancé indépendamment par la collaboration FMI/CIO depuis Sodankyla devrait également préciser les valeurs de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> retrouvés.

## IV.5 Leçons apprises à partir des campagnes

Ces premières campagnes de mesures ont été un terrain d'expérimentation unique où nous avons beaucoup appris à la fois techniquement et théoriquement dans le traitement des données de AirCore.

### IV.5.1 L'importance du profil de vol

En Fig. IV.11, une partie des données ne sont pas présentées dans les profils de CO<sub>2</sub> obtenus avec les AirCores lors du vol "EdS-Stratéole" en 2014. Ces parties des profils de CO<sub>2</sub> ont été altérées et cette anomalie dans les concentrations de CO<sub>2</sub> a pu être reliée directement au profil particulier de ce vol.

La figure IV.16 présente en vis à vis le profil du vol "Eds-Stratéole" et les profils de CO<sub>2</sub> issus de l'analyse des échantillons prélevés par les différents AirCores. La partie des profils qui est détectée comme une altération est présentée en pointillé, elle avait été retirée des profils finaux présentés en figures IV.11 et IV.10. On constate que cette anomalie dans les rapports de mélange de CO<sub>2</sub> apparaît au niveau où le long plateau a été marqué. Les concentrations de CO<sub>2</sub> retrouvées dans les AirCores descendent alors jusqu'à 360 ppm dans certains cas (soit des concentrations de CO<sub>2</sub> que l'on ne retrouve plus dans l'atmosphère depuis plus de 20 ans).

Nous suspectons un effet du perchlorate de magnésium utilisé comme sécheur qui a pu interagir avec le CO<sub>2</sub> lors de cette phase de vol particulière. En effet, le perchlorate de magnésium placé à l'extrémité ouverte du AirCore est légèrement réactif au CO<sub>2</sub> et inerte au CH<sub>4</sub>. En relation avec une longue exposition du même air au sécheur durant le long plateau, combiné à des effets d'entrée et de sortie d'échantillon lors d'oscillations de la nacelle autour de 80 hPa, le perchlorate de magnésium pourrait avoir impacté le

rapport de mélange du  $\text{CO}_2$  échantillonné par le AirCore-HR. Le sécheur étant inerte au  $\text{CH}_4$ , cet effet n'est pas perçu sur le profil de  $\text{CH}_4$ .

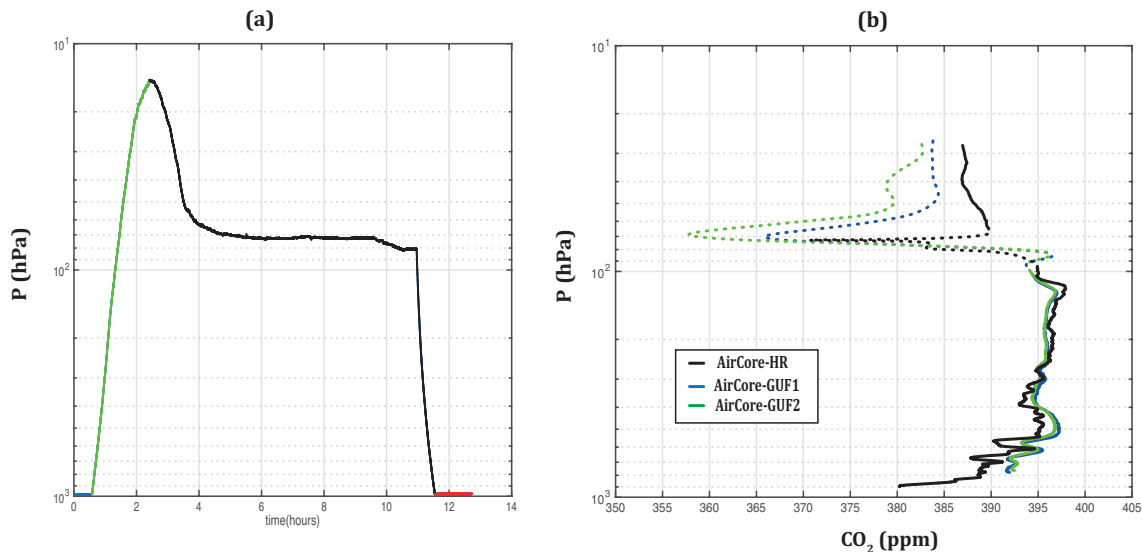


FIGURE IV.16 – Importance du plan de vol.

Ce problème a été retrouvé dans tous les AirCores lors de ce vol. Pour les AirCore-GUF de plus basse résolution sur ce vol, ce problème nous a amené à considérer que les mesures de  $\text{CO}_2$  de l'échantillon prélevé à une pression inférieure à 200 hPa sont affectées par un mélange avec des concentrations de  $\text{CO}_2$  altérées.

D'autres hypothèses pour expliquer cette anomalie dans les concentration de  $\text{CO}_2$  ont été évoquées. Notamment, un impact possible de réactions chimiques entre le dégazage d'hélium par le ballon lors de remontées dans la traînée du ballon et l'air ambiant ou l'absorption de  $\text{CO}_2$  par des éléments polystyrène de la nacelle entraînant l'échantillonnage d'air aux concentrations modifiées lors de cette longue phase de plateau par les AirCores. Nous n'avons malheureusement pas de mesures de Pico-SDLA  $\text{CO}_2$  durant cette phase (car les instruments n'avaient plus de batteries) pour nous informer si tout l'air ambiant est pollué ou si le problème est local au niveau des AirCores. Toutefois, il est clair que toutes les hypothèses quelles qu'elles soient incriminent directement la longue phase de plateau.

L'anomalie dans les données de  $\text{CO}_2$  présentées permet d'affirmer que pour les AirCores une descente continue sans marquer d'arrêt, permettant d'avoir un flux continu à l'entrée, est nécessaire. Cela justifie que des profils avec des descentes continues aient été demandés lors de vol Strato-Sciences 2015 et 2016 auxquels des AirCores ont participé. Ce critère a d'ailleurs été pris en compte par le CNES lors de ces campagnes et nous n'avons pas retrouvé de problème similaire dans les profils de  $\text{CO}_2$  acquis en 2015 ou 2016 (Fig. IV.11). Par ailleurs ce type de profil de vol particulier n'est possible qu'avec des BSO et ne se produira pas lors de vols sous ballons météorologiques.

## IV.5.2 Rôle du sécheur

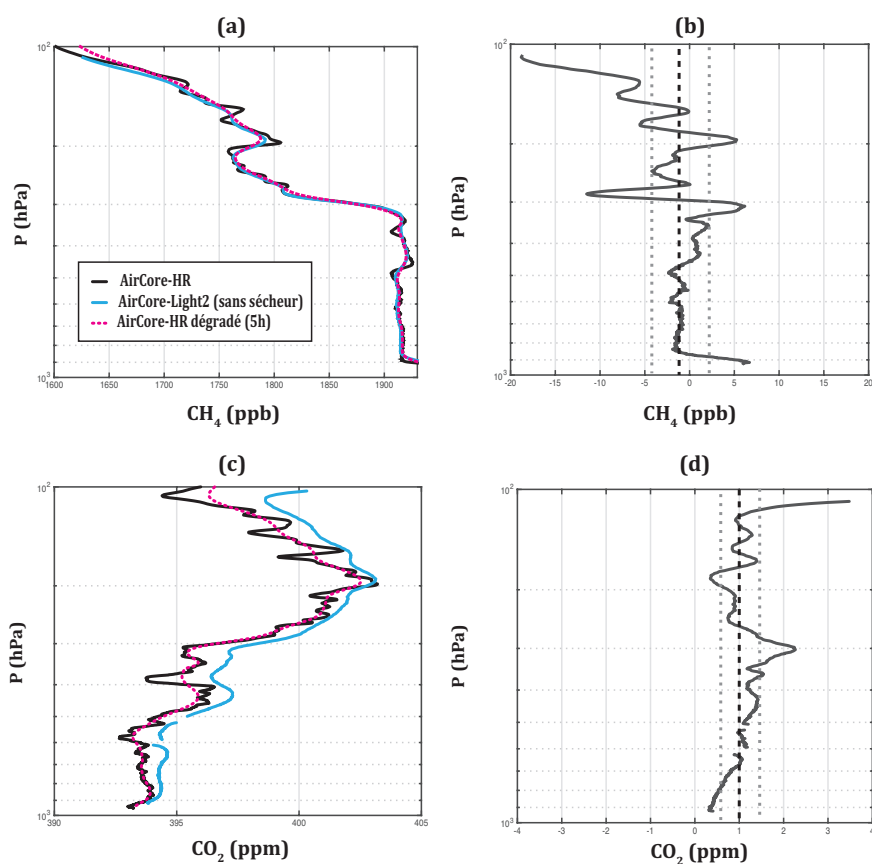
Au-delà du cas spécifique d'un profil de vol particulier, la question de l'utilisation d'un sécheur fait l'objet d'un débat au sein de la communauté. En effet, nous suspectons un effet plus général du perchlorate de magnésium sur les concentrations de  $\text{CO}_2$  prélevées par différents AirCores. Cet élément est composé d'un tube de 10 cm, rempli de perchlorate de magnésium. Il a vocation à absorber l'humidité de l'air entrant dans le AirCore pour éviter des interactions entre la vapeur d'eau qui pourrait condenser et le  $\text{CO}_2$  dans le tube. Des sécheurs sont placés à l'entrée de tous les AirCores volant actuellement pour limiter le taux d'humidité de l'air entrant.

Le même produit est utilisé pour préparer les sécheurs de l'ensemble des AirCores, à chaque vol, mais il est impossible de préparer deux sécheurs strictement identiques. En effet, le perchlorate de magnésium se



présente sous forme de granules de différentes tailles que l'on place dans des tubes de 10 cm pour former un sécheur. Placé à l'entrée des différents AirCores les différents sécheurs peuvent avoir des comportements légèrement différents suivant le temps d'exposition que les granules ont eu à l'air ambiant et du taux d'humidité qu'elles ont déjà absorbé. Par ailleurs nous ne savons pas exactement comment le perchlorate de magnésium qui s'est stabilisé en surface avec le taux d'humidité de l'air ambiant à la pression de surface, réagit et se rééquilibre dans un environnement à plus basse pression avec de l'air ambiant quasiment sec comme c'est le cas de la stratosphère. Il est suspecté que d'un sécheur à l'autre on puisse avoir de subtils effets sur les concentrations de  $\text{CO}_2$  prélevées par les AirCores. Ces effets ne sont vus que sur le  $\text{CO}_2$  et pas sur le  $\text{CH}_4$  car le perchlorate de magnésium est inerte avec ce gaz.

Si ces effets sont avérés, cette hypothèse pourrait expliquer les biais de l'ordre de 1 ppm retrouvés entre les profils de différents AirCores ayant volé conjointement (Fig. IV.11). Un test en surface, dans des conditions d'humidité et de pression de surface, ne renseigne pas sur les effets possibles du sécheur lors d'un vol stratosphérique. Bénéficiant de l'emport de plusieurs AirCores sur de mêmes nacelles, lors des vols Strato-Sciences, nous avons fait voler un AirCore-Light sans sécheur en 2016. L'idée est que l'air prélevé ne sera pas contaminé par une interaction avec de la vapeur d'eau parce qu'on prélève l'échantillon d'air en descente depuis la stratosphère où l'air est sec à la basse troposphère et où l'humidité n'augmente sensiblement qu'en arrivant à la surface. L'air prélevé est donc majoritairement sec avant d'arriver progressivement dans des couches d'air humides. La question est de savoir si les mesures de  $\text{CO}_2$  troposphériques seront impactées par cette humidité où si le Picarro saura corriger la variation d'humidité importante dans ces couches de l'échantillon.



**FIGURE IV.17** – Comparaison des rapports de mélange mesurés avec l'air échantillonné par deux AirCores. L'un ayant volé avec sécheur et l'autre sans sécheur à l'entrée. Les profils de  $\text{CO}_2$  et de  $\text{CH}_4$  sont respectivement présentés à gauche et les différences entre les profils sont présentées à droite. Un trait pointillé noir indique la valeur moyenne de la différence. Les deux traits plus fins en pointillés gris indiquent l'écart-type de cette moyenne.

La figure IV.17 présente les résultats du vol du AirCore-Light sans sécheur en 2016. Ils sont comparés avec les profils de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub> du AirCore-HR qui ont été dégradés à la résolution du AirCore-Light pour un délai de 5 heures entre l'atterrissage et l'analyse. La comparaison est limitée à la zone de 100 hPa à la surface car suite à une erreur de manipulation nous avons identifié que les 95 premiers hPa d'air échantillonnés ont été perdus (cf IV.2).

La comparaison des profils de CH<sub>4</sub> révèle que la différence moyenne entre le profil du AirCore-HR dégradé et le profil du AirCore sans sécheur est de  $-0.9 \pm 3.3$  ppb. Ces valeurs montrent que les mesures de CH<sub>4</sub> retrouvées sont quasiment identiques et correspondent aux incertitudes moyennes que l'on retrouve sur les profils de CH<sub>4</sub>. Sans sécheur les résultats de comparaisons sont aussi bon que les résultats pour des AirCore avec sécheurs (cf partie IV.4.1).

C'est surtout la comparaison de CO<sub>2</sub> qui nous intéresse (Fig. IV.17 (c) et (d)). La différence moyenne entre les profils est de  $1 \pm 0.45$  ppm. En Fig. IV.17 (c) on voit bien que les structures sont retrouvées de manière similaire entre le profil du AirCore-HR dégradé et le profil du AirCore-Light sans sécheur mais le biais de 1 ppm apparaît nettement. Toutefois, nous avons observé le même biais entre les mesures AirCore-HR et le AirCore-Light3 analysé avec 30 h de délai. Ces deux systèmes avaient un sécheur et présentent un biais entre les concentrations de CO<sub>2</sub> du même ordre ( $1 \pm 0.4$  ppm) (cf partie IV.4.1). Il n'y a donc pas de biais entre le AirCore-Light3 avec sécheur et le AirCore-Light2 ayant volé sans sécheur.

Ces comparaisons montrent que sans sécheur on retrouve les mêmes mesures de CH<sub>4</sub> et des mesures très proches de CO<sub>2</sub>. Il est difficile de conclure sur les effets du sécheur puisque les deux mesures sans sécheurs ne sont pas précisément identiques. Elles démontrent tout de même que sans utiliser de sécheur, des mesures quasiment identiques des concentrations sont retrouvées, ce qui tend à démontrer que l'on pourrait s'affranchir de l'utilisation d'un sécheur. Afin de répondre complètement à la question, il conviendrait de montrer que deux AirCores sans sécheurs permettent de retrouver exactement les mêmes concentrations de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub>. Ce test sera fait avec des AirCore-Light identiques lors de la prochaine campagne Strato-Sciences.

## IV.6 Conclusion

Ce chapitre a été l'occasion de présenter l'ensemble des profils verticaux acquis par des AirCores lors des campagnes Strato-Sciences. Un très bon accord est retrouvé entre les différents AirCores sur les profils de CH<sub>4</sub> (à une précision de quelques ppb sur la colonne). Entre les profils de CO<sub>2</sub> des petites différences de quelques ppm peuvent apparaître malgré tout l'accord est bon en terme de structures. Ces résultats démontrent la répétabilité des mesures avec les AirCores. Les incertitudes associés à chacun des profils ont été calculées. Sur toute la colonne celles-ci sont de l'ordre de 3 ppb (moins de 0,2 %) pour le CH<sub>4</sub> et de 0.3 ppm (moins de 0,1 %) pour le CO<sub>2</sub> même si ponctuellement lors de forts gradients, un décalage de positionnement vertical peut entraîner une incertitude importante.

La validation du calcul de la résolution verticale a été réalisée en dégradant la résolution verticale du AirCore-HR pour comparer les profils avec des AirCores de plus basse résolution. L'accord retrouvé entre les profils du AirCore-HR ainsi "dégradés" et les profils obtenus par l'analyse des échantillons prélevés par des AirCores de plus basse résolution est excellent et du même ordre que les incertitudes sur les profils. Dans ce cadre, nous avons testé les effets d'un temps d'attente prolongé sur le mélange de l'échantillon dans un AirCore. Cette expérience a permis de valider le calcul de résolution théorique et le potentiel que conserve les AirCores avec un délai plus long. Par ailleurs, les profils verticaux de AirCore-Light démontrent qu'ils conservent un potentiel intéressant même pour des délais plus long. Bien que beaucoup d'informations sur la variabilité verticale soient perdues, la tendance des variations le long de la colonne atmosphérique est toujours retrouvée de manière fiable.

Une comparaison avec des mesures indépendantes des spectromètres Pico-SDLA embarqués sur les mêmes nacelles, nous a permis de conforter le positionnement vertical des mesures réalisées par les AirCores. Un très bon accord est retrouvé en terme de structure entre les profils AirCore-HR et les profils Pico-SDLA ramenés à la résolution du AirCore-HR. Des différences de l'ordre de 1-2% sont retrouvées entre les mesures. Ces différences pourraient provenir d'erreurs dans les contenus inversés à partir des spectres mesurés par les instruments Pico-SDLA qui sont extrêmement sensibles à la moindre erreur sur la mesure de température ou de pression ou à un problème dans le traitement des AirCores. Une expérience

idéale serait de faire voler ces instruments conjointement avec un système qui capture des flasques d'air à des pressions définies dont la concentration en  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  pourrait être très précisément déterminée en laboratoire.

Pour finir, les premières mesures réalisées lors de ces trois premières campagnes nous ont permis de tirer de nombreux enseignements. Nous avons pu constater un défaut dans les rapports de mélange de  $\text{CO}_2$  des échantillons prélevés dans les AirCores lors du premier vol en 2014. Cette altération dans les mesures de  $\text{CO}_2$  est retrouvée uniquement à l'altitude où un plateau a été marqué en vol. Ceci nous a permis de réaliser que pour un échantillonnage optimal les AirCores doivent réaliser une descente continue sans marquer de pauses et surtout pas de phases de remontées. Deuxièmement, nous avons testé en 2016 le vol d'un AirCore sans sécheur, pour vérifier si l'on pouvait s'affranchir de cet élément qu'on suspecte interagir avec le  $\text{CO}_2$ . Les résultats ont montré que, dans ce cas, on retrouve précisément les mesures de  $\text{CH}_4$  et les mesures de  $\text{CO}_2$  avec un écart qui n'est pas plus important qu'entre deux AirCores avec sécheur. Il semble donc possible de faire voler sans risque des AirCores sans sécheur et pour valider complètement ces mesures il faudrait vérifier que deux systèmes sans sécheurs permettent de retrouver des mesures de  $\text{CO}_2$  identiques, ce qui sera fait lors de la campagne Strato-Sciences 2017.



# Chapitre V

## Apports des AirCores pour la validation de missions spatiales et l'évaluation des modèles

### Sommaire

---

<b>V.1</b>	<b>Introduction . . . . .</b>	<b>91</b>
<b>V.2</b>	<b>Les estimations de CH<sub>4</sub> avec l'instrument IASI . . . . .</b>	<b>92</b>
V.2.1	IASI et AMSU à bord de Metop. . . . .	92
V.2.2	Les estimations de CH <sub>4</sub> . . . . .	92
V.2.3	Comparaison avec des modèles . . . . .	94
<b>V.3</b>	<b>Apport des mesures aéroportées pour la validation des mesures spatiales .</b>	<b>98</b>
V.3.1	Les profils de CH <sub>4</sub> mesurés lors du projet HIPPO . . . . .	98
V.3.2	Évaluation des estimations IASI. . . . .	100
<b>V.4</b>	<b>Apport des AirCores à la validation satellite et à l'évaluation des modèles.</b>	<b>104</b>
V.4.1	Les profils AirCore disponibles . . . . .	105
V.4.2	Évaluation des estimations de CH <sub>4</sub> IASI . . . . .	106
V.4.3	Interprétation des profils verticaux issus de modèles de transport . . . . .	107
<b>V.5</b>	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>111</b>

---

### V.1 Introduction

Au fil des chapitres précédents, nous avons présenté le principe du AirCore et le traitement des données associé qui permet d'aboutir aux profils verticaux de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> à partir des mesures des concentrations de l'échantillon d'air atmosphérique prélevé. Nous avons ensuite introduit l'ensemble des profils mesurés au cours des trois campagnes Strato-Sciences 2014, 2015 et 2016.

Dans ce dernier chapitre, nous allons nous intéresser à ce que peuvent apporter les profils verticaux mesurés avec des AirCores à la validation d'estimations spatiales et à l'évaluation des simulations réalisées par les modèles de chimie-transport atmosphérique. Afin de faire ressortir la nouveauté apportée par les profils verticaux issus de AirCores, nous allons mettre ce travail dans le contexte plus général de l'utilisation des données satellites dans une procédure d'inversion des flux. Une procédure d'inversion des flux fait appel à deux éléments essentiels : (i) des observations, précises, continues et diversifiées rendant compte de la réalité de la composition atmosphérique, (ii) des modèles de chimie et transport atmosphérique capables de simuler correctement la composition atmosphérique (cf. chapitre I). Avant de prendre en compte des données d'observations nouvelles dans une procédure d'inversion, il est nécessaire de comparer les simulations issues des modèles de chimie-transport aux observations afin d'en comprendre

les éventuelles différences lorsque des écarts importants sont observés. Pour comprendre et interpréter les différences, il faut d'une part valider les observations spatiales et d'autre part évaluer le transport mis en œuvre par les modèles de chimie transport. Au cours de ce chapitre, nous montrerons que les données nouvelles apportées par les AirCores s'inscrivent au cœur de ces enjeux. Ceci nous permettra de présenter les étapes successives de la validation satellite habituellement mise en œuvre et de tester le comportement de modèles de grande échelle en 3 dimensions incluant le transport d'espèces chimiques.

Pour effectuer ce travail, nous prendrons l'exemple des estimations de  $\text{CH}_4$  réalisées avec l'instrument IASI. Ainsi, dans une première partie (section V.2), les estimations actualisées de  $\text{CH}_4$  réalisées au LMD avec l'instrument IASI seront présentées et nous analyserons comment ces estimations se comparent aux modèles de transport et chimie atmosphérique (dans cette étude nous utiliserons les simulations issues des modèles TM5 et LMDz). Nous montrerons alors quel rôle peuvent jouer les mesures des campagnes aéroportées pour évaluer les estimations  $\text{CH}_4$  IASI (section V.3). Ensuite, un jeu de profils verticaux de AirCores du LMD complété par des mesures régulières de AirCores à Sodankyla sera utilisé pour évaluer les estimations de colonnes partielles de  $\text{CH}_4$  réalisées avec l'instrument IASI (section V.4). Cette partie sera également l'occasion de comparer les profils AirCores avec ceux issus des modèles de transports (LMDz et TM5) ou de prévisions (C-IFS). Enfin, nous terminerons ce chapitre en présentant les conclusions de ce travail.

## V.2 Les estimations de $\text{CH}_4$ avec l'instrument IASI

### V.2.1 IASI et AMSU à bord de Metop

L'instrument IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer), développé par le CNES en collaboration avec EUMETSAT, est un interféromètre de Michelson couvrant le domaine spectral infrarouge sur l'intervalle spectral  $645\text{-}2760\text{ cm}^{-1}$  ( $15.5\text{ à }3.63\text{ }\mu\text{m}$ ), avec une résolution spectrale de  $0.5\text{ cm}^{-1}$  apodisée. Sa résolution spatiale est de 12 km au nadir, pour une fauchée de 2600 km. Déployé dans le cadre du programme EPS-Metop de satellites météorologiques européens en orbite polaire, IASI est embarqué sur la plateforme Metop-A depuis octobre 2006 et sur la plateforme Metop-B depuis septembre 2012. Un 3e exemplaire sera embarqué à bord de Metop-C dont le lancement est prévu en octobre 2018. Près de 20 années d'observations par IASI seront donc disponibles sur la durée du programme. La suite sera assurée par la mission IASI-Nouvelle Génération (IASI-NG), dont le lancement est prévu à bord des 3 satellites Metop-SG-A successifs en 2021, 2028 et 2035 (Crevoisier et al., 2014).

Au-delà de sa contribution à la prévision numérique du temps, IASI a permis de mettre en évidence la possibilité de mesurer ou de détecter une gamme très vaste de composés chimiques et climatiques grâce aux observations dans l'infrarouge thermique ( $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{O}_3$ ,  $\text{SO}_2$ ,  $\text{NH}_3$ , aérosols, etc.) (Hilton et al., 2012). L'extraordinaire stabilité spectrale et radiométrique de IASI permet d'envisager un suivi optimal sur le long terme de l'ensemble de ces variables. Dans la suite, nous allons plus particulièrement nous intéresser aux estimations de  $\text{CH}_4$  réalisées au LMD avec l'instrument IASI.

A bord des satellites Metop, on trouve également l'instrument AMSU-A (Advanced Microwave Sounding Unit). AMSU-A est un radiomètre micro-ondes qui mesure le rayonnement ambiant à 15 fréquences discrètes entre 23-90 GHz. Dans cette gamme de fréquences, les bandes d'absorption de l'oxygène sont utilisées pour sonder la température tandis que les fenêtres spectrales renseignent sur la température de surface et l'émissivité.

### V.2.2 Les estimations de $\text{CH}_4$

Les estimations de  $\text{CH}_4$  sont réalisées à l'aide d'une méthode d'inférence non linéaire basée sur des réseaux de neurones (Crevoisier et al., 2009b; Crevoisier et al., 2013) initialement développée pour réaliser des estimations de  $\text{CO}_2$  (Chédin et al., 2003; Crevoisier, 2004; Crevoisier et al., 2009a). Le cœur de la méthode consiste à combiner les observations réalisées par IASI, qui sont sensibles à la fois à la température atmosphérique et au  $\text{CH}_4$ , aux observations réalisées par l'instrument AMSU-A dans le domaine des micro-ondes qui ne sont, elles, sensibles qu'à la température. L'utilisation des deux domaines spectraux permet ainsi de décorréler les signaux température et gaz dans les radiances IASI.

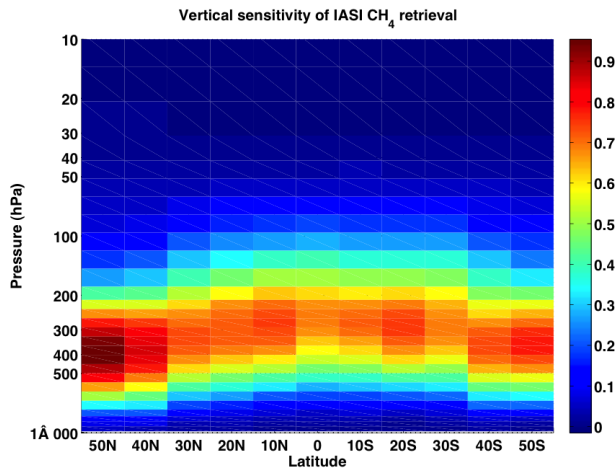
Les estimations sont réalisées à la résolution spatiale de AMSU (40 km au nadir). En effet, les mesures des deux instruments sont synchronisées et centrées sur le même champ d'observation. Un spot AMSU comprend 4 spots IASI. Les instruments réalisent un balayage transversal continu donnant accès à 15 champs de vue différents de part et d'autre de la trajectoire du satellite (Fig. V.1), permettant d'accéder à des mesures le long d'une fauchée de 2600 km.

Les champs de méthane retrouvés sont des colonnes intégrées partielles de méthane, couvrant la moyenne troposphère. Chaque estimation est caractérisée par une fonction de poids associée (équivalent du noyau d'estimation de l'estimation optimale) qui donne la contribution des variations de CH<sub>4</sub> dans chaque couche atmosphérique dans la colonne intégrée finale.

Celle-ci peut se mettre sous la forme

$$\bar{y}(\bar{x}) = \frac{\int_{P_{surf}}^0 f(P)c(\bar{x}, P)dP}{\int_{P_{surf}}^0 f(P)dP} \quad (\text{V.1})$$

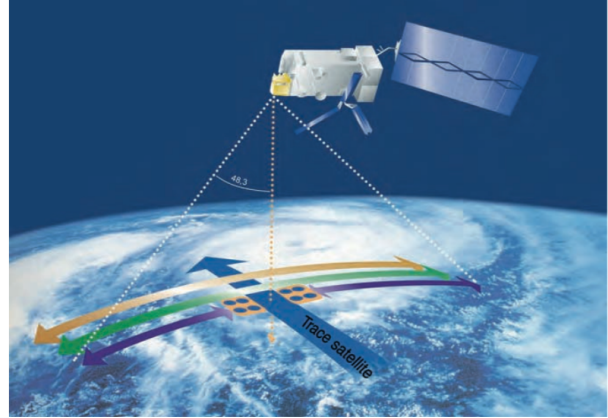
où P représente la pression à un niveau donné,  $c(\bar{x}, P)$ , la concentration à la pression P, et  $f(P)$ , la fonction de poids de CH<sub>4</sub> de l'observation.



**FIGURE V.2** – Fonction de poids verticale associée aux estimations de CH<sub>4</sub> IASI en fonction de la latitude ( $\text{ppb} \cdot \text{ppb}^{-1}$ ).

Plus de 9 années (depuis Juillet 2007) d'observations réalisées par les instruments IASI et AMSU ont été interprétées en terme de colonnes intégrées de CH<sub>4</sub> dans la moyenne atmosphère (Fig V.3). La comparaison des mesures réalisées à la surface et des estimations IASI a permis de montrer que IASI était capable d'estimer le taux de croissance du méthane à l'échelle globale et régionale, ouvrant ainsi la voie à un suivi sur le long terme des tendances de ce gaz à effet de serre particulièrement important.

Lors du début de cette thèse, les estimations de CH<sub>4</sub> n'étaient réalisées que dans la région tropicale (Crevoisier et al., 2013). Nous avons contribué à l'extension des estimations aux hautes latitudes. Ce



**FIGURE V.1** – Acquisition par balayage transversal et champ de vue des observations IASI. Vue d'artiste du satellite Metop-A. © CNES

La sensibilité maximale des estimations est retrouvée aux alentours de 250 hPa ( $\sim 10$  km), avec une contribution principalement entre 100 et 500 hPa (15 et 5 km) dans les tropiques et descend vers 450 hPa ( $\sim 8$  km), avec une contribution principale de l'intervalle 200 et 600 hPa (12 et 4 km) aux hautes latitudes (Fig. V.2).

Les estimations sont effectuées uniquement dans des conditions de ciel clair (pas de nuages, ni d'aérosols), sur terre et sur mer, en matinée et en soirée (9 :30 / 21 :30 heure locale).

Les estimations de CH<sub>4</sub> du LMD sont assimilées quotidiennement dans le système C-IFS de l'ECMWF afin de fournir des prévisions 3D de méthane dans le cadre du Service Atmosphère de Copernicus (CAMS) (Massart et al., 2014). Elles ont également été récemment retenues par EUMETSAT pour devenir le produit de niveau 2 officiel pour IASI.

travail a particulièrement concerné le choix de canaux de mesure adapté aux estimations dans les régions extratropicales qui se caractérisent : (i) par une vapeur d'eau plus faible, et donc une interaction réduite entre les signaux méthane et vapeur d'eau dans les radiances (point positif) ; (ii) une plus grande variabilité de la température troposphérique dans les régions non tropicales, ce qui rend plus compliquée la décorrélation entre température et méthane dans les radiances IASI (point négatif). L'éducation de réseaux de neurones dédiés, puis l'adaptation des tests nuageux et des caractérisations radiatives des instruments dans les zones non tropicales, ont permis d'obtenir une couverture quasi-globale des estimations CH<sub>4</sub> (Crevoisier et al., 2016).

Des structures particulières des champs de méthane estimés à partir des observations IASI-AMSU sont bien visibles sur la figure V.3. Les fortes émissions par les rizières asiatiques à la fin de l'été, rapidement transportées à haute altitude par la forte convection liée à la mousson, expliquent les fortes valeurs de CH<sub>4</sub> observées au-dessus de l'Asie, ainsi que le panache qui se déplace progressivement vers le Sud jusqu'en Indonésie. De faibles valeurs de méthane sont systématiquement retrouvées au-dessus de l'Océan Pacifique Sud tout au long de l'année. De fortes émissions dans le golfe de Guinée ou au-dessus des zones humides africaines et amazoniennes sont également bien visibles. Aux moyennes et hautes latitudes de l'hémisphère Nord, on retrouve de plus faibles valeurs de CH<sub>4</sub> que dans les tropiques.

Les taux de croissance estimés par bande de latitude sont proches des taux de croissance mesurés à la surface, à l'exception de la bande 30°S-60°S pour laquelle le taux de croissance « IASI » est plus élevé que celui mesuré à la surface (avec très peu de sites). En particulier, la récente augmentation du méthane débutée en 2007 et qui a suivi près de 10 ans de stabilité est bien retrouvée.

### V.2.3 Comparaison avec des modèles

Une étape préalable à l'utilisation des observations spatiales dans l'inversion des flux est de comparer ces observations aux simulations issues de modèles de chimie et transport atmosphérique. Dans le cadre de ce travail, nous avons réalisé des comparaisons avec les simulations de CH<sub>4</sub> de la version chimie-transport du modèle LMDz-INCA<sup>1</sup> développée au LSCE (Locatelli, 2014) et les simulations de CH<sub>4</sub> du modèle TM5 réalisées au SRON/IMAU/UtrechtUniversity (Pandey et al., 2016). Ces deux modèles sont à la base de l'estimation des flux de surface réalisée dans plusieurs instituts (cf chapitre I, section I.2.3). Les simulations que nous avons utilisées pour faire des comparaisons sont basées sur des flux optimisés issus d'une procédure d'inversion atmosphérique (cf section I.2.3). Les observations utilisées dans cette procédure étaient soit des observations issues des réseaux de surface, soit des observations de l'instrument TANSO-FTS/GOSAT, soit une combinaison des deux.

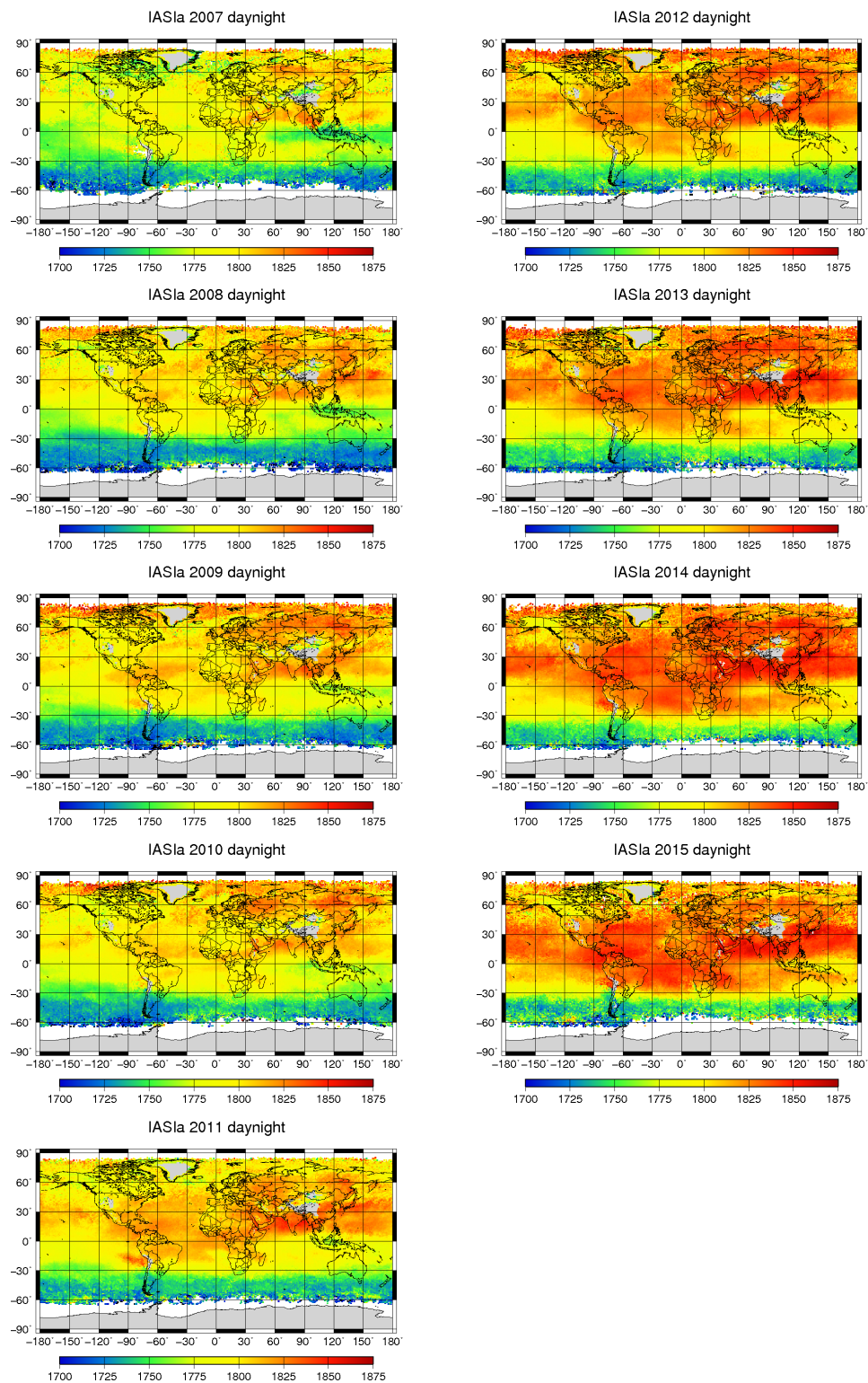
Les périodes de simulations auxquelles nous avons eu accès sont : 2008 à 2011 pour LMDz et 2009 à 2014 pour TM5. En effet, les observations de surfaces et satellites utilisées pour optimiser les flux dans les modèles ne sont disponibles qu'avec un délai de 6 mois à 1 an. Ainsi, les simulations de CH<sub>4</sub> disponibles ne couvrent donc pas l'ensemble de cette période des estimations de CH<sub>4</sub> IASI qui sont disponibles sur une période couvrant Juillet 2007 à aujourd'hui.

Le tableau V.1 résume les résolutions horizontales et verticales des différents modèles que nous utiliserons dans la suite. Les modèles numériques simulent les champs de concentrations 3D de CH<sub>4</sub> selon une représentation verticale, spatiale et temporelle propre à chaque modèle (Tab. V.1). On peut notamment remarquer que la répartition des niveaux verticaux est fortement variable suivant les modèles et que nous avons dans certains cas (pour les modèles LMDz et TM5) plusieurs versions des mêmes modèles à différentes résolutions horizontales et verticales. Pour LMDz, le passage de 19 à 39 niveaux verticaux apporte des niveaux supplémentaires principalement dans la stratosphère. Tandis que pour TM5, le passage 25 à 60 niveaux verticaux est reparti de manière à doubler les niveaux sur l'ensemble de la colonne.

Dans le cadre d'une première comparaison directe avec les estimations de CH<sub>4</sub> IASI, nous utilisons uniquement les modèles notés LMDz et TM5 contraints uniquement par des observations en surface pour lesquelles nous disposons de plusieurs années de simulations. Les autres versions des modèles TM5 ou LMDz, ainsi que les analyses et prévisions C-IFS donnent accès à des résolutions verticales différentes ou assimilent des observations satellites. Ils ne sont disponibles que pour des périodes plus restreintes. Nous les utiliserons en partie V.4.3.

1. LMDz-INCA correspond à la version chimie transport du modèle auquel nous faisons référence. Dans la suite nous y faisons référence en utilisant uniquement "LMDz" mais on parle bien du modèle de chimie transport.





**FIGURE V.3** – Cartes annuelles du contenu intégré de CH<sub>4</sub> IASI de l'année 2007 à 2015. La moyenne 2007 représente uniquement les mois de Juillet à Décembre 2007 et la moyenne 2015, les mois de Janvier à Septembre 2015.

**TABLE V.1** – Résolutions géographiques et verticales des différents modèles utilisés.

Modèle	Données	Lat x Lon x Vertical	Période	Références
LMDz	Surface	1.895° x 3.75° x 39	2008-2011	(Locatelli, 2014)
LMDz Gosat(19)	Surface + GOSAT	1.895° x 3.75° x 19	2010	(Locatelli et al., 2015)
LMDz Gosat(39)	Surface + GOSAT	1.895° x 3.75° x 39	2010	
TM5	Surface	4° x 6° x 25	2009-2014	(Pandey et al., 2016)
TM5(60)	Surface	1° x 1° x 60	2014	
C-IFS analysis	Surface + GOSAT	40 km x 40 km x 137	at AirCore locations	(Agusti-Panareda et al., 2014)
C-IFS forecast	Surface + GOSAT	16 km x 16 km x 137	at AirCore locations	(Massart et al., 2014)

Pour comparer les estimations de CH<sub>4</sub> IASI avec les simulations issues des modèles de transports, il est nécessaire de calculer les contenus intégrés équivalent à la partie de l'atmosphère vue lors de chaque estimation IASI dans les champs de CH<sub>4</sub> synthétiques. De manière imagée, cela revient à calculer les contenus de méthane en faisant voler l'instrument IASI au-dessus de l'atmosphère simulée par les modèles de transports.

Afin de co-localiser spatialement et temporellement les estimations de CH<sub>4</sub> IASI avec les simulations des modèles, on repère pour chaque estimation de CH<sub>4</sub> le point de grille au sol correspondant et on y sélectionne la colonne verticale représentant l'atmosphère simulée par le modèle au moment de l'estimation IASI. On utilise alors la fonction de poids associée à l'estimation IASI considérée (cf équation V.1). En notant,  $q_i$ ,  $i \in [1, \dots, N]$ , les valeurs du rapport de mélange de CH<sub>4</sub> simulées par le modèle, le contenu intégré en CH<sub>4</sub> est alors donné par

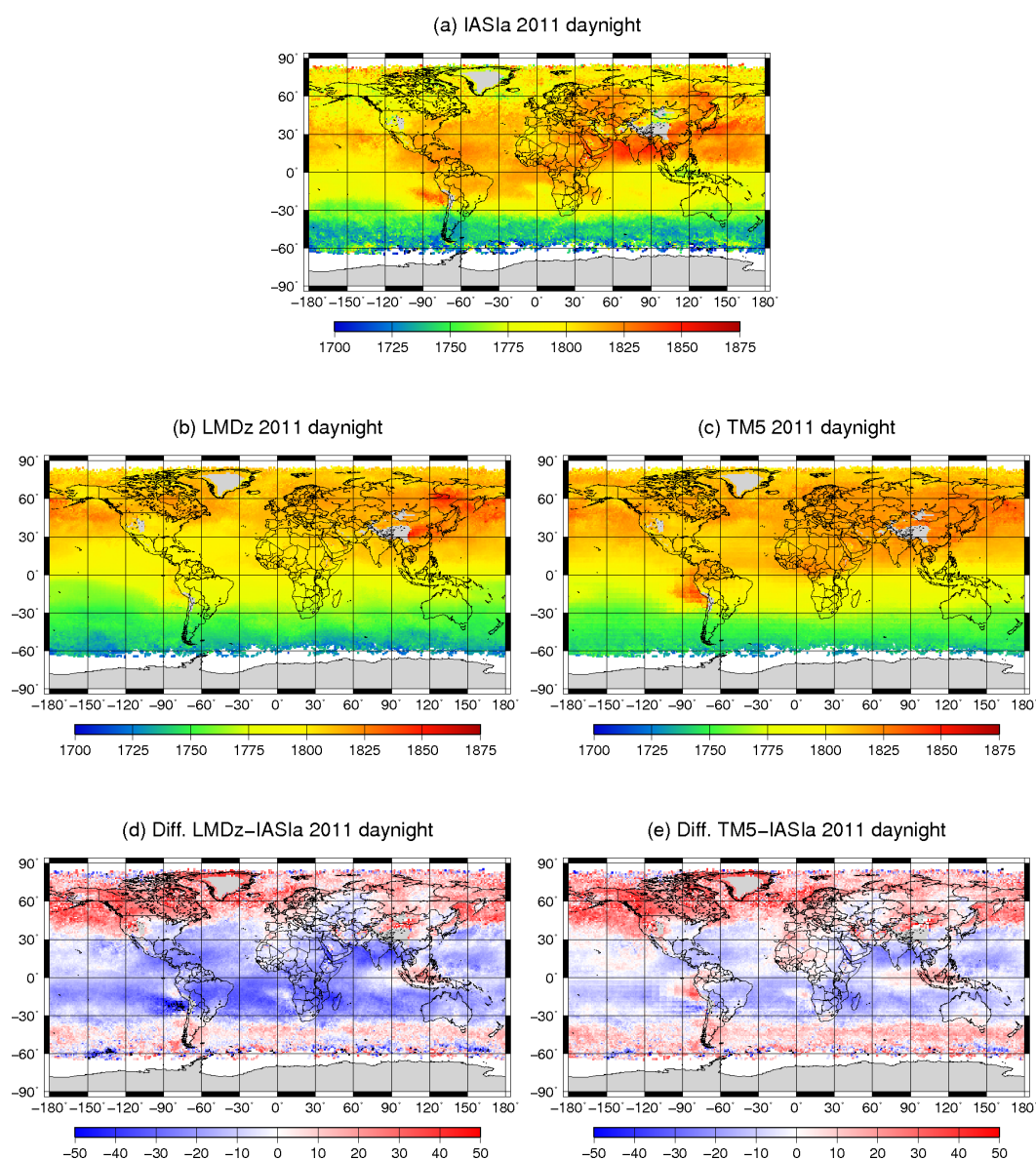
$$qCH_4 = \frac{\sum_{i=1}^N g_i \Delta P_i q_i}{g_i \Delta P_i} \quad (\text{V.2})$$

où  $g_i$  est la fonction de poids moléculaire (mol.mol<sup>-1</sup>) des estimations de CH<sub>4</sub> IASI interpolée dans la couche de pression  $i$  du modèle et  $\Delta P_i$  est l'épaisseur de la couche de pression  $i$  considérée (Crevoisier et al., 2009b).

La figure V.4 présente une comparaison pour l'année 2011 des estimations de CH<sub>4</sub> IASI avec les simulations de CH<sub>4</sub> des modèles LMDz et TM5 pour la même année. L'ensemble des figures représentent des moyennes annuelles dans une grille LatxLon de 1°x1°. La figure V.4 (a) présente la moyenne annuelle des estimations de CH<sub>4</sub> IASI tandis que les figures V.4 (b) et (c) montrent la moyenne des contenus intégrés de CH<sub>4</sub> IASI calculés dans les champs de CH<sub>4</sub> simulés respectivement par LMDz et TM5. Les figures V.4 (d) et (e) présentent les différences entre les contenus intégrés de CH<sub>4</sub> calculés dans les modèles et les estimations de CH<sub>4</sub> IASI.

La comparaison des figures V.4 (a), (b) et (c) révèle la différence entre les champs de CH<sub>4</sub> simulés par les modèles et les estimations IASI. La comparaison fait apparaître que les modèles simulent des concentrations de CH<sub>4</sub> plus fortes que les estimations IASI aux moyennes et hautes latitudes de l'hémisphère Nord. Ceci est confirmé dans les cartes différence en Fig. V.4 (d) et (e). Dans les modèles, l'augmentation est graduelle des hautes latitudes de l'hémisphère Sud aux hautes latitudes de l'hémisphère Nord, notamment au-delà de 40°N, alors que les valeurs de CH<sub>4</sub> estimées par IASI sont plus faibles qu'aux tropiques. Dans la bande tropicale (30°N-30°S), les valeurs de CH<sub>4</sub> simulées par les modèles sont inférieures aux valeurs des estimations IASI. Aux latitudes moyennes de l'hémisphère Sud, les différences sont moins marquées mais il semble ressortir que les modèles simulent une concentration en méthane supérieure aux observations.

Régionalement, les fortes émissions observées en Asie du Sud-Est sont moins marquées dans les modèles. Le modèle TM5 reproduit un signal fort au niveau de l'Amérique Centrale et du Nord de l'Amérique du Sud alors que ce signal est absent des simulations LMDz. Les valeurs de méthane moyennes entre l'Afrique et l'Amérique du Sud sont moins prononcées dans LMDz mais apparaissent dans les simulations TM5. Il existe des zones pour lesquelles la différence entre les simulations des modèles de transports et les estimations de l'instrument IASI est faible, par exemple au-dessus de l'océan Pacifique ou de l'Australie. A la fois pour LMDz et TM5 les différences avec les estimations sont très faibles au niveau de la moitié Est des États-Unis, ainsi qu'à l'Est de l'Europe. Cela pourrait provenir du fait qu'à ces latitudes le vent



**FIGURE V.4** – (a) moyenne annuelle des estimations de CH<sub>4</sub> IASI pour l'année 2011. (b) Moyenne annuelle des contenus intégrés de CH<sub>4</sub> IASI calculés dans les champs de CH<sub>4</sub> simulés par le modèle LMDz pour l'année 2011. (c) Identique à (b), mais pour le modèle TM5. (d) Moyenne de la différence entre les contenus intégrés de CH<sub>4</sub>, calculés dans les champs de CH<sub>4</sub> simulés par le modèle LMDz, et les estimations de CH<sub>4</sub> IASI. (e) Identique à (d) mais pour le modèle TM5.

transporte typiquement les émissions de surface d'Ouest en Est et celles-ci sont très bien contraintes par les réseaux d'observations en surface au États-Unis (NOAA) et dans l'Ouest de l'Europe (ICOS). Globalement, les différences entre les estimations IASI et le modèle TM5 sont plus faibles qu'avec le modèle LMDz.

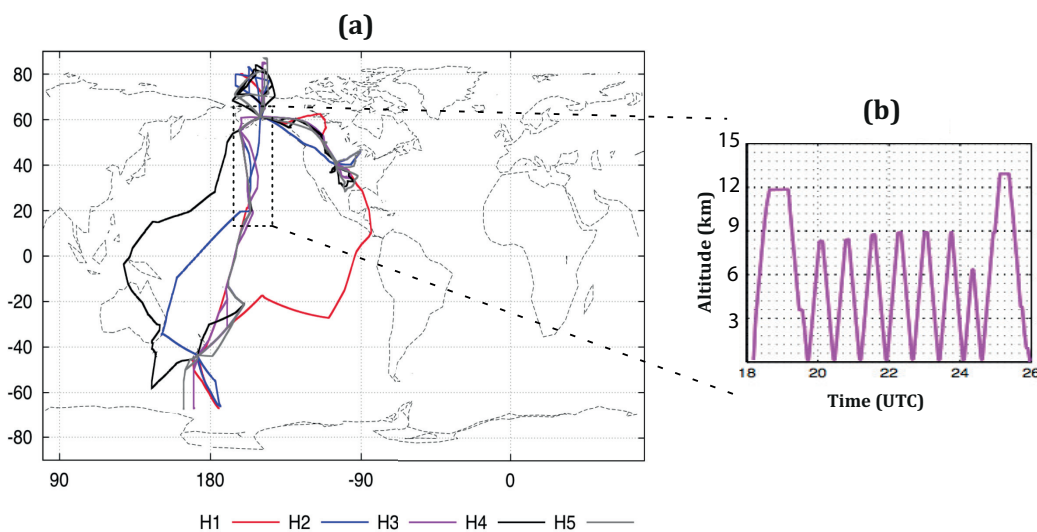
Afin de déterminer l'origine des biais retrouvés, notamment aux latitudes moyennes de l'hémisphère Nord, nous allons utiliser des mesures de profils verticaux.

### V.3 Apport des mesures aéroportées pour la validation des mesures spatiales

Une première étape consiste à évaluer et vérifier les observations spatiales. Peu d'observations complètes le long de la colonne atmosphérique sont disponibles. En premier lieu, ce sont classiquement des mesures aéroportées qui sont utilisées pour évaluer les observations spatiales.

Différentes mesures aéroportées sont disponibles afin d'étudier les variations des concentrations de  $\text{CH}_4$  dans l'atmosphère (cf section I.3.2). Ce sont majoritairement des mesures à 10 km le long de trajectoires de vols commerciaux. Cependant, l'évaluation du contenu intégré des estimations depuis l'espace nécessite des profils verticaux plus complets. Pour le méthane, le fort gradient de concentrations entre la troposphère et la stratosphère impose d'avoir des informations complètes pour réaliser la validation des estimations spatiales. Des profils verticaux sont disponibles avec les mesures aéroportées CONTRAIL ou CARIBIC uniquement au niveau des aéroports. Dans notre cas, nous allons nous intéresser aux mesures des campagnes aéroportées HIPPO spécifiquement consacrées à la mesure de profils verticaux.

#### V.3.1 Les profils de $\text{CH}_4$ mesurés lors du projet HIPPO



**FIGURE V.5** – (a) Trajectoires des 5 campagnes HIPPO. H1, H2, H3, H4 et H5 représentent le numéro de la campagne HIPPO. (b) Exemple d'un plan de vol lors d'une section entre l'Alaska et les îles d'Hawaï.

Le projet HIPPO (HIAPPER Pole-to-Pole) étudie la variabilité verticale de différents gaz et composés associés au cycle du carbone au travers de mesures aéroportées à diverses altitudes le long de trajectoires allant d'un pôle à l'autre lors de campagnes de mesures réalisées à différentes saisons (Wofsy, 2011). Ce projet est porté par le Earth Observing Laboratory (EOL) de l'UCAR/NCAR (University Corporation for Atmospheric Research - National Center for Atmospheric Research<sup>2</sup>). Cinq campagnes de mesures (H1-H5) de plusieurs gaz traces ont ainsi été réalisées d'un pôle à l'autre (Fig. V.5 (a)) entre Janvier 2009

2. <http://hippo.ucar.edu/>

et Septembre 2011 (Tab. V.2). L'avion a réalisé plusieurs montées et descentes le long des trajectoires suivies (Fig. V.5 (b)), donnant accès à la distribution verticale de différents constituants atmosphériques. Les centaines de profils verticaux ainsi mesurés sont principalement situés entre la surface et 10 km avec parfois des profils jusqu'à 14 km.

TABLE V.2 – Liste et période des campagnes HIPPO

Liste et périodes des campagnes HIPPO.	
HIPPO I	8 January-30 January 2009
HIPPO II	31 October-22 November 2009
HIPPO III	24 March-16 April 2010
HIPPO IV	14 June-11 July 2011
HIPPO V	9 August-9 September 2011

Au total, 208 profils de méthane ont été co-localisés géographiquement et temporellement avec des estimations IASI. Les profils mesurés lors des campagnes aéroportées HIPPO, moyennés dans trois bandes de latitudes de  $60^\circ$ , sont représentés en figure V.6. Sur les mêmes figures, les fonctions de poids typiques des masses d'air, tempérées ou tropicales, associées aux estimations de méthane IASI sont représentées en bleu.

La distribution verticale du méthane entre 0-14 km varie suivant la latitude. Dans l'hémisphère Nord (à gauche), on observe une forte décroissance du méthane à partir de 250 hPa (le niveau barométrique de la tropopause aux hautes latitudes correspondant à environ 8 km). Dans les tropiques (au centre) les profils verticaux de  $\text{CH}_4$  sont constants le long de la verticale; en effet, dans cette région la tropopause se situe typiquement plus haut aux alentours de 120-100 hPa (16-18 km). Dans l'hémisphère sud (à droite) la distribution verticale de  $\text{CH}_4$  est plus variable et semble dépendre des saisons : constant en hiver et au printemps, avec une décroissance en été et en automne. Quelque soit la saison et la région observées, les profils HIPPO mesurés jusqu'à 10-14 km ne suffisent pas à renseigner toute la partie de la colonne atmosphérique à laquelle sont sensibles les estimations de  $\text{CH}_4$  IASI (Fig. V.6). On ne va donc pas pouvoir utiliser ces profils seuls pour les comparer aux estimations de  $\text{CH}_4$ . Il est en effet nécessaire de les compléter. Pour ce faire, nous utiliserons les simulations de profils des modèles de transport TM5 et LMDz.

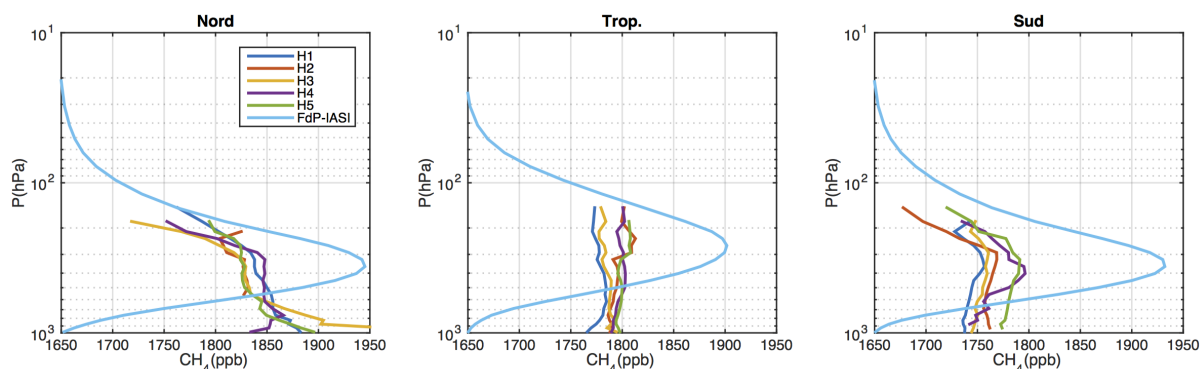


FIGURE V.6 – Profils de  $\text{CH}_4$  mesurés lors des 5 campagnes HIPPO, moyennés dans trois bandes de latitude. Nord ( $> 30^\circ\text{N}$ ), Tropiques ( $30^\circ\text{N} - 30^\circ\text{S}$ ), Sud ( $< 30^\circ\text{S}$ ). Les profils typiques des fonctions de poids correspondant aux estimations  $\text{CH}_4$  IASI aux différentes latitudes sont présentés en bleu.

## V.3.2 Évaluation des estimations IASI

### V.3.2.1 Méthodologie

Pour comparer les profils HIPPO aux estimations IASI, on se place dans une boîte LatxLon de  $10^\circ \times 10^\circ$  centrée autour de la localisation des mesures des différents profils HIPPO dans laquelle on récupère les estimations IASI du jour de la mesure HIPPO. Au niveau de l'équateur, cela représente une surface au sol d'environ  $1000\text{km} \times 1000\text{km}$ , aux latitudes moyennes ( $40^\circ$  Nord ou Sud) cela représente  $1000\text{km} \times 850\text{km}$ , et, aux hautes latitudes ( $70^\circ$  Nord ou Sud), cela ne représente plus que  $1000\text{km} \times 380\text{km}$ .

Ce choix est effectué afin d'avoir suffisamment de situations et des statistiques robustes. Dans chaque cas, l'ensemble des estimations IASI effectuées dans cette boîte sont comparées aux profils verticaux issus des modèles, d'une combinaison des observations HIPPO avec les modèles, ou encore d'une combinaison des mesures HIPPO avec des modèles et des mesures AirCores. On calcule alors le contenu intégré tel que vu par l'instrument IASI en appliquant les fonctions de poids de chaque observation (cf. équation V.2) au profil qui représente l'atmosphère dans notre boîte.

### V.3.2.2 Évaluation des estimations IASI avec des profils issus de modèles de transport seuls

Avant d'utiliser directement les mesures aéroportées, nous ne considérons, dans un premier temps, que les profils de  $\text{CH}_4$  simulés par LMDz et TM5, co-localisés géographiquement et temporellement avec les profils de  $\text{CH}_4$  HIPPO. Nous comparerons alors les contenus intégrés de  $\text{CH}_4$  IASI avec les contenus intégrés des modèles afin de réitérer la comparaison entre les modèles et les estimations IASI  $\text{CH}_4$  au niveau des points de mesures des profils HIPPO. Ceci nous permettra de faire ressortir par la suite l'apport des mesures aéroportées et sous ballons.

Les figures V.7 (a) et (b) présentent respectivement la comparaison des estimations IASI avec les contenus intégrés calculés pour les profils extraits des modèles LMDz et TM5. Les couleurs verte, rouge et bleue permettent de différencier les bandes de latitudes de l'hémisphère Sud ( $< 30^\circ\text{S}$ ), tropicales ( $30^\circ\text{S}$ - $30^\circ\text{N}$ ) et de l'hémisphère Nord ( $> 30^\circ\text{N}$ ). La droite noire représente la droite 1 :1, la droite bleue représente la régression linéaire de premier ordre entre la moyenne des estimations IASI  $\text{CH}_4$  et la moyenne obtenue à partir des profils extraits des modèles.

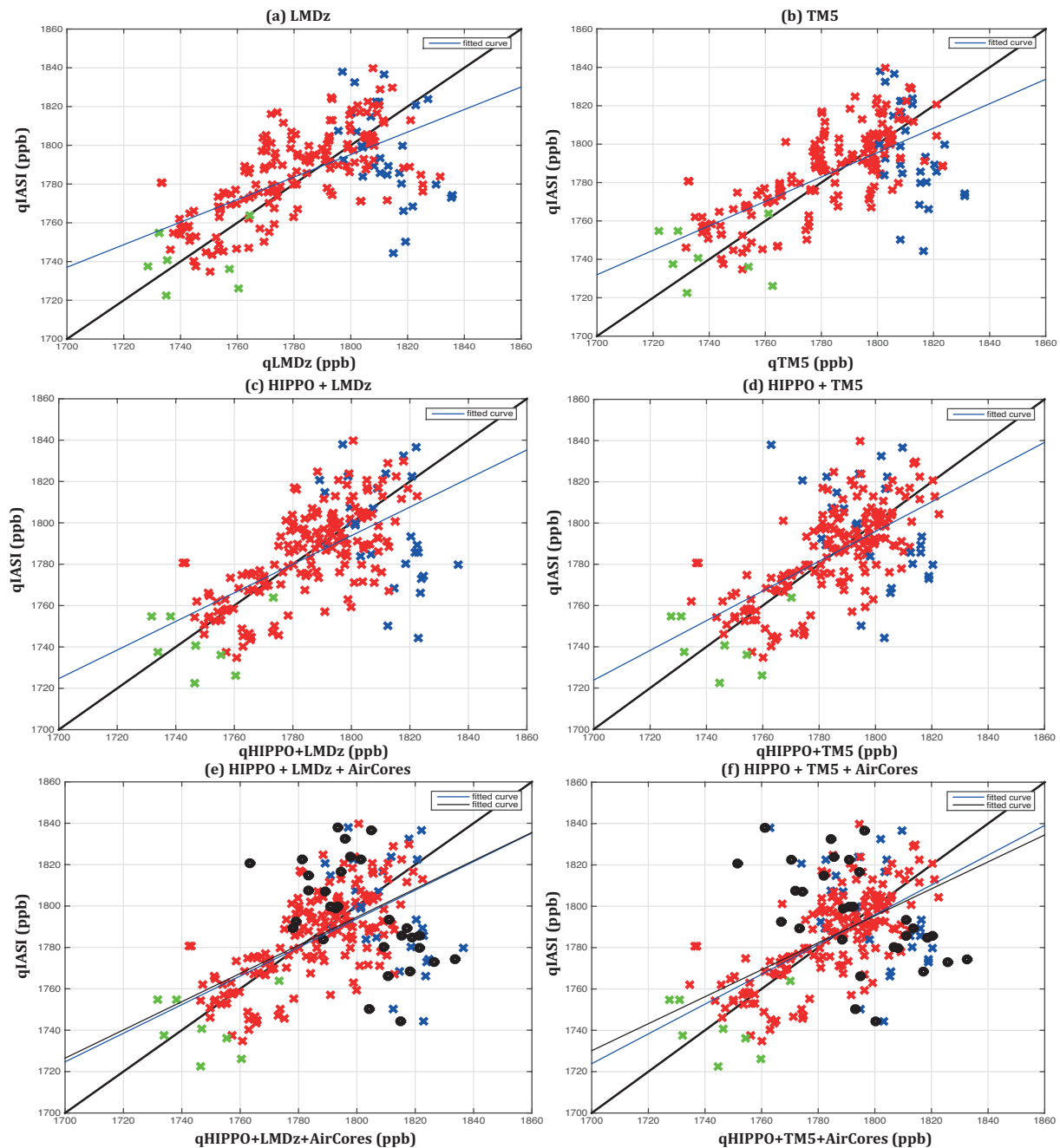
Les statistiques associées sont données en Tab. V.3. Ce tableau présente la moyenne de la différence entre le contenu intégré de  $\text{CH}_4$  déduit des modèles et celui estimé par IASI, l'écart-type et la corrélation associés. Le nombre de profils et l'écart-type moyen des estimations IASI dans les boîtes de  $10^\circ \times 10^\circ$  sont également présentés dans des colonnes séparées.

Sur les 208 profils HIPPO considérés, 170 correspondent à des situations tropicales, 30 à la bande de latitude Nord et seulement 8 à la bande de latitude Sud. L'écart type moyen des estimations IASI dans les boîtes de  $10^\circ \times 10^\circ$  est globalement de 15.5 ppb. Il est d'environ 15 ppb dans la bande tropicale et légèrement plus élevé dans les bandes de latitudes Nord et Sud où il est respectivement de 18.5 ppb et 17.6 ppb. Ces variations sont attendues puisqu'elles traduisent les conditions atmosphériques variables des différentes estimations réalisées dans une boîte de  $10^\circ \times 10^\circ$ .

Les figures V.7 (a) et (b) et le tableau V.3 indiquent une forte dispersion des comparaisons autour de la droite 1 :1. Celle-ci se retrouve dans l'écart-type de la différence entre les contenus intégrés calculés dans les simulations des modèles et les estimations IASI. On obtient des valeurs de plus de 30 ppb dans la bande de latitudes Nord et des valeurs de 17.6 ppb dans la bande tropicale. Ceci dénote que la différence entre les contenus intégrés calculés dans les simulations des modèles et les estimations IASI est assez variable d'une situation à l'autre.

Dans la bande tropicale, il apparaît que les modèles présentent un biais négatif par rapport aux estimations IASI de -5.9 ppb pour LMDz et de -4.7 ppb pour TM5. Dans l'hémisphère Nord, un fort biais positif apparaît, révélant que les estimations à partir des profils extraits des modèles sont supérieures aux estimations de  $\text{CH}_4$  IASI. Dans l'hémisphère Sud, peu de situations sont disponibles (8) et le constat est mitigé.

Ces constats vont dans le même sens que la comparaison globale réalisée en section V.2.3, où l'on voyait apparaître en Fig. V.4 des zones de biais négatif entre les modèles et estimations IASI au niveau



**FIGURE V.7** – (a) Comparaison entre la moyenne des estimations  $\text{CH}_4$  IASI et la moyenne des profils extraits des simulations LMDz auxquels on a appliqué la fonction de poids des estimations IASI dans une boîte de  $10^\circ \times 10^\circ$ ; (b) Identique à (a) mais pour les profils extraits des simulations TM5; (c) Comparaison entre la moyenne des estimations  $\text{CH}_4$  IASI et la moyenne des profils HIPPO complétés par les profils LMDz dont on a corrigé le biais à partir des mesures troposphériques, auxquels on a appliqué la fonction de poids des estimations IASI dans une boîte de  $10^\circ \times 10^\circ$ ; (d) Identique à (c) mais pour les profils extraits des simulations TM5; (e) Identique à (c), mais pour les situations de l'hémisphère Nord on modifie la partie stratosphérique des profils par des mesures AirCores; (f) Identique à (e), mais pour les profils extraits des simulations TM5. Les couleurs verte, rouge et bleue permettent de différencier les bandes de latitudes de l'hémisphère Sud (< 30°S), tropicales (30°S-30°N) et de l'hémisphère Nord (> 30°N).

**TABLE V.3** – Tableau présentant la moyenne de la différence entre le contenu intégré de  $\text{CH}_4$  déduit des modèles et celui estimé par IASI, l'écart-type et la corrélation associés (moyenne  $\pm$  écart-type ( $R$ )). Les statistiques sont détaillées par bande de latitude. La colonne 'points' correspond aux nombre de profils utilisés. La colonne 'Std. IASI' présente la variation moyenne des estimations IASI dans une boîte de  $10^\circ \times 10^\circ$ . Les moyennes et les écarts-types sont exprimés en ppb.

Modèles co-localisés avec HIPPO				
Zone Géo.	Points	Std. IASI	LMDz-IASI	TM5-IASI
Global	208	15.5	$-2.4 \pm 21.5$ (0.63)	$-1.6 \pm 19.8$ (0.68)
Nord	30	18.5	$16.5 \pm 30.6$ (-0.45)	$16.0 \pm 29.1$ (-0.49)
Tropiques	170	14.9	$-5.9 \pm 17.6$ (0.70)	$-4.7 \pm 15.8$ (0.75)
Sud	8	17.6	$1.1 \pm 20.3$ (0.04)	$-1.6 \pm 22.7$ (-0.09)
HIPPO + Modèles co-localisés et ajustés				
Zone Géo.	Points	Std. IASI	LMDz-IASI	TM5-IASI
Global	208	15.5	$2.3 \pm 19.8$ (0.62)	$-0.1 \pm 19.5$ (0.63)
Nord	30	18.5	$14.9 \pm 31.3$ (-0.45)	$3.0 \pm 33.5$ (-0.45)
Tropiques	170	14.9	$-0.1 \pm 16.2$ (0.70)	$-0.8 \pm 15.9$ (0.71)
Sud	8	17.6	$6.2 \pm 19.9$ (0.04)	$3.6 \pm 21.6$ (-0.06)
HIPPO + Modèles co-localisés et ajustés + Pente AirCore strato				
Zone Géo.	Points	Std. IASI	LMDz-IASI	TM5-IASI
Global	208	15.5	$0.9 \pm 36.2$ (0.59)	$0.8 \pm 39.1$ (0.57)
Nord	30	18.5	$5.1 \pm 36.2$ (-0.45)	$-2.2 \pm 39.1$ (-0.49)

de la bande tropicale et des différences importantes avec un biais positif dans les modèles au niveau de l'hémisphère Nord.

Les figures V.8 (a) et (b) présentent le biais moyen entre les profils HIPPO et la partie troposphérique des profils extraits des modèles LMDz et TM5 en fonction de la latitude des mesures HIPPO. Le biais moyen est défini comme la moyenne de la différence entre les simulations de  $\text{CH}_4$  provenant des modèles interpolés au niveau des mesures HIPPO et les mesures HIPPO. Les couleurs verte, rouge et bleue représentent toujours les différentes zones géographiques (Sud, Tropicales et Nord).

Les biais entre les modèles et les mesures HIPPO sont assez variables d'une mesure HIPPO à l'autre. On observe globalement des biais négatifs entre les modèles et les mesures HIPPO au niveau de la bande tropicale ( $\sim -5$  ppb) et des biais qui deviennent positifs aux plus hautes latitudes, voire très fortement positifs ( $\sim 15$  ppb) aux hautes latitudes de l'hémisphère Nord (figure V.8).

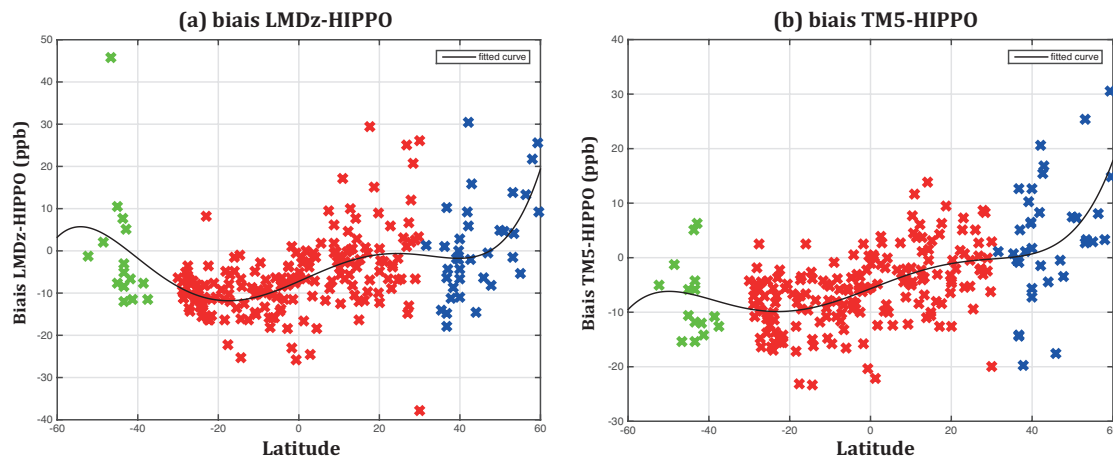
Ces biais entre les mesures HIPPO et les simulations des modèles, qui vont dans le même sens que ceux entre les estimations IASI et les simulations des modèles, doivent être pris en compte et corrigés avant de pouvoir extrapoler les profils HIPPO à l'aide des profils issus des modèles.

### V.3.2.3 Évaluation des estimations IASI avec une combinaison de mesures HIPPO et de profils de modèles de transport : importance de la troposphère

Nous combinons à présent les mesures HIPPO avec les profils issus de modèles de transports LMDz et TM5 en corrigeant pour chaque profil le biais moyen dans la troposphère entre les mesures HIPPO et les modèles. On obtient des profils de la surface au sommet de l'atmosphère centrés sur les valeurs de  $\text{CH}_4$  mesurées par HIPPO. On réitère ensuite la comparaison entre ces profils et les estimations de  $\text{CH}_4$  IASI dans des boîtes de  $10^\circ \times 10^\circ$ . Les figures V.7 (c) et (d) présentent respectivement les résultats obtenus pour LMDz et TM5. Les statistiques associées sont données dans le tableau V.3.

Il ressort que ce nouveau jeu de profils permet de réduire le biais avec les estimations IASI. Les biais entre les estimations IASI et les modèles se réduisent notablement dans la bande tropicale passant de  $-5.9$





**FIGURE V.8** – (a) Moyenne du biais dans la troposphère entre le profil HIPPO et les profils issus des simulations du modèle LMDz en fonction de la latitude ; (b) Identique à (a) mais pour le modèle TM5. Les couleurs verte, rouge et bleue permettent de différencier les bandes de latitudes de l’hémisphère Sud ( $< 30^{\circ}\text{S}$ ), tropicales ( $30^{\circ}\text{S}$ - $30^{\circ}\text{N}$ ) et de l’hémisphère Nord ( $> 30^{\circ}\text{N}$ ).

ppb à seulement -0.1 ppb pour LMDz et de -4.7 ppb à -0.8 ppb pour TM5. Au niveau des situations dans l’hémisphère Nord, l’amélioration est importante pour le modèle TM5 dont le biais avec les estimations IASI passe de 16 ppb à seulement 3 ppb (Tab. V.3). Cette amélioration est moins marquée pour LMDz dont le biais avec les estimations IASI passe uniquement de 16.5 ppb à 14.9 ppb. Dans l’hémisphère Sud, le faible nombre de situations rend délicat l’interprétation des variations observées par rapport au cas précédent.

Bien que les biais constatés entre les mesures HIPPO et les profils des modèles (Fig. V.8 (a) et (b)) aillent dans le même sens que ceux retrouvés entre les modèles et IASI (Fig. V.4), il semble qu’un biais résiduel, provenant de la stratosphère, persiste. C’est sur cette partie de l’atmosphère que nous allons maintenant nous focaliser.

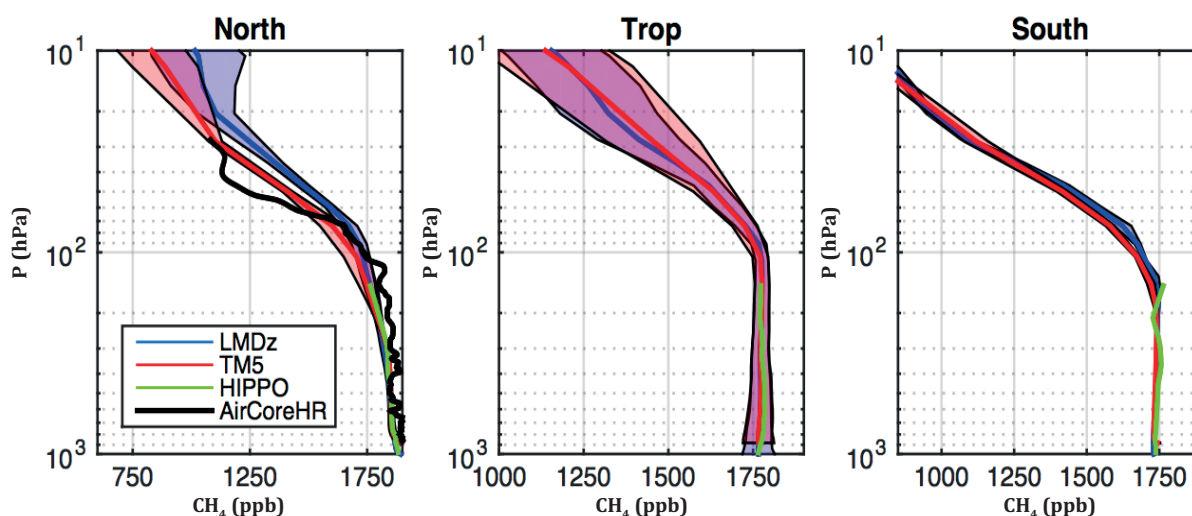
#### V.3.2.4 Évaluation des estimations IASI avec une combinaison de mesures HIPPO, de profils issus de modèles de transport et de profils issus de AirCores : importance de la stratosphère

Les pentes du gradient de  $\text{CH}_4$  dans la stratosphère ne sont pas représentées de la même manière d’un modèle de transport à l’autre. La figure V.9 présente les profils des modèles TM5 et LMDz, co-localisés avec les mesures de la première campagne HIPPO, moyennés dans trois bandes de latitude avec les écart-types associés.

Cette représentation met en évidence que la partie stratosphérique des profils est différente entre TM5 et LMDz suivant la bande de latitude. C’est dans la bande Nord ( $> 30\text{N}$ ) que la différence est la plus importante. La pente est plus prononcée dans TM5 que dans LMDz, pouvant expliquer la surestimation du méthane par LMDz dans l’hémisphère Nord. Dans la bande tropicale ( $30\text{S}$ - $30\text{N}$ ) et dans la bande Sud ( $< 30\text{S}$ ) les modèles présentent des profils similaires. Dans les deux cas, la pente simulée reste inférieure à la pente mesurée par le AirCore-HR à l’été 2014.

Pour vérifier l’influence des différences stratosphériques entre les modèles TM5 et LMDz, nous avons modifié les profils correspondants à des situations de l’hémisphère Nord en imposant la pente définie par des mesures *in situ* de AirCores.

Nous reprenons le jeu de profils précédemment définis combinant les mesures HIPPO avec des parties de profil de modèles corrigés du biais troposphérique. Pour les profils correspondant à des mesures dans l’hémisphère Nord, nous imposons le profil AirCore-HR dans la stratosphère. Entre  $30\text{N}$  et  $50\text{N}$ , nous utilisons entre 150 hPa et 20 hPa, les mesures de  $\text{CH}_4$  du AirCore-HR de Timmins 2014. Au-delà de  $50\text{N}$ , nous utilisons entre 250 et 20 hPa, les mesures de  $\text{CH}_4$  de Kiruna 2016. Afin d’adapter ces mesures



**FIGURE V.9** – Profils des modèles *TM5* et *LMDz*, co-localisés avec les mesures de la première campagne *HIPPO*, moyennés dans trois bandes de latitude. Nord ( $> 30^{\circ}\text{N}$ ), Tropiques ( $30^{\circ}\text{N} - 30^{\circ}\text{S}$ ), Sud ( $< 30^{\circ}\text{S}$ ). Les traits pleins rouges représentent le profil moyen *TM5* et la surface rouge transparente présente son écart-type associé. Les traits pleins bleus représentent le profil moyen *LMDz* et la surface bleue transparente présente son écart-type associé.

aux profils *HIPPO*, nous décalons les parties de profils *AirCores* utilisés d'un biais calculé par rapport aux profils *HIPPO* à  $\sim 180$  hPa pour  $30\text{N}-50\text{N}$  et  $\sim 280$  hPa pour  $>50\text{N}$ . Ce nouveau jeu de profils, pour l'hémisphère Nord uniquement, combinant les mesures *HIPPO*, les profils extraits des modèles et les mesures *AirCores* ajustés aux mesures *HIPPO* permet de réitérer la comparaison avec les estimations *IASI*.

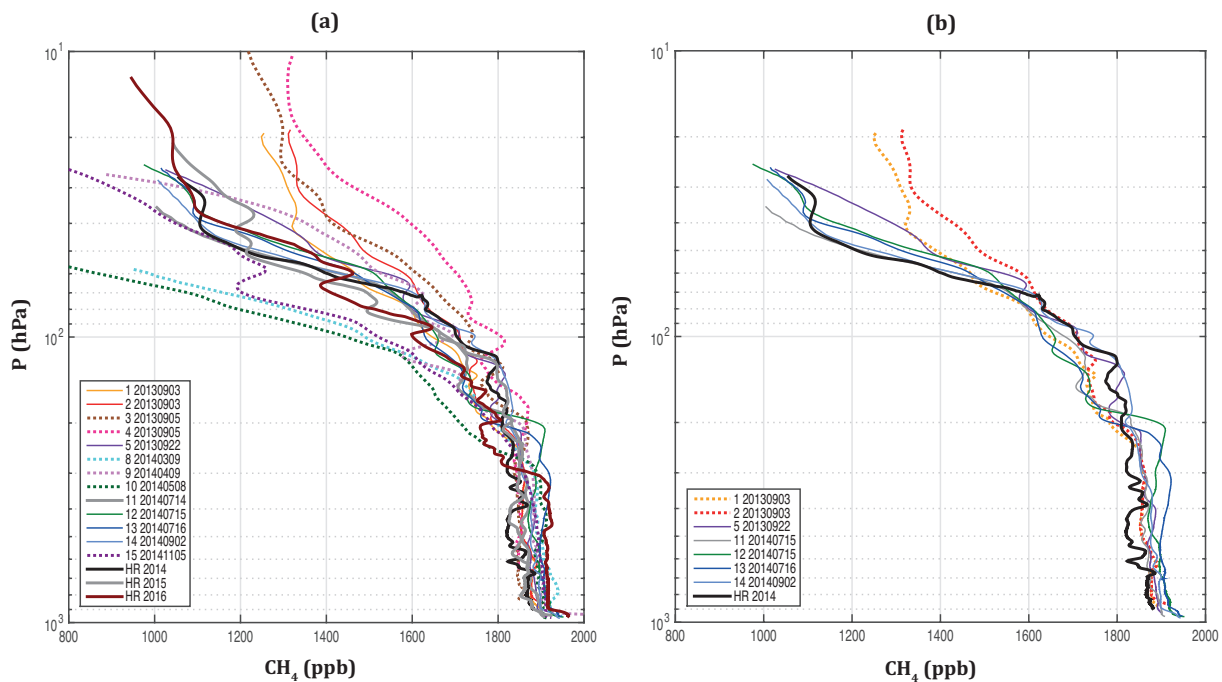
En figures V.7 (e) et (f), les nouvelles comparaisons sont présentées avec des ronds noirs superposés au croix du cas précédent. La dispersion des points de l'hémisphère Nord est toujours importante. En effet, les deux pentes imposées ne permettent pas d'améliorer la représentation de la diversité, ni la saisonnalité des situations atmosphériques. Mais, on peut remarquer que ce changement a tendance à recentrer les comparaisons avec les estimations *IASI* de part et d'autre de la droite 1 :1.

Ceci est confirmé par les statistiques présentées dans le tableau V.3. On voit apparaître que les biais se sont considérablement réduits avec les profils *LMDz* en passant de 14.9 ppb à 5.1 ppb. Pour *TM5*, le biais reste faible mais montre un écart d'environ 5 ppb entre les 2 cas.

Ces résultats semblent confirmer que la mauvaise modélisation de la stratosphère soit à l'origine du fort biais négatif entre *IASI* et les modèles (cf Fig. V.4). Une validation complète des colonnes de  $\text{CH}_4$  retrouvées avec *IASI* n'est donc possible que sur des mesures de profils, les plus étendus possibles.

## V.4 Apport des AirCores à la validation satellite et à l'évaluation des modèles

Les comparaisons des estimations de  $\text{CH}_4$  *IASI* avec des modèles et des observations aéroportées (Sec. V.3) ont permis de faire ressortir la nécessité de disposer d'observations complètes sur la colonne atmosphérique pour évaluer précisément les estimations satellites ainsi que pour confirmer la simulation de la composition atmosphérique mise en œuvre par les modèles. C'est pour répondre à ces enjeux que les profils verticaux issus de *AirCores* présentent des atouts importants en apportant des informations nouvelles sur la distribution verticale de la surface à 30 km.



**FIGURE V.10** – (a) Profils de  $\text{CH}_4$  mesurés au cours de 15 vols différents réalisés entre septembre 2013 et août 2016 depuis Timmins, Kiruna ou Sodankyla. Les profils des AirCore-HR du LMD en traits gras. Les profils qui nécessiteraient des corrections de positionnement sont présentés en traits pointillés. (b) Profils de  $\text{CH}_4$  retenus pour une comparaison avec les estimations IASI.

#### V.4.1 Les profils AirCore disponibles

Les 3 campagnes Strato-Sciences effectuées au cours de cette thèse ont permis d'obtenir les profils verticaux de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  avec des AirCores à 3 dates différentes. Il ne suffisent pas seuls à réaliser des statistiques avec les estimations de  $\text{CH}_4$  IASI.

Nous avons donc complété notre jeu de profils avec des mesures AirCores réalisées à Sodankyla à travers une collaboration entre le Center For Isotope Research (CIO) de l'Université de Groningen et l'Institut Météorologique Finlandais (FMI). Depuis septembre 2013, des lâchers de AirCores y sont effectués quasi-mensuellement. Lors de ma mobilité doctorale aux Pays-Bas, j'ai passé une partie de mon séjour à l'Université de Groningen et pu avoir accès aux profils AirCores mesurés depuis Sodankyla.

Une quinzaine de profils mesurés à Sodankyla sont disponibles. Malheureusement, il a été identifié que certains des profils issus de AirCores mesurés sur ce site ont des défauts de positionnement vertical. Pour ces profils, le traitement des données est réalisé en plusieurs temps. Les AirCores sont lancés par l'institut météorologique finlandais qui réalise également l'analyse du contenu en  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  des échantillons prélevés avant de transmettre les données du Picarro et les informations de l'électronique embarquée à l'Université de Groningen. L'Université de Groningen assure alors le traitement des données, en bénéficiant du support de la NOAA, notamment pour prendre en compte la perte de charge. Le passage par ces étapes successives a pu, dans plusieurs cas, avoir pour effet de nuire à la réalité des données de terrain, surtout lorsque des cas particuliers (dysfonctionnement de vanne de fermeture, problème d'échantillonnage) ont été rencontrés. Ainsi, sur l'ensemble des profils disponibles, nous n'en avons retenu que 7 pour valider les estimations IASI. Ces profils ont été réalisés entre septembre 2013 et septembre 2014.

L'ensemble des profils de  $\text{CH}_4$  mesurés au cours de ces différents vols sont représentés en figure V.10 (a). Les profils issus des mesures avec le AirCore-HR du LMD sont présentés en gras. Les profils mesurés à Sodankyla qui ont été retenus, sont tracés en traits fins. Les profils écartés sont présentés en traits pointillés. Ils ont en commun d'être décalés de l'ensemble des autres profils soit vers le haut, soit vers le bas. Par exemple les vols 3 et 4 (du 5 septembre 2013) réalisés le même jour à Sodankyla montre un

décalage flagrant vers le haut. Il est peu réaliste que la situation de la stratosphère ait changé par rapport aux vols du 3 septembre 2013 et encore moins qu'elle soit différente pour deux vols réalisés le même jour au même endroit. A l'inverse, les mesures réalisées au printemps 2014 apparaissent excessivement trop basse dans la stratosphère dénotant que le profil semble décalé vers le bas. Ces décalages sont également confirmés par la comparaison entre les profils de CO<sub>2</sub> (non présentés ici).

La figure V.10 (b) ne présente que les profils retenus pour des comparaisons avec l'instrument IASI. Seul un AirCore-HR est présenté car les données IASI utilisées couvrent la période Juillet 2007 - Juin 2015. On peut remarquer qu'entre 200 hPa et 30 hPa (soit sur une distance d'environ 10 km), l'ensemble des profils retenus ont en commun de présenter une décroissance du CH<sub>4</sub>, selon des pentes assez similaires, de près de 800 ppb. Les vols 1 et 2 de Sodankyla ont été tracés en pointillé car nous les avons retenus pour la comparaison avec les estimations IASI qui suit mais, ces profils mesurés le même jour à Sodankyla, devrait avoir un positionnement vertical identique. Par ailleurs, un autre élément notable, est l'accord de la pente du CH<sub>4</sub> dans la stratosphère entre le profil du AirCore-HR mesuré le 29 Août 2014 à Timmins et le profil 14 mesuré à Sodankyla le 02 septembre 2014 à 4 jours d'intervalle.

#### V.4.2 Évaluation des estimations de CH<sub>4</sub> IASI

Suivant un mode opératoire similaire à ce qui a été fait en section V.3, nous allons évaluer les estimations de CH<sub>4</sub> réalisées avec l'instrument IASI. Nous comparerons les résultats avec des profils issus des modèles de transport TM5 et de prévision C-IFS. A nouveau, on se place dans une boîte LatxLon de 10°x10° centrée autour de la localisation des mesures des différents profils AirCore.

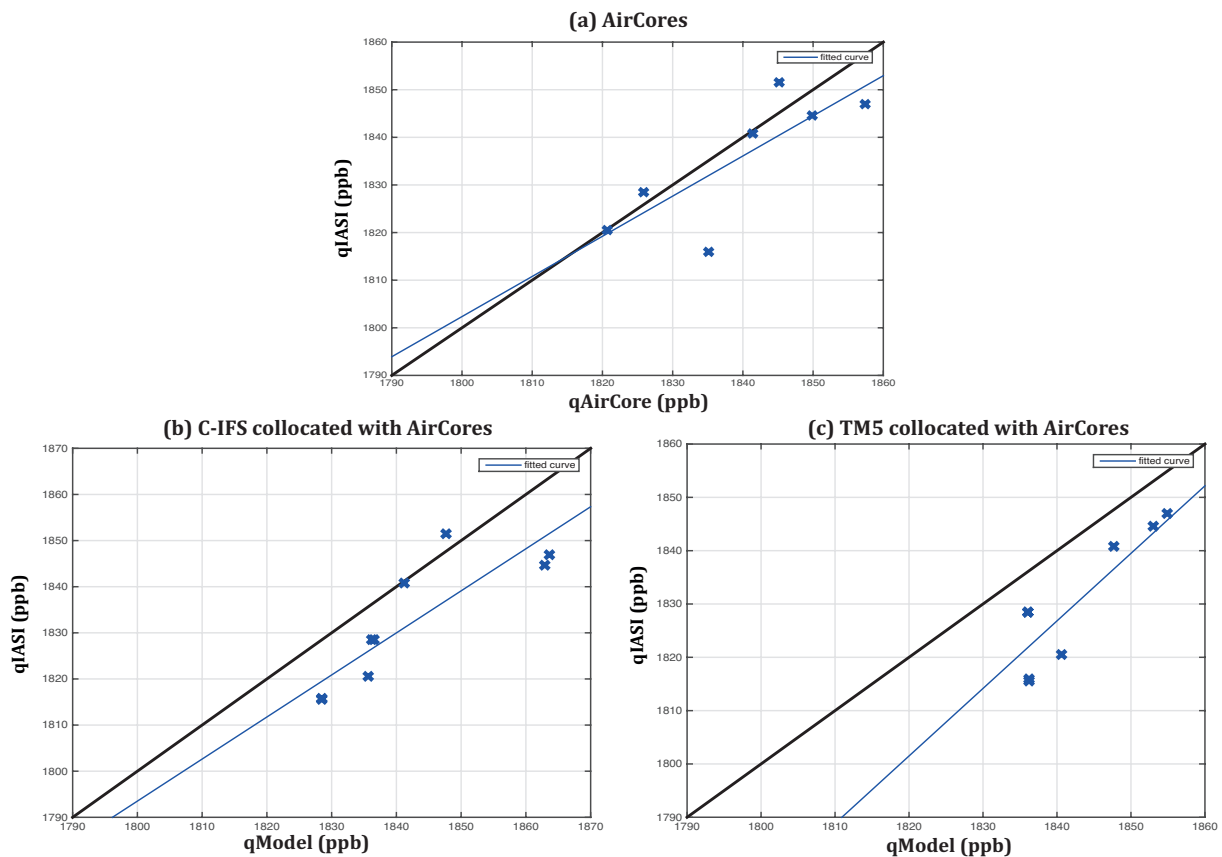
La figure V.11 présente la comparaison de la moyenne des contenus intégrés IASI CH<sub>4</sub> avec les contenus intégrés calculés à partir des profils AirCores ou des profils issus de modèles. Le tableau V.4 présente les statistiques associées. De la même façon qu'en section V.3.2.2, le tableau présente la moyenne de la différence entre le contenu intégré de CH<sub>4</sub> déduit des modèles et celui estimé par IASI, l'écart-type et la corrélation associés.

**TABLE V.4** – Tableau présentant la moyenne de la différence entre le contenu intégré de CH<sub>4</sub> calculé avec les profils mesurés par des AirCores ou issus de modèles et celui estimé par IASI, l'écart-type et la corrélation associés (moyenne  $\pm$  écart-type ( $R$ )). Les statistiques sont détaillées par bande de latitude. La colonne 'points' correspond aux nombre de profils utilisés. La colonne 'Std. IASI' présente la variation moyenne des estimations IASI dans une boîte de 10°x10°. Les moyennes et les écarts-types sont exprimés en ppb.

AirCores				
Zone Géo.	Points	Std. IASI	AirCores	
Nord	7	15.2	-2.8 $\pm$ 8.7 (0.79)	
Modèles co-localisés avec AirCores				
Zone Géo.	Points	Std. IASI	C-IFS	TM5
Nord	7	15.2	10.1 $\pm$ 7.2 (0.86)	12.2 $\pm$ 5.9 (0.92)

Le biais entre la valeur moyenne des estimations IASI et les contenus intégrés à partir des profils de AirCores est de  $-2.8 \pm 8.7$  ppb. Ce bon résultat associé à un écart-type faible dénote un accord remarquable entre les contenus intégrés calculés avec les profils AirCores et les estimations IASI. Cette comparaison avec des mesures *in situ* valide les estimations IASI réalisées dans l'hémisphère Nord et conforte ainsi le travail d'extension des estimations aux hautes latitudes.

Les contenus intégrés à partir des modèles de transports présentent un biais positif par rapport aux estimations IASI. Pour les profils issus des prévisions C-IFS, on observe un biais de 10.1 ppb. Pour les profils issus des simulations du modèle TM5, on observe un biais de 12.2 ppb. A la fois le modèle de prévision, et le modèle de chimie transport, simulent des profils qui donnent un contenu intégré plus important que les observations IASI. Ceci confirme qu'aux hautes latitudes, les modèles simulent des valeurs de CH<sub>4</sub> trop importantes.



**FIGURE V.11** – (a) Comparaison entre la moyenne des estimations  $CH_4$  IASI et la moyenne des profils AirCores auxquels on a appliqué la fonction de poids des estimations IASI dans une boîte de  $10^\circ \times 10^\circ$ ; (b) Comparaison entre la moyenne des estimations  $CH_4$  IASI et la moyenne des profils extraits des prévisions C-IFS auxquels on a appliqué la fonction de poids des estimations IASI dans une boîte de  $10^\circ \times 10^\circ$ ; (c) même chose que (b) pour les profils issus de TM5.

Ces comparaisons sur un nombre de profils limités nous indiquent que les profils des AirCores offrent un excellent moyen de caractériser précisément la distribution verticale de  $CO_2$  et  $CH_4$ . Les biais par rapport aux estimations IASI sont en effet plus faibles pour les profils mesurés avec des AirCores que pour les profils issus de modèles.

Concernant les 2 vols du même jour qui ne donnent pas le même profil, nous avons considéré la valeur moyenne de l'estimation des deux profils. L'accord entre les contenus intégrés, calculés avec les profils AirCore, et les estimations IASI pourrait être encore meilleur si les profils AirCores étaient tous corrigés. Ceci permet de montrer que le positionnement des profils n'est pas aisé et que les modèles par contre donnent des résultats très proches marqués par un biais apparent.

### V.4.3 Interprétation des profils verticaux issus de modèles de transport

Pour mettre en évidence l'intérêt des AirCores pour l'interprétation des profils verticaux issus de modèles de transport, nous allons prendre l'exemple du profil de  $CH_4$  obtenu avec le AirCore-HR à Timmins en 2014.

Nous avons co-localisé géographiquement plusieurs modèles de transport et de prévisions avec cette mesure du AirCore-HR. Les modèles de transports et de prévisions (TM5, LMDz et C-IFS) utilisés ont été détaillés dans le tableau V.1.

L'ensemble des profils récupérés sont visibles en Fig. V.12 (a). D'emblée, la variabilité de concentration troposphérique, mais surtout de gradient de  $CH_4$  stratosphérique dans les modèles est frappante. C'est

aussi le cas entre différentes versions d'un même modèle (différentes résolutions verticales). Il apparaît également que certains modèles permettent par leur haute résolution une représentation de variations sur des échelles plus fines (notamment les profils C-IFS sur 137 niveaux). Les comparaisons de profils verticaux de  $\text{CH}_4$  entre les différents modèles et le profil du AirCore-HR sont détaillées en Fig. V.12 (b), (c), (d) et (e). Ces profils vont être commentés en associant la lecture du tableau V.5, qui présente la valeur de  $\text{CH}_4$  IASI retrouvée en appliquant la fonction de poids au nadir aux différents profils ainsi que les écarts troposphériques et stratosphériques entre les profils issus de modèles et les mesures du AirCore-HR.

La valeur  $q\text{CH}_4$  du contenu troposphérique retrouvé en appliquant la fonction de poids IASI au profil du AirCore-HR est de 1820.9 ppb. Dans une boîte de  $10^\circ \times 10^\circ$  autour du point d'atterrissage de la nacelle le 29 Août 2014, la valeur moyenne des estimations IASI est de 1820.5 ppb. On a donc un écart de seulement 0.4 ppb, ce qui dénote un accord remarquable entre le contenu intégré calculé avec le AirCore-HR et les estimations IASI. A titre indicatif, nous avons présenté dans le tableau V.5 qu'un résultat quasiment identique est obtenu avec le AirCore-GUF et le AirCore-HR. La mesure plus basse résolution réalisée avec ce AirCore lors du même vol (cf chapitre IV) permet de remonter à un contenu intégré vu par l'instrument IASI de 1819.5 ppb, soit un écart de seulement -1.0 ppb avec les estimations IASI. Nous allons donc maintenant comparer ces profils AirCore avec les profils que nous avons pu extraire de différentes simulations.

#### V.4.3.1 LMDz

Commençons par la comparaison avec les profils issus des modèles LMDz. Les co-localisations avec LMDz n'ont pu être réalisées que géographiquement, les données n'étant pour l'instant disponibles que jusqu'en 2011. Les comparaisons avec LMDz (Fig. V.12 (b), (c)) présentent donc les profils moyens au mois d'août pour différentes années ou versions du modèle LMDz co-localisés géographiquement avec les mesures du AirCore-HR.

La Fig. V.12 (b), présente deux versions du profil moyen issu de LMDz pour l'année 2010 : l'une sur 39 niveaux, utilisant la "nouvelle physique" de LMDz, l'autre sur 19 niveaux. Les flux de  $\text{CH}_4$  à la surface, utilisés en entrée, ont été optimisés à l'aide des mesures à la surface et des données GOSAT. Le profil sur 19 niveaux verticaux donne une représentation très différente de la répartition du  $\text{CH}_4$ . La pente du  $\text{CH}_4$  dans la stratosphère y est beaucoup moins prononcée. Ceci semble indiquer qu'à cette résolution et avec "l'ancienne physique"<sup>3</sup> le modèle ne représente pas correctement le  $\text{CH}_4$  dans la stratosphère.

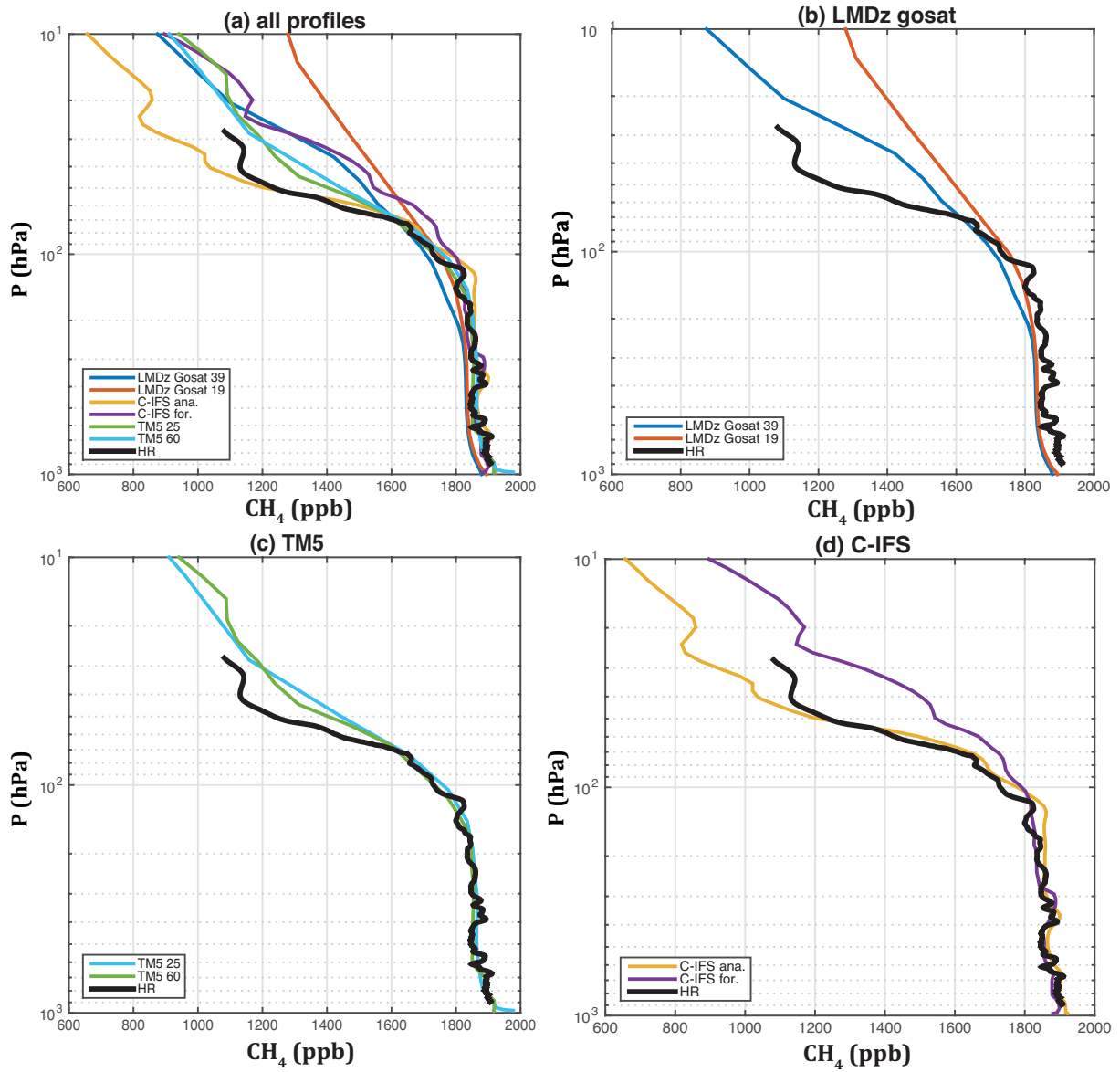
Afin de pouvoir les comparer en terme de contenu intégré avec les mesures AirCore-HR, nous les avons corrigés du biais troposphérique calculé pour l'écart moyen avec les profils du AirCore-HR entre 200-750 hPa. Des biais de -36.5 ppb et de -31.7 ppb ont été retrouvés respectivement pour les profils issus du modèle LMDz sur 39 niveaux et sur 19 niveaux. En corrigeant ces profils de ce biais on peut considérer que l'on ramène ces profils à une valeur de 2014. Le calcul du contenu intégré IASI sur ces profils corrigés nous donne des valeurs de 1832.7 ppb et 1846.5 ppb respectivement. Ces valeurs sont notablement plus fortes que la valeur de  $\text{CH}_4$  moyenne des estimations IASI de 1820.5 ppb. Ces biais sont à mettre en relation avec les fortes valeurs de  $\text{CH}_4$  simulées par le modèle LMDz dans la stratosphère. En effet, dans les deux versions à 39 et 19 niveaux, les gradients de  $\text{CH}_4$  sont bien moins prononcés que dans le profil mesuré *in situ* par le AirCore-HR (Fig. V.12 (b)).

#### V.4.3.2 TM5

En Fig. V.12 (c), on compare le profil du AirCore-HR avec les profils issus de deux versions du modèle TM5 respectivement sur 25 niveaux verticaux, et sur 60 niveaux verticaux. Contrairement aux comparaisons avec LMDz, ces profils sont co-localisés à la fois géographiquement et temporellement.

Par rapport à la figure V.12 (c), il apparaît d'emblée que la représentation du gradient dans la stratosphère est différente de celle du modèle LMDz. Dans les deux versions du modèle TM5, on retrouve un plus fort gradient de  $\text{CH}_4$  et celui-ci est similaire malgré les différentes résolutions. Toutefois, en dessous de 70 hPa dans la stratosphère, les valeurs de  $\text{CH}_4$  de ces profils restent plus fortes que celles du profil de  $\text{CH}_4$  mesuré à Timmins. Le biais moyen dans la stratosphère est respectivement de 64.6 ppb et

3. représentation du cœur dynamique de LMDz



**FIGURE V.12** – (a) Profil du AirCore-HR et de l'ensemble des modèles co-localisés ; (b) Profil de  $\text{CH}_4$  du AirCore-HR avec les profils moyens de deux versions différentes du modèle LMDz en 2010 ; (c) Profil de  $\text{CH}_4$  du AirCore-HR avec les profils de deux versions du modèle TM5 ; (d) Profil de  $\text{CH}_4$  du AirCore-HR avec les profils des analyses et forecast du modèle de prévisions C-IFS.

**TABLE V.5** – Comparaison de la valeur de  $\text{CH}_4$  IASI retrouvée avec les différents profils. (a) résultats de la fonction de poids au nadir des estimations IASI appliquées à chacun des profils co-localisés avec le AirCore-HR. L'écart est ensuite calculé par rapport à la valeur moyenne des estimations IASI dans une boîte de  $10^\circ \times 10^\circ$  autour de Timmins. (b) écarts moyens entre les profils des modèles et les mesures du AirCore-HR dans la partie troposphérique (200-750 hPa) et dans la partie stratosphérique (30-120 hPa). (c) même chose que (a) mais en corrigeant les profils issus de modèles, du biais observé dans la partie troposphérique par rapport aux mesures du AirCore-HR. La valeur de référence IASI dans une boîte de  $10^\circ \times 10^\circ$  autour de Timmins est de 1820.5 ppb. n/a indique que la comparaison n'est pas possible.

<b>(a) Comparaison de la valeur de <math>\text{CH}_4</math> IASI retrouvée avec les différents profils</b>									
	HR	GUF	LMDz(39)	LMDz(19)	TM5(25)	TM5(60)	C-IFS a.	C-IFS f.	
q $\text{CH}_4$	1820.9	1819.5	n/a	n/a	1840.8	1824.8	1840.6	1835.7	
$\Delta$ q $\text{CH}_4$	0.4	-1.0	n/a	n/a	20.3	4.3	20.1	15.2	

<b>(b) Biais troposphérique et stratosphérique par rapport à AirCore-HR</b>									
	HR	GUF	LMDz(39)	LMDz(19)	TM5(25)	TM5(60)	C-IFS a.	C-IFS f.	
Tropo.	/	/	-36.5	-31.7	-1.3	-8.8	11	-3.8	
Strato.	/	/	79	142	64.6	45.5	2.5	155.5	

<b>(c) <math>\text{CH}_4</math> IASI avec les différents profils corrigés du biais troposphérique</b>									
	HR	GUF	LMDz(39)	LMDz(19)	TM5(25)	TM5(60)	C-IFS a.	C-IFS f.	
q $\text{CH}_4$	/	/	1832.7	1846.5	1842.1	1833.6	1829.6	1839.5	
$\Delta$ q $\text{CH}_4$	/	/	12.2	26.5	21.6	13.1	9.1	19	

de 45.5 ppb pour les modèles TM5 à 25 ou à 60 niveaux. Dans la troposphère, on observe un décalage de seulement -1.3 ppb pour le profil à 25 niveaux et de -8.8 ppb pour le profil à 60 niveaux. Pourtant le passage à 60 niveaux modifie légèrement la représentation du profil qui permet de mieux représenter les structures verticales mesurées *in situ*, notamment entre 600 hPa et 900 hPa. En dehors de cette partie, les profils restent assez rectilignes dans la troposphère.

En appliquant les fonctions de poids de l'instrument IASI, on obtient pour la version à 60 niveaux du modèle, un contenu intégré de 1824.8 ppb, soit une valeur très proche du  $\text{CH}_4$  IASI avec un biais de seulement 4.3 ppb. C'est le meilleur résultat avec cette comparaison de profils issus de différents modèles. Néanmoins, sur le profil TM5 à 25 niveaux, la valeur du contenu intégré IASI calculée, reste élevée puisqu'elle est de 1840.8 ppb. Corriger ces profils du biais troposphérique ne fait qu'augmenter les différences dans ce cas.

#### V.4.3.3 C-IFS (CAM5)

Enfin, en Fig. V.12 (d), on compare le profil AirCore-HR avec les analyses et les prévisions du modèle de prévision C-IFS du centre européen de prévisions météorologiques à moyen terme (ECMWF) réalisées dans le cadre du service Atmosphère de Copernicus. Ces profils sont fournis à haute résolution sur 137 niveaux verticaux.

Une différence frappante est observée dans la stratosphère entre les profils issus des analyses et ceux de prévisions. Le profil issu de l'analyse présente une pente stratosphérique comparable à celle du AirCore-HR (avec un biais moyen de seulement 2.5 ppb) tandis que la prévision présente des valeurs trop élevées dans cette partie du profil (un biais moyen de 155.5 ppb). Dans la troposphère en revanche cet équilibre s'inverse puisque ce sont les valeurs de la prévision qui sont inférieures aux mesures (biais de -3.8 ppb) tandis que les analyses y sont en moyenne supérieures de 11 ppb au profil du AirCore-HR.

Au total pour le contenu intégré vu par IASI, ces deux profils sont assez proches puisqu'ils donnent des valeurs de 1840.6 ppb pour les analyses et de 1835.7 ppb pour les prévisions. Ceci démontre que ce n'est pas qu'une question de bon positionnement de la décroissance du  $\text{CH}_4$  dans la stratosphère, mais



que c'est bien l'ensemble de la partie du profil à laquelle sont sensibles les estimations IASI qui doit être correctement caractérisé.

#### V.4.3.4 Résultats de l'interprétation des profils

Cette étude fait ressortir la nécessité de disposer d'une information fiable sur toute la colonne pour la validation des observations spatiales. On constate que les profils issus de modèles donnent des représentations verticales assez différentes de la distribution du  $\text{CH}_4$  notamment au niveau de la stratosphère. Ces différences peuvent avoir plusieurs causes. Il pourrait s'agir d'une mauvaise modélisation ou d'une méconnaissance de la chimie liée à OH. Généralement, les distributions OH viennent de climatologie ou sont indirectement contraintes par d'autres espèces chimiques. Les différences pourraient également provenir d'une représentation faussée des échanges entre troposphère et stratosphère ou encore être liées à une mauvaise distribution du bilan de masse sur la verticale. Ces trois points sont à étudier pour rechercher de possibles améliorations entre les profils issus de modèles et les mesures *in situ* réalisées avec des AirCores.

Bien que les différences stratosphériques soient ce qui apparaît en premier, l'étude démontre que les écarts entre les profils dans la troposphère ont un impact tout aussi important pour la validation des estimations spatiales. Le cas des profils du modèle C-IFS illustre bien l'importance d'avoir une bonne représentation à la fois de la troposphère et de la stratosphère.

La comparaison entre deux AirCores de résolution différente montre également que ce n'est pas nécessairement la haute résolution qui compte pour faire de la validation spatiale mais bel et bien une bonne représentation des grandes structures de variations verticales le long de la colonne atmosphérique (i.e décroissance du  $\text{CH}_4$  dans la stratosphère et variation générale du  $\text{CH}_4$  entre le bas et le haut de la troposphère).

## V.5 Conclusion

Dans ce dernier chapitre, nous nous sommes intéressés à ce que peuvent apporter les profils verticaux mesurés avec des AirCores à la validation d'estimations spatiales en prenant l'exemple des estimations de  $\text{CH}_4$  réalisées avec l'instrument IASI.

Dans une première étape, nous avons montré que la comparaison des contenus intégrés mesurés par l'instrument IASI, avec les contenus intégrés calculés à partir de simulations de  $\text{CH}_4$  des modèles de chimie et transport TM5 et LMDz fait ressortir des biais. Ces biais sont négatifs entre les modèles et IASI dans la bande tropicale et très positifs aux hautes latitudes, notamment dans l'hémisphère Nord.

En utilisant les profils troposphériques obtenus lors de campagnes aéroportées (HIPPO), nous avons montré que des biais à la répartition géographique similaire sont retrouvés entre les modèles et les mesures aéroportées dans la troposphère. Afin d'obtenir un jeu de profils corrigés de ces biais, nous avons combiné les profils troposphériques issus des mesures HIPPO avec des profils issus des simulations TM5 et LMDz corrigés des écarts troposphériques. En réitérant une comparaison avec les estimations IASI, nous avons montré que la correction du biais troposphérique permet une réduction importante des écarts entre les contenus intégrés mesurés par l'instrument IASI et les contenus intégrés calculés dans les simulations de  $\text{CH}_4$  des modèles TM5 et LMDz.

Toutefois, nous avons mis en évidence que pour les situations de l'hémisphère Nord, cette correction troposphérique ne suffit pas à expliquer les écarts résiduels entre les estimations de méthane IASI et les contenus intégrés calculés dans les modèles. En utilisant les mesures stratosphériques issues de profils de AirCores pour remplacer la partie stratosphérique des profils précédents, nous avons constaté qu'une mauvaise caractérisation de la stratosphère dans les modèles pourrait être à l'origine du problème.

Dans une dernière partie, nous avons rassemblé un jeu de plusieurs profils de AirCores en récupérant des mesures réalisées à Sodankyla par l'Université de Groningen. En retenant pour cette étude un total de 7 profils nous avons testé les mesures *in situ* AirCores pour évaluer les estimations de  $\text{CH}_4$  IASI. Les comparaisons avec les profils issus de AirCores ont démontré un très bon accord et un faible écart-type ( $-2.8 \pm 8.7$  ppb) tandis qu'avec des profils issus des modèles de prévisions C-IFS ou de chimie-transport TM5 co-localisés aux mesures AirCores un biais négatif est observé. Le bon résultat avec les profils de AirCores valide l'extension des estimations IASI aux hautes latitudes.

Pour finir, nous avons illustré avec l'exemple d'un profil AirCore l'interprétation des profils issus de modèles. De forts biais observés avec les modèles dans la stratosphère pourraient provenir d'une mauvaise modélisation ou d'une méconnaissance de la chimie liée à OH ou encore être liés à une mauvaise distribution du bilan de masse sur la verticale. Toutefois, notre étude démontre également que les écarts entre les profils dans la troposphère ont un impact important pour la validation des estimations spatiales. Ce travail fait ressortir la nécessité de disposer d'une information fiable sur toute la colonne pour la validation des observations spatiales.

# Chapitre VI

## Conclusions et Perspectives

### Sommaire

---

<b>VI.1</b>	<b>Développement instrumental des AirCores et traitement des données . . .</b>	<b>.114</b>
VI.1.1	Réflexions sur la conception instrumentale des AirCores . . . . .	.115
VI.1.2	Amélioration du traitement des données . . . . .	.115
VI.1.3	Validation des profils et de leur résolution . . . . .	.116
VI.1.4	Enseignements sur le déroulement des campagnes . . . . .	.116
VI.1.5	Perspectives. . . . .	.117
<b>VI.2</b>	<b>Exploitation des profils mesurés à l'aide de AirCores . . . . .</b>	<b>.117</b>
VI.2.1	Conclusions sur la validation des mesures satellites . . . . .	.117
VI.2.2	Perspectives. . . . .	.118

---

L'augmentation des concentrations atmosphériques de dioxyde de carbone ( $\text{CO}_2$ ) et de méthane ( $\text{CH}_4$ ) depuis le début de l'ère industrielle est à l'origine du réchauffement climatique actuel. Cette accumulation rapide du  $\text{CO}_2$  et du  $\text{CH}_4$  dans l'atmosphère au cours des 250 dernières années est directement liée aux fortes émissions produites par les activités humaines. Ce constat a entraîné une prise de conscience sociétale de la problématique du climat amenant à la mise en place de régulations internationales. Ainsi, l'objectif affiché lors des accords de Paris (COP21) en décembre 2015 est d'essayer de limiter le réchauffement climatique à moins de  $1.5^\circ\text{C}$  par rapport à l'ère pré-industrielle (en utilisant la température moyenne de la période 1880-1899 comme référence). La prise de conscience politique sur cette question est essentielle pour mettre en œuvre des transitions sociétales indispensables pour espérer préserver l'équilibre climatique de notre planète.

Dans ce contexte, le suivi et la prévision de l'évolution de la concentration atmosphérique des deux principaux gaz à effet de serre anthropogéniques ( $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$ ) sont des enjeux majeurs au cœur des recherches actuelles en sciences du climat. Ces enjeux nécessitent une compréhension approfondie du fonctionnement des sources et des puits du  $\text{CO}_2$  et du  $\text{CH}_4$  qui contrôlent l'évolution de la concentration de ces gaz dans l'atmosphère à l'échelle planétaire. L'objectif final est de comprendre comment la planète réagit au rejet massif de ces gaz par les activités humaines qui viennent perturber le cycle naturel de ceux-ci entre les différents réservoirs (atmosphère, biosphère, surfaces continentales, cryosphère).

Au cours des dernières décennies, le développement continu de nouveaux moyens de mesures déployés aux quatre coins du monde, dans les airs et en orbite dans l'espace sur des plate-formes satellites a grandement contribué à développer notre capacité d'observation des gaz à effet de serre dans l'atmosphère. Une des méthodes possible pour estimer les flux de  $\text{CO}_2$  et de  $\text{CH}_4$  en utilisant ces observations atmosphériques est la modélisation inverse. En comparant les concentrations mesurées par différents instruments avec les concentrations 3D simulées par des modèles de chimie-transport à partir d'une connaissance *a priori* des flux, il est possible d'estimer les flux optimisés rendant compte de la réalité des observations atmosphériques. L'amélioration des modèles de chimie-transport et l'augmentation du nombre et de la diversité des observations atmosphériques ont permis des progrès considérables dans nos connaissances

des cycles biogéochimiques du  $\text{CO}_2$  et du  $\text{CH}_4$ . Cependant, le manque d'observations précises de la distribution verticale des gaz à effet de serre le long de la colonne atmosphérique est un facteur limitant pour exploiter pleinement la synergie entre les différentes observations et les modèles. La disponibilité de profils verticaux de concentration de gaz à effet de serre permettrait non seulement de développer nos connaissances sur leur transport et leur évolution dans l'atmosphère mais aussi d'apporter des données nouvelles et précieuses pour évaluer les estimations satellites et interpréter les simulations des modèles de transports.

Au cours de cette thèse, nous nous sommes intéressés à un instrument original et innovant pour mesurer des profils verticaux de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  appelé "AirCore". Initialement développé à la NOAA/ESRL sur une idée originale de Pieter Tans en 2008 (Tans, 2009), le concept du AirCore a été décrit pour la première fois dans un article scientifique en 2010 (Karion et al., 2010). Cette thèse est cependant la première qui concerne la modélisation du AirCore, le développement des versions haute et basse résolution, la mesure et l'exploitation de profils verticaux avec des AirCores.

Dans le cadre de cette thèse, nous avons également jeté les bases d'un réseau européen sur le AirCore en réunissant, lors de 2 workshop (en Juin 2014 et en Octobre 2015) au CNES Paris, les 4 équipes impliquées : la NOAA/ESRL, le Centre de Recherches Isotopiques (CIO) de l'Université de Groningen, l'Institut pour les Sciences Atmosphériques et Environnementales (IAE) de l'Université Goethe de Francfort (GUF) et le Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMD).

Une mobilité doctorale de 6 mois a été effectuée aux Pays-Bas, dans 2 laboratoires différents. Un premier séjour au Centre de Recherche Isotopiques de l'Université de Groningen (CIO/RijksUniversity Groningen) a été consacré à renforcer le lien entre les laboratoires européens développant des AirCores et compléter le jeu de profils de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  issus de AirCores utilisés dans cette thèse. Un deuxième séjour a été réalisé à l'Agence Spatiale Néerlandaise (SRON) et l'Université d'Utrecht (UU) pour acquérir des données issues de modèles de chimie-transport.

Grâce au développement de différents AirCores au LMD, que nous avons déployé lors de 3 campagnes Strato-Sciences du CNES en 2014, 2015 et 2016, nous avons pu mesurer pour la première fois, des profils de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  à haute résolution et les comparer avec des profils mesurés à plus basse résolution. Ces profils ont servi à étudier l'apport de ces mesures novatrices pour la validation des estimations spatiales de  $\text{CH}_4$  réalisées au LMD avec l'instrument IASI/Metop et à interpréter les différences observées avec les distributions 3D de  $\text{CH}_4$  simulées par différents modèles de chimie-transport ou de prévisions atmosphériques.

Ce dernier chapitre résume les conclusions et principaux résultats obtenus dans cette thèse, depuis la conception de l'instrument jusqu'à l'exploitation de ses données, afin d'aboutir à la mesure de profils verticaux avec des AirCores utiles pour les problématiques scientifiques exposées ci-dessus. Nous présenterons dans ce résumé les perspectives scientifiques et instrumentales qu'offre l'ensemble de ce travail.

## VI.1 Développement instrumental des AirCores et traitement des données

Nous rappelons ici qu'un AirCore est un long tube ( $\sim 100\text{m}$ ) de petit diamètre ( $<1\text{cm}$ ) d'acier inoxydable utilisé pour collecter un échantillon d'air. Déployé sous ballon stratosphérique avec une extrémité maintenue ouverte, le principe du AirCore repose sur la variation de la pression ambiante pour échantillonner continûment l'air le long de la colonne atmosphérique lors de la descente. À l'atterrissage, la fermeture automatique d'une vanne permet de préserver l'échantillon. Une chaîne d'analyse spécifique est alors mise en place pour analyser le contenu en  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  de l'échantillon prélevé. Celle-ci comprend un analyseur haute précision (Picarro CRDS  $\text{CO}_2/\text{CH}_4$  dans notre cas) et des bouteilles de gaz de référence calibrés sur les échelles de mesures internationales de la WMO. Conjointement à la mesure des rapports de mélange de  $\text{CO}_2$  et de  $\text{CH}_4$  dans l'échantillon prélevé, le traitement des données enregistrées par une électronique embarquée permet de remonter aux profils verticaux de gaz à effet de serre  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$ .

Les AirCores développés au LMD durant cette thèse sont de deux types :

- Un AirCore-HR "haute résolution" d'une longueur totale de 300 m combinant un tube de 200 m, de diamètre (1/8 in.) et un tube de 100 m, de diamètre (1/4 in.) permettant d'échantillonner près de 3l

d'air pour une masse totale de l'instrument de 30 kg (avec son boîtier de protection). Cet AirCore-HR a été conçu sans contrainte de dimensionnement spécifique puisqu'il est uniquement dédié à être déployé avec des nacelles sous BSO ayant d'importantes capacités d'emport. Les proportions du AirCore-HR ont été choisies pour permettre d'obtenir la meilleure résolution possible dans la région de la haute troposphère - basse stratosphère pour observer les forts gradients de concentration qui y sont attendus. La résolution verticale typique du AirCore-HR est de 150 m à 10 km et de 400 m à 20 km.

- Plusieurs AirCores-Light identiques. D'une longueur totale de 69 m combinant un tube de 46 m, de diamètre 4 mm et un tube de 23 m, de diamètre 8 mm permettant d'échantillonner un volume de près d'1.5l d'air pour une masse totale de près de 3 kg (avec leur boîtier de protection). Le dimensionnement de ces AirCores a été pensé pour permettre leurs déploiements sous ballon météorologique, il respecte ainsi une masse maximale de 3 kg. La résolution verticale typique d'un AirCore-Light est de 400 m à 10 km et de 1400 m à 20 km.

### VI.1.1 Réflexions sur la conception instrumentale des AirCores

Il est possible de concevoir des configurations différentes en combinant des sections de tube de longueur et de diamètre variables pour accéder à des résolutions verticales différentes. Le calcul de la résolution verticale théorique de différents AirCores en fonction de l'altitude où a été prélevé l'air nécessite de comprendre comment l'air échantillonné se mélange progressivement dans un AirCore au fil du temps.

Notre étude a confirmé que trois phénomènes sont à prendre en compte pour représenter ce mélange dans l'échantillon : la diffusion moléculaire, la dispersion de Taylor, et le mélange au sein de la cellule de mesure de l'analyseur. Lors d'un module d'initiation à la recherche d'étudiants de l'École Polytechnique que j'ai co-encadré, des mesures en laboratoire de la déformation de crêpeaux alternant des concentrations de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  différentes ont permis d'observer ces différents phénomènes (pour des mesures directes et des durées de stockage des crêpeaux dans le AirCore de 22 et 120 h). La comparaison de ces mesures avec une modélisation de ces phénomènes a permis de valider la cohérence de la description physique des phénomènes de mélange.

Ces phénomènes de mélange sont utilisés pour calculer la résolution verticale typique d'un AirCore donnée que l'on annonce généralement pour le  $\text{CO}_2$  pour un délai de 3 heures d'attente avant l'analyse. Toutefois, notre étude a montré que celle-ci peut être rapidement dégradée pour des temps d'attente prolongé et cette dégradation de la résolution verticale est d'autant plus rapide que le volume total prélevé et la longueur totale du AirCore est faible. Les AirCores nécessitent donc une logistique adaptée pour récupérer et analyser l'échantillon collecté le plus rapidement possible.

### VI.1.2 Amélioration du traitement des données

Dans cette thèse, nous nous sommes attachés à définir précisément le traitement des données qu'il est nécessaire d'effectuer afin d'en déduire un profil de concentration de gaz à partir de l'échantillon prélevé. Trois étapes principales ont été considérées.

La première étape consiste à préparer les données issues de la mesure des rapports de mélange effectuée par l'instrument Picarro. La deuxième étape consiste à harmoniser les données des paramètres d'environnement mesurés par l'électronique embarquée. Enfin, la dernière étape permet de passer des données pré-traitées au positionnement vertical des profils. Nous avons présenté une première approche simple du positionnement des profils en considérant un équilibre de pression instantané de la pression dans le AirCore avec la pression ambiante.

Cependant, des mesures réalisées avec un capteur de pression différentielle placé à l'extrémité fermée lors du premier vol du AirCore-HR ont permis pour la première fois de confirmer l'existence d'une différence de pression à l'intérieur du AirCore. Cette différence de pression était attendue et s'explique par le phénomène de perte de charge lié à une variation progressive de la pression dans le AirCore lorsque la pression ambiante à l'entrée augmente ou diminue. La prise en compte de ce phénomène pour réaliser précisément le positionnement vertical des profils nécessite de le modéliser.

Par ailleurs, nous avons montré que des corrections additionnelles du positionnement sont à réaliser dans certains cas particuliers. Par exemple, lors du dysfonctionnement de la vanne de fermeture, une

partie du profil prélevé est souvent perdue sous l'effet de la dilatation de l'air lors du réchauffement du AirCore durant le temps d'attente avant l'analyse. Une correction du positionnement relativement importante est dans ce cas à prendre en compte.

Enfin, le calcul des incertitudes associées aux profils a été réalisé en utilisant une méthode d'ensemble pour prendre en compte les différentes sources d'incertitudes : celles du Picarro pour la mesure des rapports de mélange, mais aussi celles des capteurs de pression et de température lors du vol, sans oublier l'influence des choix de l'utilisateur dans le traitement des données et les incertitudes supplémentaires dans les cas particuliers de dysfonctionnement de la vanne de fermeture.

Pour finir, des premières réunions organisées à l'initiative du LMD ont permis de rassembler des chercheurs des différents laboratoires développant des AirCores. Des discussions sont en cours pour converger vers des méthodes de traitement des données identiques (langage informatique, code, erreurs) et un format de distribution commun à été choisi : le format NASA Ames. Les données des AirCores du LMD sont distribuées via AERIS<sup>1</sup>.

### VI.1.3 Validation des profils et de leur résolution

L'ensemble des profils verticaux acquis par des AirCores lors des campagnes Strato-Sciences 2014, 2015 et 2016 du CNES ont été analysés au LMD. Lors de ces campagnes, les AirCores ont été déployés sur des nacelles multi-instruments comprenant à chaque fois plusieurs AirCores de résolutions verticales différentes et d'autres instruments permettant la mesure de paramètres atmosphériques *in situ*.

Les comparaisons entre les profils de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub> entre les différents AirCores ont révélé qu'un accord remarquable est retrouvé sur les profils de CH<sub>4</sub> (à une précision de quelques ppb sur la colonne). Entre les profils de CO<sub>2</sub> l'accord est moins bon puisque les résultats ont révélé que des différences de quelques ppm peuvent apparaître. Malgré tout en terme de structure, l'accord entre les profils de CO<sub>2</sub> demeure très bon. Ces résultats ont démontré la répétabilité des mesures avec les AirCores. Les incertitudes associées à chacun des profils ont été calculées. Les incertitudes moyennes sur toute la colonne sont de l'ordre de 3 ppb (moins de 0,2 %) pour le CH<sub>4</sub> et de 0.3 ppm (moins de 0,1 %) pour le CO<sub>2</sub> même si ponctuellement lors de forts gradients, un décalage de positionnement vertical peut entraîner une incertitude locale importante.

Une méthode pour dégrader la résolution verticale des mesures du AirCore-HR a été développée afin de pouvoir en comparer les profils avec ceux de AirCores de plus basse résolution. L'accord retrouvé entre les profils du AirCore-HR ainsi "dégradés" et les profils obtenus par l'analyse des échantillons prélevés par des AirCores de plus basse résolution a donné de très bons résultats. Des différences entre les profils des AirCores basse résolution et les profils du AirCore-HR "dégradés" du même ordre que les incertitudes sur les profils ont été observées. Cette expérience a permis de valider le calcul de résolution verticale théorique des AirCores. Lors de la campagne de 2016, les effets d'un temps d'attente prolongé (de 30h) sur le mélange de l'échantillon dans un AirCore-Light ont été testés et ont confirmé ces résultats pour des délais longs.

Une comparaison avec des mesures indépendantes des spectromètres Pico-SDLA CO<sub>2</sub> et Pico-SDLA CH<sub>4</sub> embarqués sur les mêmes nacelles, nous a permis de confirmer le bon positionnement vertical des mesures réalisées par les AirCores. Un très bon accord est retrouvé en terme de structure entre les profils AirCore-HR et les profils Pico-SDLA ramenés à la résolution du AirCore-HR. Toutefois, des différences de l'ordre de 1-2% sont retrouvées entre les mesures. Ces différences pourraient provenir d'erreurs dans les contenus inversés à partir des spectres mesurés par les instruments Pico-SDLA qui sont sensibles à la moindre erreur sur la mesure de température ou de pression. Il pourrait également s'agir d'un biais restant dans les mesures des AirCores.

### VI.1.4 Enseignements sur le déroulement des campagnes

Lors du premier vol en 2014, une altération dans les rapports de mélange de CO<sub>2</sub> des échantillons prélevés entre 60 et 95 hPa dans les AirCores a été détectée. Cette altération dans les mesures de CO<sub>2</sub>, retrouvée uniquement à l'altitude où un plateau a été marqué en vol, a permis de réaliser que pour un

1. AERIS Données et services pour l'atmosphère <http://www.aeris-data.fr/>

échantillonnage optimal les AirCores doivent effectuer une descente continue sans marquer de pauses et surtout pas de phases de remontées.

En 2016, il a été testé de faire voler un AirCore sans sécheur. En effet, l'usage de cet élément à l'entrée du AirCore fait polémique au sein de la communauté. Nous avons donc souhaité vérifier si l'on pouvait s'affranchir de cet élément qu'on suspecte d'interagir avec le  $\text{CO}_2$ . Les résultats ont montré que dans ce cas, on retrouve précisément les mesures de  $\text{CH}_4$  et les mesures de  $\text{CO}_2$  avec un écart qui n'est pas plus important qu'entre deux AirCores avec sécheur. Il semble donc possible de faire voler, sans risque sur les profils, des AirCores sans sécheur.

### VI.1.5 Perspectives

Concernant les profils de  $\text{CO}_2$  mesurés avec des AirCores, nous avons vu que des écarts allant parfois jusqu'à quelques ppm sont retrouvés dans certaines parties des profils de  $\text{CO}_2$  obtenus avec différents AirCores lors d'un même vol. Ces écarts ne permettent pas d'avoir une confiance suffisante pour faire de la validation spatiale avec les profils de  $\text{CO}_2$  obtenus avec des AirCores. Nous avons montré que ces différences pourraient être dues au perchlorate de magnésium utilisé dans les sécheurs à l'entrée des AirCores pour limiter l'humidité entrant dans le système. Un test de AirCore sans sécheur a montré qu'il semble possible de faire voler ceux-ci sans sécheur à l'entrée. Pour valider complètement ces mesures il faudrait vérifier que deux systèmes sans sécheur permettent de retrouver des mesures de  $\text{CO}_2$  identiques.

Pour étudier les biais relativement important de l'ordre du % qui ont été observés entre les mesures Pico-SDLA et les profils issus des AirCores, une expérience idéale serait de les faire voler conjointement avec un système qui capture des flasques d'air à des pressions définies dont la concentration en  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  pourrait être très précisément déterminée en laboratoire. Embarquer plusieurs instruments basés sur des principes de mesures différents (Pico-SDLA, AMULSE, AirCores, Cryosampler...) serait une bonne approche pour rendre compte de l'impact des variations des conditions de mesure le long de la colonne atmosphérique sur les mesures réalisées par les différents instruments.

De nouveaux AirCore-UltraLight, encore plus légers, facilement déployables sont en cours de fabrication qui devront être comparés à d'autres AirCores. Il serait souhaitable également de renouveler la mesure de pression différentielle entre l'extrémité fermée du AirCore et la pression ambiante pour renforcer les connaissances sur la perte de charge qui s'établit dans le AirCore lors d'un vol en descente constante (et non marqué par un plateau). Enfin, nous avons vu que des difficultés ont été rencontrées à plusieurs reprises avec les systèmes de fermeture, soit liées à des défaillances de l'électronique embarquée, soit liées directement à un dysfonctionnement des systèmes de fermeture. Il est nécessaire de poursuivre l'amélioration de ces systèmes pour converger vers une configuration qui soit la plus fonctionnelle possible.

Pour finir, les résultats de comparaisons entre les profils issus de différents AirCores, ainsi que les résultats de comparaisons entre ces profils issus des AirCores et les profils mesurés avec d'autres instruments, ont permis d'illustrer que les ballons stratosphériques ouverts sont un outil unique permettant de tester et de comparer de nombreux instruments *in situ*. Bien que les campagnes annuelles du CNES supposent une logistique particulière et ne permettent qu'un nombre limité de vol, elles offrent des opportunités uniques à la communauté scientifique pour réaliser des mesures de qualité sur toute la colonne atmosphérique. Nous prévoyons donc de poursuivre les vols sous BSO, avec le plus d'instruments possibles et, si possible, diverses conditions atmosphériques.

## VI.2 Exploitation des profils mesurés à l'aide de AirCores

### VI.2.1 Conclusions sur la validation des mesures satellites

Une dernière étape du travail réalisé lors de cette thèse a consisté à exploiter scientifiquement les profils issus de AirCores acquis lors de diverses campagnes de mesures afin d'étudier la possibilité d'utiliser des AirCores pour la validation de missions spatiales dédiées à l'observation des gaz à effet de serre. Notre étude est centrée autour de la validation des estimations de  $\text{CH}_4$  réalisées avec l'instrument IASI au LMD. Au cours de cette thèse, les estimations de  $\text{CH}_4$  IASI ont été étendues de la bande tropicale aux

hautes latitudes. Avec les satellites MetopA et MetopB près de 10 années d'observations continues du  $\text{CH}_4$  depuis Juillet 2007 sont disponibles.

À l'aide de l'utilisation d'un jeu de profils issu de AirCores lors des campagnes Strato-Sciences, complété de profils mesurés régulièrement à Sodankyla par une collaboration entre l'Université de Groningen et l'Institut Météorologique Finlandais, nous avons montré que les colonnes complètes permettent de valider le  $\text{CH}_4$  estimé par IASI. Une différence moyenne de l'ordre de  $-2.8 \pm 8.7$  ppb est retrouvée, ce qui valide l'extension des estimations de  $\text{CH}_4$  IASI aux hautes latitudes.

L'utilisation de profils complets est essentielle pour valider les colonnes totales ou partielles de gaz à effet de serre. En effet, nous avons montré que l'utilisation de profils, mesurés par avion dans la troposphère uniquement, ou de profils simulés par les modèles ne permettaient pas, seuls de valider les estimations.

Une comparaison des contenus intégrés mesurés par l'instrument IASI, avec les contenus intégrés calculés dans les simulations de  $\text{CH}_4$  des modèles de chimie-transport TM5 et LMDz a fait ressortir de forts biais. Ces biais sont marqués par un écart négatif entre les modèles et IASI dans la bande tropicale et un fort écart positif aux hautes latitudes, notamment dans l'hémisphère Nord.

Pour étudier d'où proviennent ces biais, des comparaisons ont été menées en utilisant les profils troposphériques obtenus lors de campagnes aéroportées (HIPPO). Les mesures de profils de  $\text{CH}_4$  aéroportées ne suffisent pas à renseigner l'ensemble de la variation verticale du  $\text{CH}_4$  vu par IASI, nous les avons complétées avec les profils des modèles TM5 et LMDz puis avec des mesures AirCore. Nous avons montré que des biais sont retrouvés entre les modèles et les mesures aéroportées dans la troposphère. Ces biais nécessitent d'être pris en compte, mais ne suffisent pas à expliquer les écarts résiduels entre les estimations de méthane IASI et les modèles.

Cette étude fait ressortir la nécessité de disposer d'une information fiable sur toute la colonne pour la validation des observations spatiales. Les biais observés avec les modèles dans la stratosphère pourraient provenir d'une mauvaise modélisation ou d'une méconnaissance de la chimie liée à OH ou encore être liés à une mauvaise distribution du bilan de masse sur la verticale. Toutefois, notre étude démontre également que les écarts entre les profils dans la troposphère ont un impact important pour la validation des estimations spatiales. La comparaison entre deux AirCores de résolution différente a montré que ce n'est pas nécessairement la haute résolution qui compte pour faire de la validation spatiale mais bel et bien une bonne représentation des grandes structures de variations verticales le long de la colonne atmosphérique (i.e décroissance du  $\text{CH}_4$  dans la stratosphère et variation générale du  $\text{CH}_4$  entre le bas et le haut de la troposphère).

## VI.2.2 Perspectives

Notre étude a montré que les AirCores permettent d'apporter une validation robuste des estimations spatiales. Ce travail est une première étape pour ouvrir la voie à des mesures et des comparaisons plus systématiques qui nécessitent plusieurs développements.

- Le nombre de profils de AirCore disponibles est encore faible. Il faut continuer les vols pour constituer des climatologies de profils de gaz à effet de serre rassemblant des observations représentatives des différents cas de figure ainsi que de la variabilité saisonnière et régionale. Toutes ces informations sur les variations le long de la colonne sont nécessaires pour valider les différentes missions spatiales de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  et évaluer les modèles de transports.
- Les mesures avec des AirCores n'ont jusqu'ici pas été faites dans un souci de validation de missions spatiales, mais pour prouver le concept. Le travail développé dans le dernier chapitre de cette thèse a permis de montrer le potentiel important des mesures des profils verticaux de  $\text{CO}_2$  et de  $\text{CH}_4$  réalisées avec des AirCores pour la validation satellite et l'interprétation de modèle de chimie-transport et de prévisions. Poursuivre ce travail est indispensable pour répondre à la forte demande de la part de la communauté satellite pour des mesures de calibration/validation des missions actuelles (TANSO-FTS (GOSAT), OCO-2 et IASI/Metop-A/B), et à la nécessité de développer dès à présent la stratégie de ces activités pour les futures missions spatiales dédiées aux gaz à effet de serre (Merlin, MicroCarb, IASI-NG). Il faudrait déterminer la meilleure stratégie de couverture spatio-temporelle pour valider les missions spatiales. Dans un cas idéal, on pourrait envisager la possibilité de réaliser des lâchers en ciel clair coïncidant avec le passage de satellites et des mesures aéroportées.



- Par ailleurs, du côté de la communauté des modélisateurs, la disponibilité d'informations sur la distribution verticale suscite un fort engouement pour évaluer le transport atmosphérique mis en œuvre par les modèles. Notre étude a montré que les informations apportées par les mesures *in situ* avec des AirCores dans la stratosphère sont capitales pour répondre à ces besoins et évaluer les modifications à apporter aux modèles pour mieux représenter la stratosphère. Un effort en ce sens a été démarré avec l'ECMWF dans le cadre du Copernicus Atmospheric Service.
- Au-delà des gaz à effet de serre, les échantillons d'air prélevé par des AirCores pourraient être analysés pour la mesure de différents gaz traces ou du fractionnement isotopique de certains constituants. Les résultats obtenus avec les profils de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> actuellement disponibles pourraient également être valorisés en étudiant l'âge de l'air dans la stratosphère à partir des mesures de CO<sub>2</sub>. Les variations de CO<sub>2</sub> observées dans la stratosphère avec le AirCore-HR semblent indiquer que les mesures permettent d'observer de manière très fine le transport de l'air dans les différentes strates.

Pour répondre aux questions ouvertes par certaines des perspectives, de nombreux projets sont actuellement en cours. Les futures campagnes de mesures du CNES à Alice Springs en Australie et, à plus long terme, dans la région tropicale, permettront de caractériser la colonne atmosphérique de 0 à 30 km d'altitude dans des régions peu voire pas observées, ainsi que de poursuivre le déploiement simultané de nombreux AirCores pour tester de potentielles améliorations technologiques.

En dehors des campagnes Strato-Sciences, des projets de campagnes de vols de AirCores-Light avec des ballons météorologiques ont été initiés d'une part avec le LSCE pour déployer des AirCores sur le sites ICOS, TCCON de Trainou et d'autres part avec le CNES pour des lâchers réguliers depuis le site historique de lancer de ballons à Aire-sur-l'Adour. Une campagne est en cours en ce mois d'octobre 2016 à Trainou.

Pour finir, s'appuyer sur les infrastructures des réseaux existants pour développer les mesures AirCores offre de belles perspectives. Ces réseaux présentent en effet l'avantage de disposer des instruments nécessaires à l'analyse des échantillons prélevés par les AirCores (Picarro dans toutes les stations ICOS par exemple) et de pouvoir utiliser les mesures de AirCores pour valider les colonnes mesurées par les instruments TCCON.



# Bibliographie

## A

- Agusti-Panareda, A., Massart, S., Chevallier, F., Boussetta, S., Balsamo, G., Beljaars, A., Ciais, P., Deutscher, N. M., Engelen, R., Jones, L., Kivi, R., Paris, J.-D., Peuch, V.-H., Sherlock, V., Vermeulen, A. T., Wennberg, P. O. et Wunch, D., « Forecasting global atmospheric CO<sub>2</sub> », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 14, n° 21, p. 11959–11983, DOI : [10.5194/acp-14-11959-2014](https://doi.org/10.5194/acp-14-11959-2014), 2014.
- Allaire, G., *Analyse numérique et optimisation*, Editions de l'Ecole Polytechnique, 2004.
- Andrews, A. E., Boering, K. A., Daube, B. C., Wofsy, S. C., Loewenstein, M., Jost, H., Podolske, J. R., Webster, C. R., Herman, R. L., Scott, D. C., Flesch, G. J., Moyer, E. J., Elkins, J. W., Dutton, G. S., Hurst, D. F., Moore, F. L., Ray, E. A., Romashkin, P. A. et Strahan, S. E., « Mean ages of stratospheric air derived from in situ observations of CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, and N<sub>2</sub>O », *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, t. 106, n° D23, p. 32295–32314, DOI : [10.1029/2001JD000465](https://doi.org/10.1029/2001JD000465), 2001.
- Archer, D. et Brovkin, V., « The millennial atmospheric lifetime of anthropogenic CO<sub>2</sub> », *Climatic Change*, t. 90, n° 3, p. 283–297, DOI : [10.1007/s10584-008-9413-1](https://doi.org/10.1007/s10584-008-9413-1), 2008.
- Aris, R., « On the Dispersion of a Solute in a Fluid Flowing through a Tube », *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, t. 235, n° 1200, p. 67–77, DOI : [10.1098/rspa.1956.0065](https://doi.org/10.1098/rspa.1956.0065), 1956.
- Azer, K., « Taylor diffusion in time-dependent flow », *International Journal of Heat and Mass Transfer*, t. 48, n° 13, p. 2735–2740, DOI : [10.1016/j.ijheatmasstransfer.2005.02.007](https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2005.02.007), 2005.

## B

- Baker, D. F., Law, R. M., Gurney, K. R., Rayner, P., Peylin, P., Denning, A. S., Bousquet, P., Bruhwiler, L., Chen, Y.-H., Ciais, P., Fung, I. Y., Heimann, M., John, J., Maki, T., Maksyutov, S., Masarie, K., Prather, M., Pak, B., Taguchi, S. et Zhu, Z., « TransCom 3 inversion intercomparison : Impact of transport model errors on the interannual variability of regional CO<sub>2</sub> fluxes, 1988–2003 », *Global Biogeochemical Cycles*, t. 20, n° 1, GB1002, n/a–n/a, DOI : [10.1029/2004GB002439](https://doi.org/10.1029/2004GB002439), 2006.
- Baker, A. K., Schuck, T. J., Brenninkmeijer, C. A. M., Rauthe-Schöch, A., Slemr, F., Velthoven, P. F. J. van et Lelieveld, J., « Estimating the contribution of monsoon-related biogenic production to methane emissions from South Asia using CARIBIC observations », *Geophysical Research Letters*, t. 39, n° 10, L10813, n/a–n/a, DOI : [10.1029/2012GL051756](https://doi.org/10.1029/2012GL051756), 2012.
- Batjes, N., « Total carbon and nitrogen in the soils of the world », *European Journal of Soil Science*, t. 47, n° 2, p. 151–163, DOI : [10.1111/j.1365-2389.1996.tb01386.x](https://doi.org/10.1111/j.1365-2389.1996.tb01386.x), 1996.
- Beck, V., Chen, H., Gerbig, C., Bergamaschi, P., Bruhwiler, L., Houweling, S., Röckmann, T., Kolle, O., Steinbach, J., Koch, T., Sapart, C. J., Veen, C. van der, Frankenberg, C., Andreae, M. O., Artaxo, P., Longo, K. M. et Wofsy, S. C., « Methane airborne measurements and comparison to global models

- during BARCA », *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, t. 117, n° D15, D15310, n/a–n/a, DOI : [10.1029/2011JD017345](https://doi.org/10.1029/2011JD017345), 2012.
- Beer, C., Reichstein, M., Tomelleri, E., Ciais, P., Jung, M., Carvalhais, N., Rödenbeck, C., Arain, M. A., Baldocchi, D., Bonan, G. B., Bondeau, A., Cescatti, A., Lasslop, G., Lindroth, A., Lomas, M., Luysaert, S., Margolis, H., Oleson, K. W., Rouspard, O., Veenendaal, E., Viovy, N., Williams, C., Woodward, F. I. et Papale, D., « Terrestrial Gross Carbon Dioxide Uptake : Global Distribution and Covariation with Climate », *Science*, t. 329, n° 5993, p. 834–838, DOI : [10.1126/science.1184984](https://doi.org/10.1126/science.1184984), 2010.
- Bergamaschi, P., Frankenberg, C., Meirink, J. F., Krol, M., Villani, M. G., Houweling, S., Dentener, F., Dlugokencky, E. J., Miller, J. B., Gatti, L. V., Engel, A. et Levin, I., « Inverse modeling of global and regional CH<sub>4</sub> emissions using SCIAMACHY satellite retrievals », *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, t. 114, n° D22, D22301, n/a–n/a, DOI : [10.1029/2009JD012287](https://doi.org/10.1029/2009JD012287), 2009.
- Bönisch, H., Engel, A., Curtius, J., Birner, T. et Hoor, P., « Quantifying transport into the lowermost stratosphere using simultaneous in-situ measurements of SF<sub>6</sub> and CO<sub>2</sub> », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 9, n° 16, p. 5905–5919, DOI : [10.5194/acp-9-5905-2009](https://doi.org/10.5194/acp-9-5905-2009), 2009.
- Bönisch, H., Engel, A., Birner, T., Hoor, P., Tarasick, D. W. et Ray, E. A., « On the structural changes in the Brewer-Dobson circulation after 2000 », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 11, n° 8, p. 3937–3948, DOI : [10.5194/acp-11-3937-2011](https://doi.org/10.5194/acp-11-3937-2011), 2011.
- Bousquet, P., Ciais, P., Miller, J. B., Dlugokencky, E. J., Hauglustaine, D. A., Prigent, C., Van der Werf, G. R., Peylin, P., Brunke, E. G., Carouge, C., Langenfelds, R. L., Lathière, J., Papa, F., Ramonet, M., Schmidt, M., Steele, L. P., Tyler, S. C. et White, J., « Contribution of anthropogenic and natural sources to atmospheric methane variability », *Nature*, t. 443, n° 7110, p. 439–443, DOI : [10.1038/nature05132](https://doi.org/10.1038/nature05132), 2006.
- Bousquet, P., Ringeval, B., Pison, I., Dlugokencky, E. J., Brunke, E.-G., Carouge, C., Chevallier, F., Fortems-Cheiney, A., Frankenberg, C., Hauglustaine, D. A., Krummel, P. B., Langenfelds, R. L., Ramonet, M., Schmidt, M., Steele, L. P., Szopa, S., Yver, C., Viovy, N. et Ciais, P., « Source attribution of the changes in atmospheric methane for 2006–2008 », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 11, n° 8, p. 3689–3700, DOI : [10.5194/acp-11-3689-2011](https://doi.org/10.5194/acp-11-3689-2011), 2011.
- Brenninkmeijer, C. A. M., Crutzen, P., Boumard, F., Dauer, T., Dix, B., Ebinghaus, R., Filippi, D., Fischer, H., Franke, H., Frieß, U., Heintzenberg, J., Helleis, F., Hermann, M., Kock, H. H., Koepfel, C., Lelieveld, J., Leuenberger, M., Martinsson, B. G., Miemczyk, S., Moret, H. P., Nguyen, H. N., Nyfeler, P., Oram, D., O’Sullivan, D., Penkett, S., Platt, U., Pupek, M., Ramonet, M., Randa, B., Reichelt, M., Rhee, T. S., Rohwer, J., Rosenfeld, K., Scharffe, D., Schlager, H., Schumann, U., Slemr, F., Sprung, D., Stock, P., Thaler, R., Valentino, F., Velthoven, P. van, Waibel, A., Wandel, A., Waschitschek, K., Wiedensohler, A., Xueref-Remy, I., Zahn, A., Zech, U. et Ziereis, H., « Civil Aircraft for the regular investigation of the atmosphere based on an instrumented container : The new CARIBIC system », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 7, n° 18, p. 4953–4976, DOI : [10.5194/acp-7-4953-2007](https://doi.org/10.5194/acp-7-4953-2007), 2007.
- Brenninkmeijer, C. A. M., Crutzen, P. J., Fischer, H., Güsten, H., Hans, W., Heinrich, G., Heintzenberg, J., Hermann, M., Immelmann, T., Kersting, D., Maiss, M., Nolle, M., Pitscheider, A., Pohlkamp, H., Scharffe, D., Specht, K. et Wiedensohler, A., « CARIBIC—Civil Aircraft for Global Measurement of Trace Gases and Aerosols in the Tropopause Region », *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, t. 16, n° 10, p. 1373–1383, DOI : [10.1175/1520-0426\(1999\)016<1373:CCAFGM>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0426(1999)016<1373:CCAFGM>2.0.CO;2), 1999.
- Butz, A., Guerlet, S., Hasekamp, O., Schepers, D., Galli, A., Aben, I., Frankenberg, C., Hartmann, J.-M., Tran, H., Kuze, A., Keppel-Aleks, G., Toon, G., Wunch, D., Wennberg, P., Deutscher, N., Griffith, D., Macatangay, R., Messerschmidt, J., Notholt, J. et Warneke, T., « Toward accurate CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> observations from GOSAT », *Geophysical Research Letters*, t. 38, n° 14, L14812, n/a–n/a, DOI : [10.1029/2011GL047888](https://doi.org/10.1029/2011GL047888), 2011.

## C

- Caldairou, P. et Guyot, A., « Rapport de Modal, MEC473 », *Module d'initiation à la recherche de l'Ecole Polytechnique*, 2015.
- Cammas, J.-P., Athier, G., Boulanger, D., Chéroux, F., Cousin, J.-M., Girod, F., Karcher, F., Law, K., Nédélec, P., Peuch, V.-H. et al., « Les programmes aéroportés Mozaic et Iagos (1994-2008) », DOI : [10.4267/2042/19172](https://doi.org/10.4267/2042/19172), 2008.
- Camy-Peyret, C., « Balloon-borne infrared Fourier transform spectroscopy for measurements of atmospheric trace species », *Spectrochimica Acta Part A : Molecular and Biomolecular Spectroscopy*, t. 51, n° 7, p. 1143–1152, DOI : [http://dx.doi.org/10.1016/0584-8539\(94\)00145-2](http://dx.doi.org/10.1016/0584-8539(94)00145-2), 1995.
- Carminati, F., Ricaud, P., Pommereau, J.-P., Rivière, E., Khaykin, S., Attié, J.-L. et Warner, J., « Impact of tropical land convection on the water vapour budget in the tropical tropopause layer », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 14, n° 12, p. 6195–6211, DOI : [10.5194/acp-14-6195-2014](https://doi.org/10.5194/acp-14-6195-2014), 2014.
- Chappellaz, J., Barnola, J. M., Raynaud, D., Korotkevich, Y. S. et Lorius, C., « Ice-core record of atmospheric methane over the past 160,000 years », *Nature*, t. 345, n° 6271, p. 127–131, DOI : [10.1038/345127a0](https://doi.org/10.1038/345127a0), 1990.
- Chédin, A., Saunders, R., Hollingsworth, A., Scott, N., Matricardi, M., Etcheto, J., Clerbaux, C., Armande, R. et Crevoisier, C., « The feasibility of monitoring CO<sub>2</sub> from high-resolution infrared sounders », *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, t. 108, n° D2, 4064, n/a–n/a, DOI : [10.1029/2001JD001443](https://doi.org/10.1029/2001JD001443), 2003.
- Chevallier, F., Fisher, M., Peylin, P., Serrar, S., Bousquet, P., Bréon, F.-M., Chédin, A. et Ciais, P., « Inferring CO<sub>2</sub> sources and sinks from satellite observations : Method and application to TOVS data », *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, t. 110, n° D24, D24309, n/a–n/a, DOI : [10.1029/2005JD006390](https://doi.org/10.1029/2005JD006390), 2005.
- Chen, H., Winderlich, J., Gerbig, C., Hofer, A., Rella, C. W., Crosson, E. R., Van Pelt, A. D., Steinbach, J., Kolle, O., Beck, V., Daube, B. C., Gottlieb, E. W., Chow, V. Y., Santoni, G. W. et Wofsy, S. C., « High-accuracy continuous airborne measurements of greenhouse gases (CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub>) using the cavity ring-down spectroscopy (CRDS) technique », *Atmospheric Measurement Techniques*, t. 3, n° 2, p. 375–386, DOI : [10.5194/amt-3-375-2010](https://doi.org/10.5194/amt-3-375-2010), 2010.
- Chevallier, F., Ciais, P., Conway, T. J., Aalto, T., Anderson, B. E., Bousquet, P., Brunke, E. G., Ciattaglia, L., Esaki, Y., Fröhlich, M., Gomez, A., Gomez-Pelaez, A. J., Haszpra, L., Krummel, P. B., Langenfelds, R. L., Leuenberger, M., Machida, T., Maignan, F., Matsueda, H., Morguí, J. A., Mukai, H., Nakazawa, T., Peylin, P., Ramonet, M., Rivier, L., Sawa, Y., Schmidt, M., Steele, L. P., Vay, S. A., Vermeulen, A. T., Wofsy, S. et Worthy, D., « CO<sub>2</sub> surface fluxes at grid point scale estimated from a global 21 year reanalysis of atmospheric measurements », *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, t. 115, n° D21, D21307, n/a–n/a, DOI : [10.1029/2010JD013887](https://doi.org/10.1029/2010JD013887), 2010.
- Chevallier, F., Deutscher, N. M., Conway, T. J., Ciais, P., Ciattaglia, L., Dohe, S., Fröhlich, M., Gomez-Pelaez, A. J., Griffith, D., Hase, F., Haszpra, L., Krummel, P., Kyrö, E., Labuschagne, C., Langenfelds, R., Machida, T., Maignan, F., Matsueda, H., Morino, I., Notholt, J., Ramonet, M., Sawa, Y., Schmidt, M., Sherlock, V., Steele, P., Strong, K., Sussmann, R., Wennberg, P., Wofsy, S., Worthy, D., Wunch, D. et Zimnoch, M., « Global CO<sub>2</sub> fluxes inferred from surface air-sample measurements and from TCCON retrievals of the CO<sub>2</sub> total column », *Geophysical Research Letters*, t. 38, n° 24, L24810, n/a–n/a, DOI : [10.1029/2011GL049899](https://doi.org/10.1029/2011GL049899), 2011.
- Chevallier, F., Palmer, P. I., Feng, L., Boesch, H., O'Dell, C. W. et Bousquet, P., « Toward robust and consistent regional CO<sub>2</sub> flux estimates from in situ and spaceborne measurements of atmospheric CO<sub>2</sub> », *Geophysical Research Letters*, t. 41, n° 3, 2013GL058772, p. 1065–1070, DOI : [10.1002/2013GL058772](https://doi.org/10.1002/2013GL058772), 2014.

- Chédin, A., Scott, N. A., Wahiche, C. et Moulinier, P., « The Improved Initialization Inversion Method : A High Resolution Physical Method for Temperature Retrievals from Satellites of the TIROS-N Series », *Journal of Climate and Applied Meteorology*, t. 24, n° 2, p. 128–143, DOI : [10.1175/1520-0450\(1985\)024<0128:TIIIMA>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0450(1985)024<0128:TIIIMA>2.0.CO;2), 1985.
- Ciais, P., Sabine, C., Bala, G., Bopp, L., Brovkin, V., Canadell, J., Chhabra, A., DeFries, R., Galloway, J., Heimann, M., Jones, C., Le Quéré, C., Myneni, R., Piao, S. et Thornton, P., « Carbon and Other Biogeochemical Cycles », in : *Climate Change 2013 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, sous la dir. de T. Stocker, D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex et P. Midgley, Cambridge, United Kingdom et New York, NY, USA : Cambridge University Press, 2013, chap. 6, p. 465–570, DOI : [10.1017/CB09781107415324.015](https://doi.org/10.1017/CB09781107415324.015).
- Crevoisier, C., Chedin, A. et Scott, N. A., « AIRS channel selection for CO<sub>2</sub> and other trace-gas retrievals », *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, t. 129, n° 593, p. 2719–2740, DOI : [10.1256/qj.02.180](https://doi.org/10.1256/qj.02.180), 2003.
- Crevoisier, C., Gloor, M., Gloaguen, E., Horowitz, L. W., Sarmiento, J. L., Sweeney, C. et Tans, P. P., « A direct carbon budgeting approach to infer carbon sources and sinks. Design and synthetic application to complement the NACP observation network », *Tellus B*, t. 58, n° 5, p. 366–375, DOI : [10.1111/j.1600-0889.2006.00214.x](https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2006.00214.x), 2006.
- Crevoisier, C., Chédin, A., Matsueda, H., Machida, T., Armante, R. et Scott, N. A., « First year of upper tropospheric integrated content of CO<sub>2</sub> from IASI hyperspectral infrared observations », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 9, n° 14, p. 4797–4810, DOI : [10.5194/acp-9-4797-2009](https://doi.org/10.5194/acp-9-4797-2009), 2009 a.
- Crevoisier, C., Nobileau, D., Fiore, A. M., Armante, R., Chédin, A. et Scott, N. A., « Tropospheric methane in the tropics first year from IASI hyperspectral infrared observations », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 9, n° 17, p. 6337–6350, DOI : [10.5194/acp-9-6337-2009](https://doi.org/10.5194/acp-9-6337-2009), 2009 b.
- Crevoisier, C., Sweeney, C., Gloor, M., Sarmiento, J. L. et Tans, P. P., « Regional US carbon sinks from three-dimensional atmospheric CO<sub>2</sub> sampling », *Proceedings of the National Academy of Sciences*, t. 107, n° 43, p. 18348–18353, DOI : [10.1073/pnas.0900062107](https://doi.org/10.1073/pnas.0900062107), 2010.
- Crevoisier, C., Nobileau, D., Armante, R., Crépeau, L., Machida, T., Sawa, Y., Matsueda, H., Schuck, T., Thonat, T., Pernin, J., Scott, N. A. et Chédin, A., « The 2007-2011 evolution of tropical methane in the mid-troposphere as seen from space by MetOp-A/IASI », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 13, n° 8, p. 4279–4289, DOI : [10.5194/acp-13-4279-2013](https://doi.org/10.5194/acp-13-4279-2013), 2013.
- Crevoisier, C., Clerbaux, C., Guidard, V., Phulpin, T., Armante, R., Barret, B., Camy-Peyret, C., Chaboureaud, J.-P., Coheur, P.-F., Crépeau, L., Dufour, G., Labonnote, L., Lavanant, L., Hadji-Lazaro, J., Herbin, H., Jacquinet-Husson, N., Payan, S., Péquignot, E., Pierangelo, C., Sellitto, P. et Stubenrauch, C., « Towards IASI-New Generation (IASI-NG) : impact of improved spectral resolution and radiometric noise on the retrieval of thermodynamic, chemistry and climate variables », *Atmospheric Measurement Techniques*, t. 7, n° 12, p. 4367–4385, DOI : [10.5194/amt-7-4367-2014](https://doi.org/10.5194/amt-7-4367-2014), 2014.
- Crevoisier, C., Meilhac, N., Membrive, O., Crépeau, L., Scott, N. et Chédin, A., « Establishing long time series of global mid-tropospheric columns of CH<sub>4</sub> with IASI and AMSU onboard successive Metop platforms », *Remote Sensing of Environment*, t. Submitted 30/09/2016, 2016.
- Crevoisier, C., « Etude de la distribution du CO<sub>2</sub> atmosphérique à partir des observations infrarouges à haute résolution spectrale de l'instrument AQUA/AIRS », Thèse de doctorat, Université Denis Diderot - Paris VII, 2004.
- Crisp, D., Atlas, R., Breon, F.-M., Brown, L., Burrows, J., Ciais, P., Connor, B., Doney, S., Fung, I., Jacob, D., Miller, C., O'Brien, D., Pawson, S., Randerson, J., Rayner, P., Salawitch, R., Sander, S., Sen, B., Stephens, G., Tans, P., Toon, G., Wennberg, P., Wofsy, S., Yung, Y., Kuang, Z., Chudasama, B., Sprague, G., Weiss, B., Pollock, R., Kenyon, D. et Schroll, S., « The Orbiting Carbon Observatory

(OCO) mission », *Advances in Space Research*, t. 34, n° 4, Trace Constituents in the Troposphere and Lower Stratosphere, p. 700–709, DOI : [10.1016/j.asr.2003.08.062](https://doi.org/10.1016/j.asr.2003.08.062), 2004.

Crosson, E., « A cavity ring-down analyzer for measuring atmospheric levels of methane, carbon dioxide, and water vapor », en, *Applied Physics B*, t. 92, n° 3, p. 403–408, DOI : [10.1007/s00340-008-3135-y](https://doi.org/10.1007/s00340-008-3135-y), 2008.

## D

Deng, F., Jones, D. B. A., O'Dell, C. W., Nassar, R. et Parazoo, N. C., « Combining GOSAT XCO<sub>2</sub> observations over land and ocean to improve regional CO<sub>2</sub> flux estimates », *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, t. 121, n° 4, 2015JD024157, p. 1896–1913, DOI : [10.1002/2015JD024157](https://doi.org/10.1002/2015JD024157), 2016.

Dlugokencky, E., Houweling, S., Bruhwiler, L., Masarie, K. A., Lang, P. M., Miller, J. B. et Tans, P. P., « Atmospheric methane levels off : Temporary pause or a new steady-state ? », *Geophysical Research Letters*, t. 30, n° 19, 1992, n/a–n/a, DOI : [10.1029/2003GL018126](https://doi.org/10.1029/2003GL018126), 2003.

Dlugokencky, E., Miller, J. et Staehelin, J., « The Global Atmosphere Watch : A history of contributing to climate monitoring », *World Meteorological Organization (WMO) Bulletin*, t. 59, n° 1, p. 35, 2010.

Dlugokencky, E., Masarie, K. A., Lang, P. M. et Tans, P. P., « Continuing decline in the growth rate of the atmospheric methane burden », *Nature*, t. 393, n° 6684, p. 447–450, DOI : [10.1038/30934](https://doi.org/10.1038/30934), 1998.

Durry, G., Amarouche, N., Zaninari, V., Parvitte, B., Lebarbu, T. et Ovarlez, J., « In situ sensing of the middle atmosphere with balloonborne near-infrared laser diodes », *Spectrochimica Acta Part A : Molecular and Biomolecular Spectroscopy*, t. 60, n° 14, p. 3371–3379, DOI : [10.1016/j.saa.2003.11.050](https://doi.org/10.1016/j.saa.2003.11.050), 2004.

Durry, G. et Megie, G., « Atmospheric CH<sub>4</sub> and H<sub>2</sub>O monitoring with near-infrared InGaAs laser diodes by the SDLA, a balloonborne spectrometer for tropospheric and stratospheric in situ measurements », *Applied Optics*, t. 38, n° 36, p. 7342–7354, DOI : [10.1364/AO.38.007342](https://doi.org/10.1364/AO.38.007342), 1999.

Durry, G., « Balloon-borne near-infrared diode laser spectroscopy for in situ measurements of atmospheric CH<sub>4</sub> and H<sub>2</sub>O », *Spectrochimica Acta Part A : Molecular and Biomolecular Spectroscopy*, t. 57, n° 9, p. 1855–1863, DOI : [10.1016/S1386-1425\(01\)00415-2](https://doi.org/10.1016/S1386-1425(01)00415-2), 2001.

## E

Eby, M., Zickfeld, K., Montenegro, A., Archer, D., Meissner, K. J. et Weaver, A. J., « Lifetime of Anthropogenic Climate Change : Millennial Time Scales of Potential CO<sub>2</sub> and Surface Temperature Perturbations », *Journal of Climate*, t. 22, n° 10, p. 2501–2511, DOI : [10.1175/2008JCLI2554.1](https://doi.org/10.1175/2008JCLI2554.1), 2009.

Engel, A., Strunk, M., Müller, M., Haase, H.-P., Poss, C., Levin, I. et Schmidt, U., « Temporal development of total chlorine in the high-latitude stratosphere based on reference distributions of mean age derived from CO<sub>2</sub> and SF<sub>6</sub> », *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, t. 107, n° D12, ACH 1-1–ACH 1-11, DOI : [10.1029/2001JD000584](https://doi.org/10.1029/2001JD000584), 2002.

Engel, A., Möbius, T., Bönisch, H., Schmidt, U., Heinz, R., Levin, I., Atlas, E., Aoki, S., Nakazawa, T., Sugawara, S., Moore, F., Hurst, D., Elkins, J., Schauffler, S., Andrews, A. et Boering, K., « Age of stratospheric air unchanged within uncertainties over the past 30 years », *Nature Geoscience*, t. 2, n° 1, p. 28–31, DOI : [10.1038/ngeo388](https://doi.org/10.1038/ngeo388), 2009.

## F

- Filges, A., Gerbig, C., Chen, H., Franke, H., Klaus, C. et Jordan, A., « The IAGOS-core greenhouse gas package : a measurement system for continuous airborne observations of CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, H<sub>2</sub>O and CO », *Tellus B*, t. 67, DOI : [10.3402/tellusb.v67.27989](https://doi.org/10.3402/tellusb.v67.27989), 2015.
- Fischer, H., Birk, M., Blom, C., Carli, B., Carlotti, M., Clarmann, T. von, Delbouille, L., Dudhia, A., Ehhalt, D., Endemann, M., Flaud, J. M., Gessner, R., Kleinert, A., Koopman, R., Langen, J., López-Puertas, M., Mosner, P., Nett, H., Oelhaf, H., Perron, G., Remedios, J., Ridolfi, M., Stiller, G. et Zander, R., « MIPAS : an instrument for atmospheric and climate research », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 8, n° 8, p. 2151–2188, DOI : [10.5194/acp-8-2151-2008](https://doi.org/10.5194/acp-8-2151-2008), 2008.
- Fischer, H. et Oelhaf, H., « Remote sensing of vertical profiles of atmospheric trace constituents with MIPAS limb-emission spectrometers », *Applied Optics*, t. 35, n° 16, p. 2787–2796, DOI : [10.1364/AO.35.002787](https://doi.org/10.1364/AO.35.002787), 1996.
- Foucher, P. Y., Chédin, A., Dufour, G., Capelle, V., Boone, C. D. et Bernath, P., « Technical Note : Feasibility of CO<sub>2</sub> profile retrieval from limb viewing solar occultation made by the ACE-FTS instrument », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 9, n° 8, p. 2873–2890, 2009.
- Frankenberg, C., Bergamaschi, P., Butz, A., Houweling, S., Meirink, J. F., Notholt, J., Petersen, A. K., Schrijver, H., Warneke, T. et Aben, I., « Tropical methane emissions : A revised view from SCIAMACHY onboard ENVISAT », *Geophysical Research Letters*, t. 35, n° 15, L15811, n/a–n/a, DOI : [10.1029/2008GL034300](https://doi.org/10.1029/2008GL034300), 2008.
- Frankenberg, C., Aben, I., Bergamaschi, P., Dlugokencky, E. J., Hees, R. van, Houweling, S., Meer, P. van der, Snel, R. et Tol, P., « Global column-averaged methane mixing ratios from 2003 to 2009 as derived from SCIAMACHY : Trends and variability », *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, t. 116, n° D4, D04302, n/a–n/a, DOI : [10.1029/2010JD014849](https://doi.org/10.1029/2010JD014849), 2011.

## G

- Geibel, M. C., Gerbig, C. et Feist, D. G., « A new fully automated FTIR system for total column measurements of greenhouse gases », *Atmospheric Measurement Techniques*, t. 3, n° 5, p. 1363–1375, DOI : [10.5194/amt-3-1363-2010](https://doi.org/10.5194/amt-3-1363-2010), 2010.
- Geibel, M. C., Messerschmidt, J., Gerbig, C., Blumenstock, T., Chen, H., Hase, F., Kolle, O., Lavrič, J. V., Notholt, J., Palm, M., Rettinger, M., Schmidt, M., Sussmann, R., Warneke, T. et Feist, D. G., « Calibration of column-averaged CH<sub>4</sub> over European TCCON FTS sites with airborne in-situ measurements », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 12, n° 18, p. 8763–8775, DOI : [10.5194/acp-12-8763-2012](https://doi.org/10.5194/acp-12-8763-2012), 2012.
- Ghysels, M., Gomez, L., Cousin, J., Amarouche, N., Jost, H. et Durry, G., « Spectroscopy of CH<sub>4</sub> with a difference-frequency generation laser at 3.3 micron for atmospheric applications », *Applied Physics B*, t. 104, n° 4, p. 989–1000, DOI : [10.1007/s00340-011-4665-2](https://doi.org/10.1007/s00340-011-4665-2), 2011.
- Ghysels, M., Riviere, E. D., Khaykin, S., Stoeffler, C., Amarouche, N., Pommereau, J.-P., Held, G. et Durry, G., « Intercomparison of in situ water vapor balloon-borne measurements from Pico-SDLA H<sub>2</sub>O and FLASH-B in the tropical UTLS », *Atmospheric Measurement Techniques*, t. 9, n° 3, p. 1207–1219, DOI : [10.5194/amt-9-1207-2016](https://doi.org/10.5194/amt-9-1207-2016), 2016.

## H

- Hammerling, D. M., Michalak, A. M. et Kawa, S. R., « Mapping of CO<sub>2</sub> at high spatiotemporal resolution using satellite observations : Global distributions from OCO-2 », *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, t. 117, n° D6, D06306, n/a–n/a, DOI : [10.1029/2011JD017015](https://doi.org/10.1029/2011JD017015), 2012.



- Hartmann, D., Klein Tank, A., Rusticucci, M., Alexander, L., Brönnimann, S., Charabi, Y., Dentener, F., Dlugokencky, E., Easterling, D., Kaplan, A., Soden, B., Thorne, P., Wild, M. et Zhai, P., « Observations : Atmosphere and Surface », in : *Climate Change 2013 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, sous la dir. de T. Stocker, D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex et P. Midgley, Cambridge, United Kingdom et New York, NY, USA : Cambridge University Press, 2013, chap. 2, p. 159–254, DOI : [10.1017/CBO9781107415324.008](https://doi.org/10.1017/CBO9781107415324.008).
- Hilton, F., Armante, R., August, T., Barnet, C., Bouchard, A., Camy-Peyret, C., Capelle, V., Clarisse, L., Clerbaux, C., Coheur, P.-F. et al., « Hyperspectral earth observation from IASI », *bulletin of the american meteorological Society*, t. 93, n° 3, p. 347, DOI : [10.1175/BAMS-D-11-00027.1](https://doi.org/10.1175/BAMS-D-11-00027.1), 2012.
- Houweling, S., Krol, M., Bergamaschi, P., Frankenberg, C., Dlugokencky, E. J., Morino, I., Notholt, J., Sherlock, V., Wunch, D., Beck, V., Gerbig, C., Chen, H., Kort, E. A., Röckmann, T. et Aben, I., « A multi-year methane inversion using SCIAMACHY, accounting for systematic errors using TCCON measurements », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 14, n° 8, p. 3991–4012, DOI : [10.5194/acp-14-3991-2014](https://doi.org/10.5194/acp-14-3991-2014), 2014.
- Houweling, S., Bergamaschi, P., Chevallier, F., Heimann, M., Kaminski, T., Krol, M., Michalak, A. M. et Patra, P., « Global inverse modeling of CH<sub>4</sub> sources and sinks : An overview of methods », *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, t. 2016, p. 1–30, DOI : [10.5194/acp-2016-572](https://doi.org/10.5194/acp-2016-572), 2016.
- Houweling, S., Kaminski, T., Dentener, F., Lelieveld, J. et Heimann, M., « Inverse modeling of methane sources and sinks using the adjoint of a global transport model », *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, t. 104, n° D21, p. 26137–26160, DOI : [10.1029/1999JD900428](https://doi.org/10.1029/1999JD900428), 1999.

## I

- IPCC, *Climate Change 2007 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, Cambridge, United Kingdom et New York, NY, USA : Cambridge University Press, 2007, p. 996.
- IPCC, *Climate Change 2013 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, Cambridge, United Kingdom et New York, NY, USA : Cambridge University Press, 2013, p. 1535, DOI : [10.1017/CBO9781107415324](https://doi.org/10.1017/CBO9781107415324).

## J

- Joly, L., Parvitte, B., Zeninari, V. et Durré, G., « Development of a compact CO<sub>2</sub> sensor open to the atmosphere and based on near infrared laser technology at 2.68  $\mu\text{m}$  », *Applied Physics B*, t. 86, n° 4, p. 743–748, DOI : [10.1007/s00340-006-2568-4](https://doi.org/10.1007/s00340-006-2568-4), 2007.
- Jouzel, J., Barkov, N. I., Barnola, J. M., Bender, M., Chappellaz, J., Genthon, C., Kotlyakov, V. M., Lipenkov, V., Lorius, C., Petit, J. R., Raynaud, D., Raisbeck, G., Ritz, C., Sowers, T., Stievenard, M., Yiou, F. et Yiou, P., « Extending the Vostok ice-core record of palaeoclimate to the penultimate glacial period », *Nature*, t. 364, n° 6436, p. 407–412, DOI : [10.1038/364407a0](https://doi.org/10.1038/364407a0), 1993.

## K

- Karion, A., Sweeney, C., Tans, P. et Newberger, T., « AirCore : An Innovative Atmospheric Sampling System », en, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, t. 27, n° 11, p. 1839–1853, DOI : [10.1175/2010JTECHA1448.1](https://doi.org/10.1175/2010JTECHA1448.1), 2010.

Karion, A., Sweeney, C., Pétron, G., Frost, G., Michael Hardesty, R., Kofler, J., Miller, B. R., Newberger, T., Wolter, S., Banta, R., Brewer, A., Dlugokencky, E., Lang, P., Montzka, S. A., Schnell, R., Tans, P., Trainer, M., Zamora, R. et Conley, S., « Methane emissions estimate from airborne measurements over a western United States natural gas field », *Geophysical Research Letters*, t. 40, n° 16, p. 4393–4397, DOI : [10.1002/grl.50811](https://doi.org/10.1002/grl.50811), 2013.

Keeling, C., « The Concentration and Isotopic Abundances of Carbon Dioxide in the Atmosphere », *Tellus*, t. 12, n° 2, p. 200–203, DOI : [10.1111/j.2153-3490.1960.tb01300.x](https://doi.org/10.1111/j.2153-3490.1960.tb01300.x), 1960.

Kirschke, S., Bousquet, P., Ciais, P., Saunois, M., Canadell, J. G., Dlugokencky, E. J., Bergamaschi, P., Bergmann, D., Blake, D. R., Bruhwiler, L., Cameron-Smith, P., Castaldi, S., Chevallier, F., Feng, L., Fraser, A., Heimann, M., Hodson, E. L., Houweling, S., Josse, B., Fraser, P. J., Krummel, P. B., Lamarque, J.-F., Langenfelds, R. L., Le Quéré, C., Naik, V., O'Doherty, S., Palmer, P. I., Pison, I., Plummer, D., Poulter, B., Prinn, R. G., Rigby, M., Ringeval, B., Santini, M., Schmidt, M., Shindell, D. T., Simpson, I. J., Spahni, R., Steele, L. P., Strode, S. A., Sudo, K., Szopa, S., Werf, G. R. van der, Voulgarakis, A., Wee, M. van, Weiss, R. F., Williams, J. E. et Zeng, G., « Three decades of global methane sources and sinks », *Nature Geoscience*, t. 6, n° 10, p. 813–823, DOI : [doi:10.1038/ngeo1955](https://doi.org/10.1038/ngeo1955), 2013.

## L

Lawrence, M. G., Jöckel, P. et Kuhlmann, R. von, « What does the global mean OH concentration tell us? », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 1, n° 1, p. 37–49, DOI : [10.5194/acp-1-37-2001](https://doi.org/10.5194/acp-1-37-2001), 2001.

Le Quéré, C., Moriarty, R., Andrew, R. M., Peters, G. P., Ciais, P., Friedlingstein, P., Jones, S. D., Sitch, S., Tans, P., Arneeth, A., Boden, T. A., Bopp, L., Bozec, Y., Canadell, J. G., Chevallier, F., Cosca, C. E., Harris, I., Hoppema, M., Houghton, R. A., House, J. I., Jain, A., Johannessen, T., Kato, E., Keeling, R. F., Kitidis, V., Klein Goldewijk, K., Koven, C., Landa, C. S., Landschützer, P., Lenton, A., Lima, I. D., Marland, G., Mathis, J. T., Metzl, N., Nojiri, Y., Olsen, A., Ono, T., Peters, W., Pfeil, B., Poulter, B., Raupach, M. R., Regnier, P., Rödenbeck, C., Saito, S., Salisbury, J. E., Schuster, U., Schwinger, J., Séférian, R., Segsneider, J., Steinhoff, T., Stocker, B. D., Sutton, A. J., Takahashi, T., Tilbrook, B., Van der Werf, G. R., Viovy, N., Wang, Y. P., Wanninkhof, R., Wiltshire, A. et Zeng, N., « Global carbon budget 2014 », *Earth System Science Data Discussions*, t. 7, n° 2, p. 521–610, DOI : [10.5194/essd-7-47-2015](https://doi.org/10.5194/essd-7-47-2015), 2014.

Le Quéré, C., Moriarty, R., Andrew, R. M., Canadell, J. G., Sitch, S., Korsbakken, J. I., Friedlingstein, P., Peters, G. P., Andres, R. J., Boden, T. A., Houghton, R. A., House, J. I., Keeling, R. F., Tans, P., Arneeth, A., Bakker, D. C. E., Barbero, L., Bopp, L., Chang, J., Chevallier, F., Chini, L. P., Ciais, P., Fader, M., Feely, R. A., Gkritzalis, T., Harris, I., Hauck, J., Ilyina, T., Jain, A. K., Kato, E., Kitidis, V., Klein Goldewijk, K., Koven, C., Landschützer, P., Lauvset, S. K., Lefèvre, N., Lenton, A., Lima, I. D., Metzl, N., Millero, F., Munro, D. R., Murata, A., Nabel, J. E. M. S., Nakaoka, S., Nojiri, Y., O'Brien, K., Olsen, A., Ono, T., Pérez, F. F., Pfeil, B., Pierrot, D., Poulter, B., Rehder, G., Rödenbeck, C., Saito, S., Schuster, U., Schwinger, J., Séférian, R., Steinhoff, T., Stocker, B. D., Sutton, A. J., Takahashi, T., Tilbrook, B., Laan-Luijkx, I. T. van der, Werf, G. R. van der, Heuven, S. van, Vandemark, D., Viovy, N., Wiltshire, A., Zaehle, S. et Zeng, N., « Global Carbon Budget 2015 », *Earth System Science Data*, t. 7, n° 2, p. 349–396, DOI : [10.5194/essd-7-349-2015](https://doi.org/10.5194/essd-7-349-2015), 2015.

Levy, H., « Normal Atmosphere : Large Radical and Formaldehyde Concentrations Predicted », *Science*, t. 173, n° 3992, p. 141–143, DOI : [10.1126/science.173.3992.141](https://doi.org/10.1126/science.173.3992.141), 1971.

Locatelli, R., Bousquet, P., Chevallier, F., Fortems-Cheney, A., Szopa, S., Saunois, M., Agustí-Panareda, A., Bergmann, D., Bian, H., Cameron-Smith, P., Chipperfield, M. P., Gloor, E., Houweling, S., Kawa, S. R., Krol, M., Patra, P. K., Prinn, R. G., Rigby, M., Saito, R. et Wilson, C., « Impact of transport model errors on the global and regional methane emissions estimated by inverse modelling »,

- Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 13, n° 19, p. 9917–9937, DOI : [10.5194/acp-13-9917-2013](https://doi.org/10.5194/acp-13-9917-2013), 2013.
- Locatelli, R., Bousquet, P. et Saunois, M., « Estimation of methane sources and sinks by inverse modelling using GOSAT observations », *EGU General Assembly Conference Abstracts*, t. 17, p. 14106, 2015.
- Locatelli, R., « Estimation des sources et puits de méthane : bilan planétaire et impacts de la modélisation du transport atmosphérique. », Thèse de doctorat, Université de Versailles-Saint Quentin en Yvelines, 2014.
- Lorius, C., Jouzel, J., Ritz, C., Merlivat, L., Barkov, N. I., Korotkevich, Y. S. et Kotlyakov, V. M., « A 150,000-year climatic record from Antarctic ice », *Nature*, t. 316, n° 6029, p. 591–596, DOI : [10.1038/316591a0](https://doi.org/10.1038/316591a0), 1985.
- Loulergue, L., Schilt, A., Spahni, R., Masson-Delmotte, V., Blunier, T., Lemieux, B., Barnola, J.-M., Raynaud, D., Stocker, T. F. et Chappellaz, J., « Orbital and millennial scale features of atmospheric CH<sub>4</sub> over the past 800.000 years », *Nature*, t. 453, n° 7193, p. 383–386, DOI : [10.1038/nature06950](https://doi.org/10.1038/nature06950), 2008.

## M

- Machida, T., Matsueda, H., Sawa, Y., Nakagawa, Y., Hirokani, K., Kondo, N., Goto, K., Nakazawa, T., Ishikawa, K. et Ogawa, T., « Worldwide Measurements of Atmospheric CO<sub>2</sub> and Other Trace Gas Species Using Commercial Airlines », *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, t. 25, n° 10, p. 1744–1754, DOI : [10.1175/2008JTECHA1082.1](https://doi.org/10.1175/2008JTECHA1082.1), 2008.
- Massart, S., Agusti-Panareda, A., Aben, I., Butz, A., Chevallier, F., Crevoisier, C., Engelen, R., Frankenberg, C. et Hasekamp, O., « Assimilation of atmospheric methane products into the MACC-II system : from SCIAMACHY to TANSO and IASI », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 14, n° 12, p. 6139–6158, DOI : [10.5194/acp-14-6139-2014](https://doi.org/10.5194/acp-14-6139-2014), 2014.
- Massman, W., « A review of the molecular diffusivities of H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, CO, O<sub>3</sub>, SO<sub>2</sub>, NH<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O, NO, and NO<sub>2</sub> in air, O<sub>2</sub> and N<sub>2</sub> near STP », *Atmospheric Environment*, t. 32, n° 6, p. 1111–1127, DOI : [10.1016/S1352-2310\(97\)00391-9](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(97)00391-9), 1998.
- Membrive, O., Crevoisier, C., Hertzog, A., Danis, F., Sourgen, D., Barbé, B., Amarouche, N., Samaké, J.-C., Frérot, F., Durré, G. et al., « Des ballons pour le climat », *Météo et Climat, Rubrique : Echos*, DOI : [10.4267/2042/57848](https://doi.org/10.4267/2042/57848), 2015.
- Membrive, O., Crevoisier, C., Sweeney, C., Danis, F., Hertzog, A., Engel, A., Bönisch, H. et Picon, L., « AirCore-HR : A high resolution column sampling to enhance the vertical description of CH<sub>4</sub> and CO<sub>2</sub> », *Atmospheric Measurement Techniques Discussions*, t. 2016, p. 1–31, DOI : [10.5194/amt-2016-236](https://doi.org/10.5194/amt-2016-236), 2016.
- Messerschmidt, J., Geibel, M. C., Blumenstock, T., Chen, H., Deutscher, N. M., Engel, A., Feist, D. G., Gerbig, C., Gisi, M., Hase, F., Katrynski, K., Kollé, O., Lavrič, J. V., Notholt, J., Palm, M., Ramonet, M., Rettinger, M., Schmidt, M., Sussmann, R., Toon, G. C., Truong, F., Warneke, T., Wennberg, P. O., Wunch, D. et Xueref-Remy, I., « Calibration of TCCON column-averaged CO<sub>2</sub> : the first aircraft campaign over European TCCON sites », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 11, n° 21, p. 10765–10777, DOI : [10.5194/acp-11-10765-2011](https://doi.org/10.5194/acp-11-10765-2011), 2011.
- Monteil, G., Houweling, S., Dlugokenky, E. J., Maenhout, G., Vaughn, B. H., White, J. W. C. et Rockmann, T., « Interpreting methane variations in the past two decades using measurements of CH<sub>4</sub> mixing ratio and isotopic composition », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 11, n° 17, p. 9141–9153, DOI : [10.5194/acp-11-9141-2011](https://doi.org/10.5194/acp-11-9141-2011), 2011.
- Monteil, G., Houweling, S., Butz, A., Guerlet, S., Schepers, D., Hasekamp, O., Frankenberg, C., Scheepmaker, R., Aben, I. et Röckmann, T., « Comparison of CH<sub>4</sub> inversions based on 15 months of GOSAT

- and SCIAMACHY observations », *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, t. 118, n° 20, p. 11, 807–11, 823, DOI : [10.1002/2013JD019760](https://doi.org/10.1002/2013JD019760), 2013.
- Moreau, G., Robert, C., Catoire, V., Chartier, M., Camy-Peyret, C., Huret, N., Pirre, M., Pomathiod, L. et Chalumeau, G., « SPIRALE : a multispecies in situ balloonborne instrument with six tunable diode laser spectrometers », *Applied Optics*, t. 44, n° 28, p. 5972–5989, DOI : [10.1364/AO.44.005972](https://doi.org/10.1364/AO.44.005972), 2005.
- Mrozek, D. J., Veen, C. van der, Hofmann, M. E. G., Chen, H., Kivi, R., Heikkinen, P. et Röckmann, T., « Stratospheric Air Sub-sampler (SAS) and its application to analysis of  $\Delta^{17}\text{O}(\text{CO}_2)$  from small air samples collected with an AirCore », *Atmospheric Measurement Techniques Discussions*, t. 2016, p. 1–24, DOI : [10.5194/amt-2016-124](https://doi.org/10.5194/amt-2016-124), 2016.
- Myhre, G., Shindell, D., Bréon, F.-M., Collins, W., Fuglestedt, J., Huang, J., Koch, D., Lamarque, J.-F., Lee, D., Mendoza, B., Nakajima, T., Robock, A., Stephens, G., Takemura, T. et Zhang, H., « Anthropogenic and Natural Radiative Forcing », in : *Climate Change 2013 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, sous la dir. de T. Stocker, D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex et P. Midgley, Cambridge, United Kingdom et New York, NY, USA : Cambridge University Press, 2013, chap. 8, p. 659–740, DOI : [10.1017/CB09781107415324.018](https://doi.org/10.1017/CB09781107415324.018).

## N

- Naik, V., Voulgarakis, A., Fiore, A. M., Horowitz, L. W., Lamarque, J.-F., Lin, M., Prather, M. J., Young, P. J., Bergmann, D., Cameron-Smith, P. J., Cionni, I., Collins, W. J., Dalsøren, S. B., Doherty, R., Eyring, V., Faluvegi, G., Folberth, G. A., Josse, B., Lee, Y. H., MacKenzie, I. A., Nagashima, T., Noije, T. P. C. van, Plummer, D. A., Righi, M., Rumbold, S. T., Skeie, R., Shindell, D. T., Stevenson, D. S., Strode, S., Sudo, K., Szopa, S. et Zeng, G., « Preindustrial to present-day changes in tropospheric hydroxyl radical and methane lifetime from the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP) », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 13, n° 10, p. 5277–5298, DOI : [10.5194/acp-13-5277-2013](https://doi.org/10.5194/acp-13-5277-2013), 2013.
- Nisbet, E. G., Dlugokencky, E. J. et Bousquet, P., « Methane on the Rise Again », *Science*, t. 343, n° 6170, p. 493–495, DOI : [10.1126/science.1247828](https://doi.org/10.1126/science.1247828), 2014.

## O

- Oelhaf, H., Clarmann, T., Fischer, H., Friedl-Vallon, F., Fritzsche, C., Linden, A., Piesch, C., Seefeldner, M. et Völker, W., « Stratospheric  $\text{ClONO}_2$  and  $\text{HNO}_3$  profiles inside the Arctic vortex from MIPAS-B limb emission spectra obtained during EASOE », *Geophysical Research Letters*, t. 21, n° 13, p. 1263–1266, DOI : [10.1029/93GL01303](https://doi.org/10.1029/93GL01303), 1994.

## P

- Pandey, S., Houweling, S., Krol, M., Aben, I. et Röckmann, T., « On the use of satellite-derived  $\text{CH}_4$  :  $\text{CO}_2$  columns in a joint inversion of  $\text{CH}_4$  and  $\text{CO}_2$  fluxes », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 15, n° 15, p. 8615–8629, DOI : [10.5194/acp-15-8615-2015](https://doi.org/10.5194/acp-15-8615-2015), 2015.
- Pandey, S., Houweling, S., Krol, M., Aben, I., Monteil, G., Banda, N., Dlugokencky, E., Detmers, R., Hasenkamp, O., Hu, X., Riley, W., Poulter, B., Zhang, Z., McDonald, P., White, J. et Röckmann, T., « Enhanced methane emissions from tropical wetlands during the 2011 La Nina », *Nature GeoScience "under review"*, 2016.

- Patra, P. K., Houweling, S., Krol, M., Bousquet, P., Belikov, D., Bergmann, D., Bian, H., Cameron-Smith, P., Chipperfield, M. P., Corbin, K., Fortems-Cheiney, A., Fraser, A., Gloor, E., Hess, P., Ito, A., Kawa, S. R., Law, R. M., Loh, Z., Maksyutov, S., Meng, L., Palmer, P. I., Prinn, R. G., Rigby, M., Saito, R. et Wilson, C., « TransCom model simulations of CH<sub>4</sub> and related species : linking transport, surface flux and chemical loss with CH<sub>4</sub> variability in the troposphere and lower stratosphere », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 11, n° 24, p. 12813–12837, DOI : [10.5194/acp-11-12813-2011](https://doi.org/10.5194/acp-11-12813-2011), 2011.
- Peixinho, J. et Mullin, T., « Decay of Turbulence in Pipe Flow », *Phys. Rev. Lett.* T. 96, p. 094501, DOI : [10.1103/PhysRevLett.96.094501](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.96.094501), 2006 9.
- Petzold, A., Thouret, V., Gerbig, C., Zahn, A., Brenninkmeijer, C., Gallagher, M., Hermann, M., Pontaud, M., Ziereis, H., Boulanger, D., Marshall, J., Nédélec, P., Smit, H., Friess, U., Flaud, J.-M., Wahner, A., Cammas, J.-P. et Volz-Thomas, A., « Global-scale atmosphere monitoring by in-service aircraft - current achievements and future prospects of the European Research Infrastructure IAGOS », *Tellus B*, t. 67, DOI : [10.3402/tellusb.v67.28452](https://doi.org/10.3402/tellusb.v67.28452), 2015.
- Petit, J. R., Jouzel, J., Raynaud, D., Barkov, N. I., Barnola, J. M., Basile, I., Bender, M., Chappellaz, J., Davis, M., Delaygue, G., Delmotte, M., Kotlyakov, V. M., Legrand, M., Lipenkov, V. Y., Lorius, C., Pépin, L., Ritz, C., Saltzman, E. et Stievenard, M., « Climate and atmospheric history of the past 420,000 years from the Vostok ice core, Antarctica », *Nature*, t. 399, n° 6735, p. 429–436, DOI : [10.1038/20859](https://doi.org/10.1038/20859), 1999.
- Pouchet, I., Zaninari, V., Parvitte, B. et Durry, G., « Diode laser spectroscopy of CO<sub>2</sub> in the 1.6 μm region for the in situ sensing of the middle atmosphere », *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, t. 83, n° 3-4, p. 619–628, DOI : [10.1016/S0022-4073\(03\)00108-0](https://doi.org/10.1016/S0022-4073(03)00108-0), 2004.
- Prather, M. J., Holmes, C. D. et Hsu, J., « Reactive greenhouse gas scenarios : Systematic exploration of uncertainties and the role of atmospheric chemistry », *Geophysical Research Letters*, t. 39, n° 9, L09803, n/a-n/a, DOI : [10.1029/2012GL051440](https://doi.org/10.1029/2012GL051440), 2012.
- Prinn, R. G., Huang, J., Weiss, R. F., Cunnold, D. M., Fraser, P. J., Simmonds, P. G., McCulloch, A., Harth, C., Reimann, S., Salameh, P., O'Doherty, S., Wang, R. H. J., Porter, L. W., Miller, B. R. et Krummel, P. B., « Evidence for variability of atmospheric hydroxyl radicals over the past quarter century », *Geophysical Research Letters*, t. 32, n° 7, L07809, n/a-n/a, DOI : [10.1029/2004GL022228](https://doi.org/10.1029/2004GL022228), 2005.

## R

- Reichler, T., Dameris, M. et Sausen, R., « Determining the tropopause height from gridded data », *Geophysical Research Letters*, t. 30, n° 20, 2042, n/a-n/a, DOI : [10.1029/2003GL018240](https://doi.org/10.1029/2003GL018240), 2003.
- Renard, J.-B., Dulac, F., Berthet, G., Lurton, T., Vignelles, D., Jégou, F., Tonnelier, T., Jeannot, M., Couté, B., Akiki, R., Verdier, N., Mallet, M., Gensdarmes, F., Charpentier, P., Mesmin, S., Duverger, V., Dupont, J.-C., Elias, T., Crenn, V., Sciare, J., Zieger, P., Salter, M., Roberts, T., Giacomoni, J., Gobbi, M., Hamonou, E., Olafsson, H., Dagsson-Waldhauserova, P., Camy-Peyret, C., Mazel, C., Décamps, T., Piringer, M., Surcin, J. et Daugeron, D., « LOAC : a small aerosol optical counter/sizer for ground-based and balloon measurements of the size distribution and nature of atmospheric particles – Part 1 : Principle of measurements and instrument evaluation », *Atmospheric Measurement Techniques*, t. 9, n° 4, p. 1721–1742, DOI : [10.5194/amt-9-1721-2016](https://doi.org/10.5194/amt-9-1721-2016), 2016.
- Reynolds, O., « An Experimental Investigation of the Circumstances Which Determine Whether the Motion of Water Shall Be Direct or Sinuous, and of the Law of Resistance in Parallel Channels », *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, t. 174, p. 935–982, DOI : [10.1098/rsp1.1883.0018](https://doi.org/10.1098/rsp1.1883.0018), 1883.

Rödenbeck, C., Houweling, S., Gloor, M. et Heimann, M., « CO<sub>2</sub> flux history 1982-2001 inferred from atmospheric data using a global inversion of atmospheric transport », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 3, n° 6, p. 1919–1964, DOI : [10.5194/acp-3-1919-2003](https://doi.org/10.5194/acp-3-1919-2003), 2003.

## S

Saito, R., Patra, P. K., Sweeney, C., Machida, T., Krol, M., Houweling, S., Bousquet, P., Agusti-Panareda, A., Belikov, D., Bergmann, D., Bian, H., Cameron-Smith, P., Chipperfield, M. P., Fortems-Cheiney, A., Fraser, A., Gatti, L. V., Gloor, E., Hess, P., Kawa, S. R., Law, R. M., Locatelli, R., Loh, Z., Maksyutov, S., Meng, L., Miller, J. B., Palmer, P. I., Prinn, R. G., Rigby, M. et Wilson, C., « TransCom model simulations of methane : Comparison of vertical profiles with aircraft measurements », *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, t. 118, n° 9, p. 3891–3904, DOI : [10.1002/jgrd.50380](https://doi.org/10.1002/jgrd.50380), 2013.

Saunoy, M., Bousquet, P., Poulter, B., Peregón, A., Ciais, P., Canadell, J. G., Dlugokencky, E. J., Etiope, G., Bastviken, D., Houweling, S., Janssens-Maenhout, G., Tubiello, F. N., Castaldi, S., Jackson, R. B., Alexe, M., Arora, V. K., Beerling, D. J., Bergamaschi, P., Blake, D. R., Brailsford, G., Brovkin, V., Bruhwiler, L., Crevoisier, C., Crill, P., Curry, C., Frankenberg, C., Gedney, N., Höglund-Isaksson, L., Ishizawa, M., Ito, A., Joos, F., Kim, H.-S., Kleinen, T., Krummel, P., Lamarque, J.-F., Langenfelds, R., Locatelli, R., Machida, T., Maksyutov, S., McDonald, K. C., Marshall, J., Melton, J. R., Morino, I., O'Doherty, S., Parmentier, F.-J. W., Patra, P. K., Peng, C., Peng, S., Peters, G. P., Pison, I., Prigent, C., Prinn, R., Ramonet, M., Riley, W. J., Saito, M., Schroeder, R., Simpson, I. J., Spahni, R., Steele, P., Takizawa, A., Thornton, B. F., Tian, H., Tohjima, Y., Viovy, N., Voulgarakis, A., Weele, M. van, Werf, G. van der, Weiss, R., Wiedinmyer, C., Wilton, D. J., Wiltshire, A., Worthy, D., Wunch, D. B., Xu, X., Yoshida, Y., Zhang, B., Zhang, Z. et Zhu, Q., « The Global Methane Budget : 2000–2012 », *Earth System Science Data Discussions*, t. 2016, p. 1–79, DOI : [10.5194/essd-2016-25](https://doi.org/10.5194/essd-2016-25), 2016.

Schuck, T. J., Brenninkmeijer, C. A. M., Slemr, F., Xueref-Remy, I. et Zahn, A., « Greenhouse gas analysis of air samples collected onboard the CARIBIC passenger aircraft », *Atmospheric Measurement Techniques*, t. 2, n° 2, p. 449–464, DOI : [10.5194/amt-2-449-2009](https://doi.org/10.5194/amt-2-449-2009), 2009.

Schuck, T. J., Brenninkmeijer, C. A. M., Baker, A. K., Slemr, F., Velthoven, P. F. J. von et Zahn, A., « Greenhouse gas relationships in the Indian summer monsoon plume measured by the CARIBIC passenger aircraft », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 10, n° 8, p. 3965–3984, DOI : [10.5194/acp-10-3965-2010](https://doi.org/10.5194/acp-10-3965-2010), 2010.

Schneising, O., Bergamaschi, P., Bovensmann, H., Buchwitz, M., Burrows, J. P., Deutscher, N. M., Griffith, D. W. T., Heymann, J., Macatangay, R., Messerschmidt, J., Notholt, J., Rettinger, M., Reuter, M., Sussmann, R., Velazco, V. A., Warneke, T., Wennberg, P. O. et Wunch, D., « Atmospheric greenhouse gases retrieved from SCIAMACHY : comparison to ground-based FTS measurements and model results », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 12, n° 3, p. 1527–1540, 2012.

Schuck, T. J., Ishijima, K., Patra, P. K., Baker, A. K., Machida, T., Matsueda, H., Sawa, Y., Umezawa, T., Brenninkmeijer, C. A. M. et Lelieveld, J., « Distribution of methane in the tropical upper troposphere measured by CARIBIC and CONTRAIL aircraft », *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, t. 117, n° D19, D19304, n/a–n/a, DOI : [10.1029/2012JD018199](https://doi.org/10.1029/2012JD018199), 2012.

Schmidt, U. et Khedim, A., « In situ measurements of carbon dioxide in the winter Arctic vortex and at midlatitudes : An indicator of the ‘age’ of stratospheric air », *Geophysical Research Letters*, t. 18, n° 4, p. 763–766, DOI : [10.1029/91GL00022](https://doi.org/10.1029/91GL00022), 1991.

Steele, L., Dlugokencky, E. J., Lang, P. M., Tans, P. P., Martin, R. C. et Masarie, K. A., « Slowing down of the global accumulation of atmospheric methane during the 1980s », *Nature*, t. 358, n° 6384, p. 313–316, DOI : [10.1038/358313a0](https://doi.org/10.1038/358313a0), 1992.

Sweeney, C., Karion, A., Wolter, S., Newberger, T., Guenther, D., Higgs, J. A., Andrews, A. E., Lang, P. M., Neff, D., Dlugokencky, E., Miller, J. B., Montzka, S. A., Miller, B. R., Masarie, K. A., Biraud,

S. C., Novelli, P. C., Crotwell, M., Crotwell, A. M., Thoning, K. et Tans, P. P., « Seasonal climatology of CO<sub>2</sub> across North America from aircraft measurements in the NOAA/ESRL Global Greenhouse Gas Reference Network », *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, t. 120, n° 10, 2014JD022591, p. 5155–5190, DOI : [10.1002/2014JD022591](https://doi.org/10.1002/2014JD022591), 2015.

## T

Tans, P. P., « System and method for providing vertical profile measurements of atmospheric gases », 2009.

Taylor, G., « Dispersion of Soluble Matter in Solvent Flowing Slowly through a Tube », *Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, t. 219, n° 1137, p. 186–203, DOI : [10.1098/rspa.1953.0139](https://doi.org/10.1098/rspa.1953.0139), 1953.

Thompson, D. R., Benner, D. C., Brown, L. R., Crisp, D., Devi, V. M., Jiang, Y., Natraj, V., Oyafuso, F., Sung, K., Wunch, D., Castaño, R. et Miller, C. E., « Atmospheric validation of high accuracy CO<sub>2</sub> absorption coefficients for the OCO-2 mission », *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, t. 113, n° 17, p. 2265–2276, DOI : <http://dx.doi.org/10.1016/j.jqsrt.2012.05.021>, 2012.

## V

Voulgarakis, A., Naik, V., Lamarque, J.-F., Shindell, D. T., Young, P. J., Prather, M. J., Wild, O., Field, R. D., Bergmann, D., Cameron-Smith, P., Cionni, I., Collins, W. J., Dalsøren, S. B., Doherty, R. M., Eyring, V., Faluvegi, G., Folberth, G. A., Horowitz, L. W., Josse, B., MacKenzie, I. A., Nagashima, T., Plummer, D. A., Righi, M., Rumbold, S. T., Stevenson, D. S., Strode, S. A., Sudo, K., Szopa, S. et Zeng, G., « Analysis of present day and future OH and methane lifetime in the ACCMIP simulations », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 13, n° 5, p. 2563–2587, DOI : [10.5194/acp-13-2563-2013](https://doi.org/10.5194/acp-13-2563-2013), 2013.

## W

Wang, Q., Jacob, D. J., Spackman, J. R., Perring, A. E., Schwarz, J. P., Moteki, N., Marais, E. A., Ge, C., Wang, J. et Barrett, S. R. H., « Global budget and radiative forcing of black carbon aerosol : Constraints from pole-to-pole (HIPPO) observations across the Pacific », *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, t. 119, n° 1, 2013JD020824, p. 195–206, DOI : [10.1002/2013JD020824](https://doi.org/10.1002/2013JD020824), 2014.

Wecht, K. J., Jacob, D. J., Wofsy, S. C., Kort, E. A., Worden, J. R., Kulawik, S. S., Henze, D. K., Kopacz, M. et Payne, V. H., « Validation of TES methane with HIPPO aircraft observations : implications for inverse modeling of methane sources », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 12, n° 4, p. 1823–1832, DOI : [10.5194/acp-12-1823-2012](https://doi.org/10.5194/acp-12-1823-2012), 2012.

Wecht, K. J., Jacob, D. J., Frankenberg, C., Jiang, Z. et Blake, D. R., « Mapping of North American methane emissions with high spatial resolution by inversion of SCIAMACHY satellite data », *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, t. 119, n° 12, 2014JD021551, p. 7741–7756, DOI : [10.1002/2014JD021551](https://doi.org/10.1002/2014JD021551), 2014.

Wofsy, S. C., « HIAPER Pole-to-Pole Observations (HIPPO) : fine-grained, global-scale measurements of climatically important atmospheric gases and aerosols », t. 369, n° 1943, p. 2073–2086, DOI : [10.1098/rsta.2010.0313](https://doi.org/10.1098/rsta.2010.0313), 2011.

Worden, J., Kulawik, S., Frankenberg, C., Payne, V., Bowman, K., Cady-Peirara, K., Wecht, K., Lee, J.-E. et Noone, D., « Profiles of CH<sub>4</sub>, HDO, H<sub>2</sub>O, and N<sub>2</sub>O with improved lower tropospheric vertical resolution from Aura TES radiances », *Atmospheric Measurement Techniques*, t. 5, n° 2, p. 397–411, DOI : [10.5194/amt-5-397-2012](https://doi.org/10.5194/amt-5-397-2012), 2012.

- Wunch, D., Toon, G. C., Wennberg, P. O., Wofsy, S. C., Stephens, B. B., Fischer, M. L., Uchino, O., Abshire, J. B., Bernath, P., Biraud, S. C., Blavier, J.-F. L., Boone, C., Bowman, K. P., Browell, E. V., Campos, T., Connor, B. J., Daube, B. C., Deutscher, N. M., Diao, M., Elkins, J. W., Gerbig, C., Gottlieb, E., Griffith, D. W. T., Hurst, D. F., Jiménez, R., Keppel-Aleks, G., Kort, E. A., Macatangay, R., Machida, T., Matsueda, H., Moore, F., Morino, I., Park, S., Robinson, J., Roehl, C. M., Sawa, Y., Sherlock, V., Sweeney, C., Tanaka, T. et Zondlo, M. A., « Calibration of the Total Carbon Column Observing Network using aircraft profile data », *Atmospheric Measurement Techniques*, t. 3, n° 5, p. 1351–1362, DOI : [10.5194/amt-3-1351-2010](https://doi.org/10.5194/amt-3-1351-2010), 2010.
- Wunch, D., Toon, G. C., Blavier, J.-F. L., Washenfelder, R. A., Notholt, J., Connor, B. J., Griffith, D. W. T., Sherlock, V. et Wennberg, P. O., « The Total Carbon Column Observing Network », t. 369, n° 1943, p. 2087–2112, DOI : [10.1098/rsta.2010.0240](https://doi.org/10.1098/rsta.2010.0240), 2011.

## X

- Xiong, X., Barnet, C., Maddy, E., Wei, J., Liu, X. et Pagano, T. S., « Seven Years' Observation of Mid-Upper Tropospheric Methane from Atmospheric Infrared Sounder », *Remote Sensing*, t. 2, n° 11, p. 2509, DOI : [10.3390/rs2112509](https://doi.org/10.3390/rs2112509), 2010.
- Xiong, X., Barnet, C., Maddy, E. S., Gambacorta, A., King, T. S. et Wofsy, S. C., « Mid-upper tropospheric methane retrieval from IASI and its validation », *Atmospheric Measurement Techniques*, t. 6, n° 9, p. 2255–2265, DOI : [10.5194/amt-6-2255-2013](https://doi.org/10.5194/amt-6-2255-2013), 2013.

## Y

- Yokota, T., Yoshida, Y., Eguchi, N., Ota, Y., Tanaka, T., Watanabe, H. et Maksyutov, S., « Global Concentrations of CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> Retrieved from GOSAT : First Preliminary Results », *Sola*, t. 5, p. 160–163, DOI : [10.2151/sola.2009-041](https://doi.org/10.2151/sola.2009-041), 2009.
- Yoshida, Y., Kikuchi, N., Morino, I., Uchino, O., Oshchepkov, S., Bril, A., Saeki, T., Schutgens, N., Toon, G. C., Wunch, D., Roehl, C. M., Wennberg, P. O., Griffith, D. W. T., Deutscher, N. M., Warneke, T., Notholt, J., Robinson, J., Sherlock, V., Connor, B., Rettinger, M., Sussmann, R., Ahonen, P., Heikkinen, P., Kyrö, E., Mendonca, J., Strong, K., Hase, F., Dohe, S. et Yokota, T., « Improvement of the retrieval algorithm for GOSAT SWIR XCO<sub>2</sub> and XCH<sub>4</sub> and their validation using TCCON data », *Atmospheric Measurement Techniques*, t. 6, n° 6, p. 1533–1547, DOI : [10.5194/amt-6-1533-2013](https://doi.org/10.5194/amt-6-1533-2013), 2013.

## Z

- Zhang, H. F., Chen, B. Z., Laan-Luijk, I. T. van der, Machida, T., Matsueda, H., Sawa, Y., Fukuyama, Y., Langenfelds, R., Schoot, M. van der, Xu, G., Yan, J. W., Cheng, M. L., Zhou, L. X., Tans, P. P. et Peters, W., « Estimating Asian terrestrial carbon fluxes from CONTRAIL aircraft and surface CO<sub>2</sub> observations for the period 2006-2010 », *Atmospheric Chemistry and Physics*, t. 14, n° 11, p. 5807–5824, DOI : [10.5194/acp-14-5807-2014](https://doi.org/10.5194/acp-14-5807-2014), 2014.
- Zöger, M., Engel, A., McKenna, D. S., Schiller, C., Schmidt, U. et Woyke, T., « Balloon-borne in situ measurements of stratospheric H<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub> and H<sub>2</sub> at midlatitudes », *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, t. 104, n° D1, p. 1817–1825, DOI : [10.1029/1998JD100024](https://doi.org/10.1029/1998JD100024), 1999.



# Liste des acronymes

<b>ABC(t)</b>	Atmosphère Biosphère Climat (télédétection)
<b>ACE-FTS</b>	Atmospheric Chemistry Experiment – Fourier Transform Spectrometer
<b>AIRS</b>	Atmospheric Sounding Unit
<b>AMSU</b>	Advanced Microwave Sounding Unit
<b>AMULSE</b>	Atmospheric Measurements by Ultra Light SpEctrometer
<b>BSO</b>	Ballon Stratosphérique Ouvert
<b>CAMS</b>	Copernicus AtMospheric Service
<b>CARIBIC</b>	Civil Aircraft for the regulat Investigation of the Atmospher Based on an Instru- ment Container
<b>C-IFS</b>	Composition-Integrated Forecast System
<b>Climate-KIC</b>	Climate Knowledge and Innovation Community
<b>CLIMAT</b>	Combinaison de Lasers et de Mesures in-situ de l’Atmosphère Terrestre
<b>CNES</b>	Centre National d’Etudes Spatiales
<b>CNRS</b>	Centre National de la Recherche Scientifique
<b>CONTRAIL</b>	Comprehensive Observation Network for Trace gases by AirLiner
<b>CSA</b>	Canadian Space Agency
<b>ECMWF</b>	European Centre for Medium-Range Weather Forecasts
<b>EdS</b>	Effet de Serre
<b>EIT</b>	European Institute of Innovation and Technology
<b>EPS(-SG)</b>	EUMETSAT Polar System (Second Generation)
<b>ESA</b>	European Space Agency
<b>ESRL</b>	Earth System Research Laboratory
<b>EUMETSAT</b>	European Organisation for the Exploitation of Meteorological Satellites
<b>FTIR</b>	Fourier Transform Infrared Spectroscopy
<b>FTS</b>	Fourier Transform Spectrometer
<b>GAW</b>	Global Atmospheric Watch
<b>GEISA</b>	Gestion et Etude des Informations Spectroscopiques Atmosphériques
<b>GES</b>	Gaz à Effet de Serre
<b>GIEC</b>	Groupe Intergouvernemental d’experts sur l’Evolution du Climat (IPCC en An- glais)
<b>GHG</b>	Greenhouse Gases
<b>GOSAT</b>	Greenhouse gases Observing SATellite
<b>GUF</b>	Goethe University Frankfurt
<b>GSMA</b>	Groupe de Spectroscopie Moléculaire et Atmosphérique

<b>HIPPO</b>	HIapper Pole-to-Pole Observations
<b>HR</b>	High Resolution
<b>IAGOS</b>	In-service Aircraft for Regular Investigation of the Atmosphere Based on Instrument Container
<b>IASI(-NG)</b>	Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (New Generation)
<b>ICOS</b>	Integrated Carbon Observation System
<b>INSU</b>	Institut National des Sciences de l'Univers
<b>IPCC</b>	International Panel on Climate Change (GIEC en Français)
<b>IPSL</b>	Institut Pierre Simon Laplace
<b>LIDAR</b>	LIght Detection And Ranging
<b>LMD</b>	Laboratoire de Météorologie Dynamique
<b>LMDz</b>	Modèle de circulation générale du LMD zoomé
<b>LSCE</b>	Laboratoire de Sciences du Climat et de l'Environnement
<b>MIPAS</b>	Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding
<b>MOZAIC</b>	Measurements of Ozone, water vapour, carbon monoxide and nitrogen oxides by in-service AIRbus airCreft
<b>NASA</b>	National Aeronautics and Space Agency
<b>NDACC</b>	Network for Detection of Atmospheric Composition Change
<b>NOAA</b>	National Oceanic and Atmospheric Administration
<b>OCO-2</b>	Orbiting Carbon Observatory 2
<b>OMM</b>	Organisation Météorologique Mondiale
<b>Pico-SDLA</b>	Pico-Spectromètres à Diodes Lasers Accordables
<b>SCHIAMACHY</b>	Scanning Imaging Absorption SpectroMeter for Atmospheric CHartographY (Envisat)
<b>SPIRALE</b>	Spectromètre Infra Rouge pour l'Etude de l'Atmosphère par Diode Laser Embarquées
<b>SRON</b>	Netherlands Space Agency
<b>SWIR</b>	Short Wave Infrared
<b>TCCON</b>	Total Carbon Column Observatory Network
<b>TES</b>	Tropospheric Emission Spectrometer
<b>TIR</b>	Thermal InfraRed
<b>TM5</b>	Transport Model 5
<b>UMPC</b>	Université Pierre et Marie Curie
<b>URCA</b>	Université de Reims Champagne Ardennes
<b>UTLS</b>	Upper Troposphere - Lower Stratosphere
<b>UVSQ</b>	Université de Versailles Saint-Quentin
<b>WMO</b>	World Meteorology Organisation

# Sites Internet

<b>AERIS</b>	AERIS Données et services pour l'atmosphère <a href="http://www.aeris-data.fr/">http://www.aeris-data.fr/</a>
<b>AirCore LMD</b>	Page sur les AirCores du LMD <a href="http://ara.abct.lmd.polytechnique.fr/index.php?page=aircore">http://ara.abct.lmd.polytechnique.fr/index.php?page=aircore</a>
<b>AGAGE</b>	AGAGE Advanced Global Atmospheric Gases Experiment <a href="http://agage.mit.edu/about">http://agage.mit.edu/about</a>
<b>ARA</b>	Site du groupe d'Analyse du Rayonnement Atmosphérique du LMD <a href="http://ara.abct.lmd.polytechnique.fr/">http://ara.abct.lmd.polytechnique.fr/</a>
<b>ASC</b>	Agence Spatiale Canadienne <a href="http://www.asc-csa.gc.ca/fra/">http://www.asc-csa.gc.ca/fra/</a> Agence Spatiale Canadienne - Ballons <a href="http://www.asc-csa.gc.ca/fra/sciences/ballons/default.asp">http://www.asc-csa.gc.ca/fra/sciences/ballons/default.asp</a>
<b>CAMS</b>	Copernicus Atmosphere Monitoring Service <a href="https://atmosphere.copernicus.eu/">https://atmosphere.copernicus.eu/</a>
<b>CNES Ballons</b>	Le site officiel des activités ballons du CNES <a href="https://ballons.cnes.fr/">https://ballons.cnes.fr/</a> Un peu de vulgarisation sur les différents ballons stratosphériques du CNES. <a href="https://cnes.fr/fr/un-peu-de-vulgarisation-le-ballon-stratospherique">https://cnes.fr/fr/un-peu-de-vulgarisation-le-ballon-stratospherique</a>
<b>CIO</b>	CIO Groningen <a href="http://www.rug.nl/research/isotope-research/projects/atmosphericgases/lutjewad2/?lang=en">http://www.rug.nl/research/isotope-research/projects/atmosphericgases/lutjewad2/?lang=en</a>
<b>Copernicus</b>	Site officiel du projet européen Copernicus <a href="http://atmosphere.copernicus.eu/">http://atmosphere.copernicus.eu/</a>
<b>ESA-CCI</b>	Le site programme Climate Change initiative de l'ESA <a href="http://cci.esa.int/">http://cci.esa.int/</a>
<b>EDGAR</b>	Emission Database for Global Atmospheric Research <a href="http://edgar.jrc.ec.europa.eu">http://edgar.jrc.ec.europa.eu</a>
<b>EUMETSAT</b>	Le site d'eumetsat <a href="http://www.eumetsat.int/website/home/index.html">http://www.eumetsat.int/website/home/index.html</a>
<b>ESRANGE</b>	ESRANGE space center <a href="http://www.sscspace.com/launch-services-esrange-space-center">http://www.sscspace.com/launch-services-esrange-space-center</a>
<b>GAW</b>	Le site du programme Global Atmospheric Watch de la WMO <a href="https://gawsis.meteoswiss.ch/GAWSIS//index.html#/">https://gawsis.meteoswiss.ch/GAWSIS//index.html#/</a>
<b>GEFD</b>	Global Fire Emission Database <a href="http://www.globalfiredata.org">http://www.globalfiredata.org</a>
<b>GIEC</b>	Site web du GIEC <a href="https://www.ipcc.ch">https://www.ipcc.ch</a>
<b>GCP</b>	The Global Carbon Project <a href="http://www.globalcarbonproject.org/carbonbudget/">http://www.globalcarbonproject.org/carbonbudget/</a>

---

<b>HIPPO</b>	Le site des campagnes aéroportées HIPPO <a href="http://hippo.ucar.edu/">http://hippo.ucar.edu/</a> <a href="https://www.eol.ucar.edu/field_projects/hippo">https://www.eol.ucar.edu/field_projects/hippo</a>
<b>ICOS</b>	Site officiel du réseau de mesure ICOS <a href="https://www.icos-ri.eu/">https://www.icos-ri.eu/</a>
<b>InGOS</b>	Site officile du réseau de mesures InGOS <a href="http://www.ingos-infrastructure.eu/">http://www.ingos-infrastructure.eu/</a>
<b>IPSL</b>	Site de l'Institut Pierre Simon Laplace <a href="https://www.ipsl.fr/">https://www.ipsl.fr/</a>
<b>LMD</b>	Site du Laboratoire de Météorologie Dynamique <a href="http://www.lmd.jussieu.fr/">http://www.lmd.jussieu.fr/</a>
<b>NDACC</b>	Network for Detection of Atmospheric Composition Change (NDACC) <a href="http://www.ndsc.ncep.noaa.gov/">http://www.ndsc.ncep.noaa.gov/</a>
<b>NOAA/ESRL</b>	ESRL Global monitoring <a href="http://www.esrl.noaa.gov/gmd/ccgg/">http://www.esrl.noaa.gov/gmd/ccgg/</a> <a href="http://www.esrl.noaa.gov/gmd/ccgg/aircore/">http://www.esrl.noaa.gov/gmd/ccgg/aircore/</a> <a href="http://www.esrl.noaa.gov/gmd/ccgg/flask.php">http://www.esrl.noaa.gov/gmd/ccgg/flask.php</a>
<b>StratoCat</b>	Un site de référence sur l'ensemble des vols de ballons <a href="http://stratocat.com.ar/indexe.html">http://stratocat.com.ar/indexe.html</a>
<b>TCCON</b>	Site officiel du réseau TCCON <a href="https://tcccon-wiki.caltech.edu/">https://tcccon-wiki.caltech.edu/</a>
<b>WDCGG</b>	World Data Center for Greenhouse Gases <a href="http://ds.data.jma.go.jp/gmd/wdcgg/">http://ds.data.jma.go.jp/gmd/wdcgg/</a>

# Liste des figures

I.1	Variations des concentrations atmosphériques de gaz CO <sub>2</sub> (a), CH <sub>4</sub> (b), N <sub>2</sub> O (c) depuis 20000 ans et forçages radiatifs associés. (d) Taux de variation du changement du forçage radiatif. Issue de <a href="#">IPCC, 2007</a> . L'abondance relative de ces constituants est discutée en terme de rapport de mélanges qui se chiffrent en millionièmes (10 <sup>-6</sup> - parties par million, ppm), voir en milliardèmes (10 <sup>-9</sup> - parties par milliard, ppb) de la concentration totale atmosphérique. . . . .	2
I.2	(a) du CO <sub>2</sub> atmosphérique au sommet de l'Observatoire de Mauna Loa, Hawaï, USA. ( <a href="#">Keeling, 1960</a> ) (b) Évolution récente du CH <sub>4</sub> , mesures globales de la NOAA ( <a href="#">Dlugokencky et al., 2010</a> ). Les figures sont issues du site de la NOAA/ESRL. La moyenne mensuelle est indiquée en rouge. La moyenne mensuelle corrigée de la variation saisonnière est indiquée en noir. . . . .	3
I.3	Les différentes méthodes d'observation atmosphériques de gaz à effet de serre CO <sub>2</sub> et CH <sub>4</sub>	8
I.4	Station de mesure atmosphérique de Lutfjewad, Province de Groningen, Pays-Bas. Son mât de 60m permet de réaliser la mesure de gaz à différents niveaux. Réseaux ICOS et InGOS. . . . .	9
I.5	Stations du programme Global Atmospheric Watch de l'Organisation Météorologique Mondiale utilisées pour le calcul de la valeur moyenne de CO <sub>2</sub> (GAW-WMO). Le réseau qui permet le calcul de la valeur moyenne de CH <sub>4</sub> est quasiment identique.. . . .	9
II.1	Schéma descriptif des différentes étapes de fonctionnement d'un AirCore lors d'un vol sous ballon . . . . .	19
II.2	Chaîne de mesure permettant l'analyse de l'échantillon prélevé par un AirCore. . . . .	20
II.3	(a) Photographie d'un AirCore Light avec le tube de sécheur à l'entrée, (b) Photographie du même AirCore dans sa boîte de protection avec son électronique associée.. . . .	21
II.4	Boîte de protection en polystyrène des AirCore-Light du LMD . . . . .	22
II.5	Test de fuite dans le AirCore réalisé avec du gaz synthétique. CO <sub>2</sub> , CH <sub>4</sub> et H <sub>2</sub> O mesuré par le Picarro en fonction du temps d'analyse. . . . .	25
II.6	Comparaison expérimentale de la diffusion : On voit l'effet de la déformation de créneaux lors du passage direct au travers du bypass (bleu foncé); d'un passage direct dans le AirCore (vert); pour un stockage pendant 22 h (rouge); et pour un stockage pendant 120 h (bleu clair). Figure issue du rapport de module d'enseignement à la recherche ( <a href="#">Caldairou et al., 2015</a> ). . . . .	32
II.7	Comparaison entre le modèle et les courbes expérimentales. En bleu, la mesure suite au stockage dans le AirCore; en rouge le modèle. Figure issue du rapport de module d'enseignement à la recherche ( <a href="#">Caldairou et al., 2015</a> ). . . . .	34
II.8	Résolution verticale théorique du premier AirCore de la NOAA ( <a href="#">Karion et al., 2010</a> ) (a) en fonction de l'altitude en km, (b) en fonction de pression. Les traits pleins montrent la résolution théorique pour le CO <sub>2</sub> , les traits pointillés pour le CH <sub>4</sub> . Les coefficients de diffusion respectifs du CO <sub>2</sub> et du CH <sub>4</sub> étant légèrement différents. . . . .	37
II.9	Représentation schématique des différents AirCores dont la résolution verticale est présentée en Fig. II.10 . . . . .	38

II.10	Résolution verticale théorique de différents AirCores donnée pour les mesures de CO <sub>2</sub> pour un délai de 3 heures entre l’atterrissage et l’analyse. AirCore-HR (rouge), le premier AirCore de la NOAA (noir), AirCore-GUF (bleu), le AirCore-Light du LMD “LMD-Light” (violet) . . . . .	39
II.11	Influence du délai entre l’atterrissage et le début de l’analyse sur la résolution verticale des profils de CO <sub>2</sub> qui peuvent être obtenus avec le AirCore-HR (en trait plein) ou le AirCore-Light (en trait pointillé). La résolution verticale théorique qui peut être attendue est présentée pour un délai de 3 h (en noir), 6 h (en bleu), 12 h (en vert), 24 h (en orange), 1 semaine (en rouge). . . . .	42
III.1	Mesures par le Picarro du rapport de mélange CH <sub>4</sub> de l’échantillon prélevé par le AirCore-HR durant le vol “EdS-Stratéole” le 29 Août 2014. Le CH <sub>4</sub> est présenté en fonction de la durée de l’analyse en secondes. Le point marquant le début de l’analyse du contenu du AirCore-HR est indiqué par une croix verte ; le point marquant la fin de l’échantillon contenu dans le AirCore-HR est marqué par une croix rouge. . . . .	45
III.2	Températures du AirCore-HR mesurées par 3 sondes, (traits rose, rouge et violet), présentées en °C et pression ambiante en hPa (ligne noire) en fonction de l’heure UTC le jour du vol. L’axe vertical présentant les valeurs de la pression est placé à gauche. Celui présentant la température est placé à droite. . . . .	46
III.3	Profil vertical du rapport de mélange en CH <sub>4</sub> , obtenu après analyse de l’air prélevé par le AirCore-HR lors du vol “Eds-Stratéole” le 29 Août 2014. . . . .	47
III.4	Schéma du AirCore-HR le 29 Août 2014. . . . .	48
III.5	Pression différentielle mesurée à l’extrémité fermée du AirCore-HR, en fonction de la pression ambiante lors du vol “Eds-Stratéole” le 29 Août 2014. La pression différentielle mesurée lors de la phase de montée est indiquée en bleu, la pression différentielle mesurée lors de la descente est indiquée en rouge. . . . .	49
III.6	Représentation schématique d’une coupe transversale de AirCore illustrant le découpage du AirCore en volumes fins servant pour la modélisation. . . . .	50
III.7	Évolution de la perte de charge en fonction de la distance dans le AirCore-HR lors du vol “EdS-Stratéole” du 29 Août 2014. (a) Évolution de la perte de charge à la montée ; (b) Évolution de la variation de la perte de charge à la descente. . . . .	51
III.8	Évolution de la perte de charge à 300 m dans le AirCore-HR lors du vol “EdS-Stratéole” en fonction du temps. La valeur mesurée est indiquée en rouge. La valeur modélisée est indiquée en bleu pointillé. . . . .	52
III.9	Évolution du rapport entre le nombre de moles effectivement dans le AirCore en prenant en compte la perte de charge et le nombre de moles dans le AirCore si on considère un état d’équilibre avec la pression ambiante. Ce rapport est présenté en bleu durant la phase de montée et en rouge durant la phase de descente. . . . .	54
III.10	Amélioration du positionnement vertical en considérant la perte de charge dans le AirCore-HR. Le profil en bleu est identique au profil présenté en Fig.III.3. Le profil présenté en rose pointillé correspond au nouveau positionnement prenant en compte la perte de charge. . . . .	55
III.11	Évolution de la température des trois sondes de température positionnées le long du AirCore en fonction du temps du vol. . . . .	56
III.12	Profil final de CH <sub>4</sub> prenant en compte l’ensemble des améliorations de positionnement (noir). Le profil initial obtenu en considérant un état d’équilibre avec l’air ambiant est toujours affiché en bleu. Le profil prenant en compte uniquement une correction pour la perte de charge est présenté en rose pointillé. . . . .	57
III.13	Influence d’un profil de vol particulier sur l’évolution du nombre de moles prélevées par un AirCore. (a) Évolution du pourcentage de l’échantillon prélevé en fonction du temps de vol avec des cercles bleus lorsque l’on prélève de l’échantillon ; (b) Pression ambiante en fonction du temps de vol en noir. Pression ambiante à la descente en rouge avec des cercles bleus lorsque l’on prélève de l’échantillon. . . . .	58

III.14	(a) profil vertical de CH <sub>4</sub> obtenu avec les mesures de l'air échantillonné par le AirCore-HR le 29 août 2014, (b) incertitudes associées au profil de CH <sub>4</sub> dans un cas idéalisé sans prendre en compte la perte potentielle d'échantillon en bas du profil, (c) incertitudes totales associées au profil de CH <sub>4</sub> en prenant en compte toutes les sources d'incertitudes identifiées. . . . .	60
III.15	(a) Rappel des incertitudes totales associées au profil de CH <sub>4</sub> en prenant en compte toutes les sources d'incertitudes identifiées. Pourcentage de l'erreur totale liée à (b) la sélection des points marquant le début et la fin de l'échantillon par l'utilisateur, (c) la mesure des rapports de mélanges par le Picarro, (d) les mesures des capteurs de températures, (e) la correction du positionnement liée à la perte d'échantillon en bas du profil . . . . .	61
IV.1	Principaux éléments d'un ballon stratosphérique ouvert. © Conception J-P. Penot(CNES) / Illustration B.Nicolas . . . . .	64
IV.2	Les différents sites de lancement de ballons du CNES et autre sites de lancement AirCore. . . . .	65
IV.3	Préparation du lâcher de la nacelle du vol CLIMAT sur l'aire de lancement de la base de ballons stratosphériques de Timmins (Ontario, Canada) le 22 août 2015 . . . . .	66
IV.4	Nacelle du vol "EdS-Stratéole" avec l'ensemble des instruments intégrés à bord. Base de ballon stratosphérique de Timmins, Ontario, Canada. 28 Août 2014. . . . .	67
IV.5	(a) Plan du vol "EdS-Stratéole" le 29 Août 2014 avec les différentes phases de fonctionnement d'un AirCore : La phase de préparation, au sol avant le décollage (bleu), la montée le tube se vide (vert), la phase de descente (noir), au sol le tube est fermé (rouge) ; (b) Trajectoire du vol "EdS-Stratéole" avec toutes les informations de sécurité au sol spécifiques pour le CNES . . . . .	68
IV.6	Analyse de l'échantillon prélevé par le AirCore-HR sur le terrain, près du point d'atterrissage de la nacelle "EdS-Stratéole" le 29 Août 2014, Québec, Canada. . . . .	68
IV.7	Plan du vol "CLIMAT" le 23 Août 2015 avec les différentes phases de fonctionnement d'un AirCore : La phase de préparation, au sol avant le décollage (bleu), la montée le tube se vide (vert), la phase de descente (noir), au sol le tube est fermé (rouge) . . . . .	69
IV.8	Atterrissage de la nacelle du vol "CLIMAT" au sommet d'un arbre le 29 Août 2016. . . . .	70
IV.9	Plan du vol "CLIMAT" le 29 Août 2016 avec les différentes phases de fonctionnement d'un AirCore : la montée le tube se vide (vert), la phase de descente (noir), au sol le tube est fermé (rouge) . . . . .	71
IV.10	Synthèse du AirCore-HR lors du vol EdS-Stratéole en Août 2014. Les figures sont organisées suivant les étapes du traitement des données présentées au chapitre III. Étape 1 : sélection des points marquant le début et la fin de l'échantillon. (a) Analyse des rapports de mélange de CO <sub>2</sub> et de CH <sub>4</sub> mesurés par le Picarro - Étape 2 : Données de bord, (b) mesure de la pression ambiante et de la température du AirCore et (c) mesure de la température ambiante lors du vol. - Étape 3 : Profils finaux de CO <sub>2</sub> et de CH <sub>4</sub> . (d) profil final de CO <sub>2</sub> , (e) profil final de CH <sub>4</sub> . . . . .	74
IV.11	Synthèse de tous les profils mesurés par des AirCores lors des différentes campagnes Strato-Sciences 2014, 2015 et 2016. Pour chaque année les profils de CO <sub>2</sub> sont placés à gauche, soit respectivement les figures (a), (c) et (e) et les profils CH <sub>4</sub> sont placés à droite soit respectivement les figures (b), (d) et (f) . . . . .	76
IV.12	Synthèse de l'incertitude associée à chacun des profils mesurés par des AirCores lors des différentes campagnes Strato-Sciences 2014, 2015 et 2016. Selon le même ordre qu'en Fig. IV.11 les incertitudes sur les profils de CO <sub>2</sub> sont placées à gauche soit respectivement les figures (a), (c) et (e) et de la même manière les incertitudes sur les profils CH <sub>4</sub> sont placées à droite soit respectivement les figures (b), (d), et (f) . . . . .	77

IV.13	Dégradation des profils du AirCore-HR vers la résolution du AirCore-Light pour les profils mesurés lors du vol CLIMAT à Timmins le 23 Août 2015. (a) Profils de CH <sub>4</sub> du AirCore-HR, AirCore-HR “dégradé” et du AirCore-Light1. (b) Différence entre les profils de CH <sub>4</sub> du AirCore-HR “dégradé” et du AirCore-Light1. (c) Profils de CO <sub>2</sub> du AirCore-HR, AirCore-HR “dégradé” et du AirCore-Light1. (d) Différence entre les profils de CO <sub>2</sub> du AirCore-HR “dégradé” et du AirCore-Light1. Un trait pointillé noir indique alors la valeur moyenne de la différence entre le profil du AirCore-Light1 et le profil du AirCore-HR “dégradé”. Les deux traits plus fins en pointillés gris indiquent l’écart-type de cette moyenne . . . . .	80
IV.14	Dégradation des profils du AirCore-HR vers la résolution du AirCore-Light analysé avec un délai de 30 heures après l’atterrissage pour les profils mesurés lors du vol CLIMAT à Kiruna le 29 Août 2016. (a) Profils de CH <sub>4</sub> du AirCore-HR, AirCore-HR “dégradé” et du AirCore-Light3. (b) Différence entre les profils de CH <sub>4</sub> du AirCore-HR “dégradé” et du AirCore-Light3. (c) Profils de CO <sub>2</sub> du AirCore-HR, AirCore-HR “dégradé” et du AirCore-Light3. (d) Différence entre les profils de CO <sub>2</sub> du AirCore-HR “dégradé” et du AirCore-Light3. Un trait pointillé noir indique la valeur moyenne de la différence. Les deux traits plus fins en pointillés gris indiquent l’écart-type de cette moyenne. . . . .	82
IV.15	Comparaison entre les profils de CH <sub>4</sub> mesurés par des AirCores et le Pico-SDLA CH <sub>4</sub> lors du vol “EdS-Stratéole” de 2014. (a) Profils verticaux de CH <sub>4</sub> du AirCore-HR, du AirCore-GUF et du Pico-SDLA, (b) Différence entre le profil du Pico-SDLA et du AirCore-HR, Comparaison entre les profils de CH <sub>4</sub> mesurés par des AirCores et le Pico-SDLA CH <sub>4</sub> lors du vol CLIMAT de 2016. (a) Profils verticaux de CH <sub>4</sub> du AirCore-HR, du AirCore-HR dégradé et du Pico-SDLA, (b) Différence entre le profil du Pico-SDLA et du AirCore-HR. Un trait pointillé noir indique la valeur moyenne de la différence. Les deux traits plus fins en pointillés gris indiquent l’écart-type de cette moyenne. . . . .	84
IV.16	Importance du plan de vol. . . . .	86
IV.17	Comparaison des rapports de mélange mesurés avec l’air échantillonné par deux AirCores. L’un ayant volé avec sécheur et l’autre sans sécheur à l’entrée. Les profils de CO <sub>2</sub> et de CH <sub>4</sub> sont respectivement présentés à gauche et les différences entre les profils sont présentées à droite. Un trait pointillé noir indique la valeur moyenne de la différence. Les deux traits plus fins en pointillés gris indiquent l’écart-type de cette moyenne. . . . .	87
V.1	Acquisition par balayage transversal et champ de vue des observations IASI. Vue d’artiste du satellite Metop-A. © CNES . . . . .	93
V.2	Fonction de poids verticale associée aux estimations de CH <sub>4</sub> IASI en fonction de la latitude (ppb.ppb <sup>-1</sup> ). . . . .	93
V.3	Cartes annuelles du contenu intégré de CH <sub>4</sub> IASI de l’année 2007 à 2015. La moyenne 2007 représente uniquement les mois de Juillet à Décembre 2007 et la moyenne 2015, les mois de Janvier à Septembre 2015. . . . .	95
V.4	(a) moyenne annuelle des estimations de CH <sub>4</sub> IASI pour l’année 2011. (b) Moyenne annuelle des contenus intégrés de CH <sub>4</sub> IASI calculés dans les champs de CH <sub>4</sub> simulés par le modèle LMDz pour l’année 2011. (c) Identique à (b), mais pour le modèle TM5. (d) Moyenne de la différence entre les contenus intégrés de CH <sub>4</sub> , calculés dans les champs de CH <sub>4</sub> simulés par le modèle LMDz, et les estimations de CH <sub>4</sub> IASI. (e) Identique à (d) mais pour le modèle TM5. . . . .	97
V.5	(a) Trajectoires des 5 campagnes HIPPO. H1,H2,H3,H4 et H5 représentent le numéro de la campagne HIPPO. (b) Exemple d’un plan de vol lors d’une section entre l’Alaska et les îles d’Hawaï. . . . .	98
V.6	Profils de CH <sub>4</sub> mesurés lors des 5 campagnes HIPPO, moyennés dans trois bandes de latitude. Nord (> 30°N), Tropiques ( 30°N - 30°S), Sud (< 30°S). Les profils typiques des fonctions de poids correspondant aux estimations CH <sub>4</sub> IASI aux différentes latitudes sont présentés en bleu. . . . .	99



V.7	(a) Comparaison entre la moyenne des estimations CH <sub>4</sub> IASI et la moyenne des profils extraits des simulations LMDz auxquels on a appliqué la fonction de poids des estimations IASI dans une boîte de 10°x10°; (b) Identique à (a) mais pour les profils extraits des simulations TM5; (c) Comparaison entre la moyenne des estimations CH <sub>4</sub> IASI et la moyenne des profils HIPPO complétés par les profils LMDz dont on a corrigé le biais à partir des mesures troposphériques, auxquels on a appliqué la fonction de poids des estimations IASI dans une boîte de 10°x10°; (d) Identique à (c) mais pour les profils extraits des simulations TM5; (e) Identique à (c), mais pour les situations de l'hémisphère Nord on modifie la partie stratosphérique des profils par des mesures AirCores; (f) Identique à (e), mais pour les profils extraits des simulations TM5. Les couleurs verte, rouge et bleue permettent de différencier les bandes de latitudes de l'hémisphère Sud (< 30°S), tropicales (30°S-30°N) et de l'hémisphère Nord (>30°N). . . . .	101
V.8	(a) Moyenne du biais dans la troposphère entre le profil HIPPO et les profils issus des simulations du modèle LMDZ en fonction de la latitude; (b) Identique à (a) mais pour le modèle TM5. Les couleurs verte, rouge et bleue permettent de différencier les bandes de latitudes de l'hémisphère Sud (< 30°S), tropicales (30°S-30°N) et de l'hémisphère Nord (>30°N). . . . .	103
V.9	Profils des modèles TM5 et LMDz, co-localisés avec les mesures de la première campagne HIPPO, moyennés dans trois bandes de latitude. Nord (> 30°N), Tropiques ( 30°N - 30°S), Sud (< 30°S). Les traits pleins rouges représentent le profil moyen TM5 et la surface rouge transparente présente son écart-type associé. Les traits pleins bleus représentent le profil moyen LMDz et la surface bleue transparente présente son écart-type associé. . . . .	104
V.10	(a) Profils de CH <sub>4</sub> mesurés au cours de 15 vols différents réalisés entre septembre 2013 et août 2016 depuis Timmins, Kiruna ou Sodankyla. Les profils des AirCore-HR du LMD en traits gras. Les profils qui nécessiteraient des corrections de positionnement sont présentés en traits pointillés. (b) Profils de CH <sub>4</sub> retenus pour une comparaison avec les estimations IASI. . . . .	105
V.11	(a) Comparaison entre la moyenne des estimations CH <sub>4</sub> IASI et la moyenne des profils AirCores auxquels on a appliqué la fonction de poids des estimations IASI dans une boîte de 10°x10°; (b) Comparaison entre la moyenne des estimations CH <sub>4</sub> IASI et la moyenne des profils extraits des prévisions C-IFS auxquels on a appliqué la fonction de poids des estimations IASI dans une boîte de 10°x10°; (c) même chose que (b) pour les profils issus de TM5. . . . .	107
V.12	(a) Profil du AirCore-HR et de l'ensemble des modèles co-localisés; (b) Profil de CH <sub>4</sub> du AirCore-HR avec les profils moyens de deux versions différentes du modèle LMDz en 2010; (c) Profil de CH <sub>4</sub> du AirCore-HR avec les profils de deux versions du modèle TM5; (d) Profil de CH <sub>4</sub> du AirCore-HR avec les profils des analyses et forecast du modèle de prévisions C-IFS. . . . .	109



# Liste des tableaux

II.1	Valeurs des concentration en CO <sub>2</sub> et CH <sub>4</sub> sur les échelles internationales WMO des bouteilles de gaz utilisées comme référence . . . . .	23
II.2	Caractéristiques du AirCore-HR . . . . .	40
II.3	Caractéristiques des AirCores-Light du LMD . . . . .	41
IV.1	Rappel des différents instruments qui ont volé conjointement sur les mêmes nacelles lors des différents vols des campagnes Strato-Sciences 2014, 2015 et 2016 auxquelles des AirCores du LMD ont participé. Lorsque plusieurs instruments du même type ont volé ils sont listés. Autrement la présence de l'instrument est indiquée par un X et l'absence de l'instrument par - . . . . .	72
IV.2	Récapitulatif du fonctionnement des différents AirCores. La colonne fermeture indique le statut de fonctionnement de la vanne de fermeture du système. La colonne électronique précise si les données ont été enregistrées. La colonne sécheur précise si un tube de 10 cm avec du perchlorate de magnésium était placé à l'entrée du AirCore. La colonne délai donne le temps d'attente entre l'atterrissage du AirCore et l'analyse de l'air échantillonné. Enfin une colonne commentaires sert à préciser les corrections apportées aux profils. . . . .	72
V.1	Résolutions géographiques et verticales des différents modèles utilisés. . . . .	96
V.2	Liste et période des campagnes HIPPO . . . . .	99
V.3	Tableau présentant la moyenne de la différence entre le contenu intégré de CH <sub>4</sub> déduit des modèles et celui estimé par IASI, l'écart-type et la corrélation associés (moyenne ± écart-type (R)). Les statistiques sont détaillées par bande de latitude. La colonne 'points' correspond aux nombre de profils utilisés. La colonne 'Std. IASI' présente la variation moyenne des estimations IASI dans une boîte de 10°x10°. Les moyennes et les écarts-types sont exprimés en ppb. . . . .	102
V.4	Tableau présentant la moyenne de la différence entre le contenu intégré de CH <sub>4</sub> calculé avec les profils mesurés par des AirCores ou issus de modèles et celui estimé par IASI, l'écart-type et la corrélation associés (moyenne ± écart-type (R)). Les statistiques sont détaillées par bande de latitude. La colonne 'points' correspond aux nombre de profils utilisés. La colonne 'Std. IASI' présente la variation moyenne des estimations IASI dans une boîte de 10°x10°. Les moyennes et les écarts-types sont exprimés en ppb. . . . .	106
V.5	Comparaison de la valeur de CH <sub>4</sub> IASI retrouvée avec les différents profils. (a) résultats de la fonction de poids au nadir des estimations IASI appliquées à chacun des profils colocalisés avec le AirCore-HR. L'écart est ensuite calculé par rapport à la valeur moyenne des estimations IASI dans une boîte de 10°x10° autour de Timmins. (b) écarts moyens entre les profils des modèles et les mesures du AirCore-HR dans la partie troposphérique (200-750 hPa) et dans la partie stratosphérique (30-120 hPa). (c) même chose que (a) mais en corrigeant les profils issus de modèles, du biais observé dans la partie troposphérique par rapport aux mesures du AirCore-HR. La valeur de référence IASI dans une boîte de 10°x10° autour de Timmins est de 1820.5 ppb. n/a indique que la comparaison n'est pas possible. . . . .	110





---

## Caractérisation de la distribution verticale des gaz à effet de serre CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> par mesures sous ballons. Application à la validation d'observations satellites.

---

**Résumé** - Suivre et comprendre l'évolution des deux principaux gaz à effet de serre anthropogéniques (le dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>) et le méthane (CH<sub>4</sub>)) sont des enjeux majeurs pour les sciences du climat. Au cours des dernières décennies, l'augmentation du nombre et de la diversité des observations (réseaux de stations de mesures en surface, mesures aéroportées, observations satellitaires) ainsi que l'amélioration de la qualité des modèles de chimie-transport atmosphériques ont contribué à développer notre compréhension des cycles biogéochimiques associés à ces gaz. Néanmoins, les observations précises le long de la verticale sont encore très limitées. Elles deviennent pourtant indispensables, d'une part, pour approfondir nos connaissances dans le transport de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub>, d'autre part, pour évaluer les colonnes totales ou partielles mesurées par satellites.

Dans cette thèse, nous présentons un instrument innovant appelé "AirCore" permettant d'échantillonner l'air en continu le long d'une colonne atmosphérique lors d'une descente depuis haute altitude. L'analyse du contenu en CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> de l'échantillon prélevé par un AirCore combiné aux mesures des paramètres d'environnement (Pression, température...) par une électronique embarquée permet de remonter à des profils verticaux de la surface à 30 km. Initialement inventé à la NOAA, différents AirCores donnant accès à différentes résolutions verticales ont été développés au LMD et déployés avec succès lors des campagnes ballons Strato-Sciences 2014, 2015 et 2016 du CNES. L'accord remarquable retrouvé entre les profils acquis avec des AirCores différents lors de mêmes vols a démontré la répétabilité des mesures et permis de valider les calculs théoriques de résolution verticale. Les mesures réalisées simultanément par des instruments indépendants ont confirmé que les AirCores permettent d'accéder à la variabilité verticale du CO<sub>2</sub> et du CH<sub>4</sub>.

Les profils verticaux de AirCores ont permis de valider les estimations de colonnes partielles de CH<sub>4</sub> réalisées avec l'instrument IASI/Metop et de mettre en évidence la nécessité de disposer de l'ensemble du profil. Des comparaisons ont été menées avec des profils troposphériques obtenus lors de campagnes aéroportées (HIPPO), ou avec des profils issus de modèles de transports (LMDz, TM5) ou de prévisions (CAM5). Les résultats ont démontré l'importance d'une bonne caractérisation de la stratosphère pour les activités de calibration/validation des mesures satellites et, plus généralement, l'étude des gaz à effet de serre.

**Mots clés** - Climat, Atmosphère, Effet de Serre, dioxyde de carbone, méthane, CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, Cycle du carbone, Télédétection, AirCore, Ballons, Stratosphère, Profils, Distribution verticale, Validation, Modèle de transport atmosphérique, Observations satellites

---

## Characterization of the vertical distribution of greenhouse gases CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> using balloon borne measurements. Use for the validation of satellite observations.

---

**Abstract** - Monitoring and understanding the evolution of the two most important anthropogenic greenhouse gases (carbon dioxide (CO<sub>2</sub>) and methane (CH<sub>4</sub>)) are some of the major challenges in climate science. Over the past decades, the increased availability and diversity of observations (surface networks, aircraft campaigns, satellite observations) and the improvement of atmospheric transport models has allowed to increase our understanding of biogeochemical cycles of CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub>. Nevertheless, precise vertical observations are still very rare. However, these become crucial to both properly characterize the vertical transport of the gases, as well as to fully evaluate total or partial columns of gases retrieved from space observations.

In this thesis, we present an innovative instrument called "AirCore" allowing to collect a continuous air sample along an atmospheric column while descending from high altitude. The analysis of CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> mole fractions in the collected sample combined with the measurements of an ambient parameters (Pressure, temperature...) allows to retrieve vertical profiles from the surface up to 30 km. Initially invented at NOAA, several new AirCores giving access to various vertical resolutions have been developed at LMD and flown with success during the CNES Strato-Sciences 2014, 2015, and 2016 balloon campaigns. Excellent agreement was found between profiles acquired with different AirCores during the same flights demonstrating the repeatability of the measurements and allowing to validate the calculation of the vertical resolution. Comparisons with measurements from independent laser diode spectrometers flown on the same gondola have confirmed that AirCore profiles capture the vertical variability of CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub>.

The vertical profiles retrieved from AirCores have been allowed to validate the CH<sub>4</sub> partial columns retrieved from IASI/Metop at LMD and revealed that the information on the full atmospheric column is required. Comparisons have been performed with tropospheric profiles obtained during aircraft campaigns (HIPPO) as well as vertical profiles extracted from atmospheric transport models (LMDz, TM5) and forecast systems (CAM5). Results demonstrated the importance of a good characterization of the stratosphere for satellite retrievals calibration/validation activities, and more generally, for the study of atmospheric greenhouse gases.

**Keywords** - Climate, Atmosphere, Greenhouse Gases, carbon dioxide, methane, CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, Carbon Cycle, Remote Sensing, AirCore, Balloons, Stratosphere, Profiles, vertical distribution, calibration, validation, Atmospheric transport models, Satellite observations