



HAL
open science

Caractérisation de la composition chimique des panaches volcaniques par imagerie hyperspectrale infrarouge

Charlotte Segonne

► **To cite this version:**

Charlotte Segonne. Caractérisation de la composition chimique des panaches volcaniques par imagerie hyperspectrale infrarouge. Sciences de la Terre. Université Clermont Auvergne, 2021. Français. NNT : 2021UCFAC073 . tel-03662497

HAL Id: tel-03662497

<https://theses.hal.science/tel-03662497>

Submitted on 9 May 2022

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



THESE DE DOCTORAT
DE L'UNIVERSITE CLERMONT AUVERGNE

ECOLE DOCTORALE N° 178

Sciences Fondamentales – Sciences Atmosphériques

Spécialité du doctorat : Physique-Chimie de l'atmosphère et climat

Par

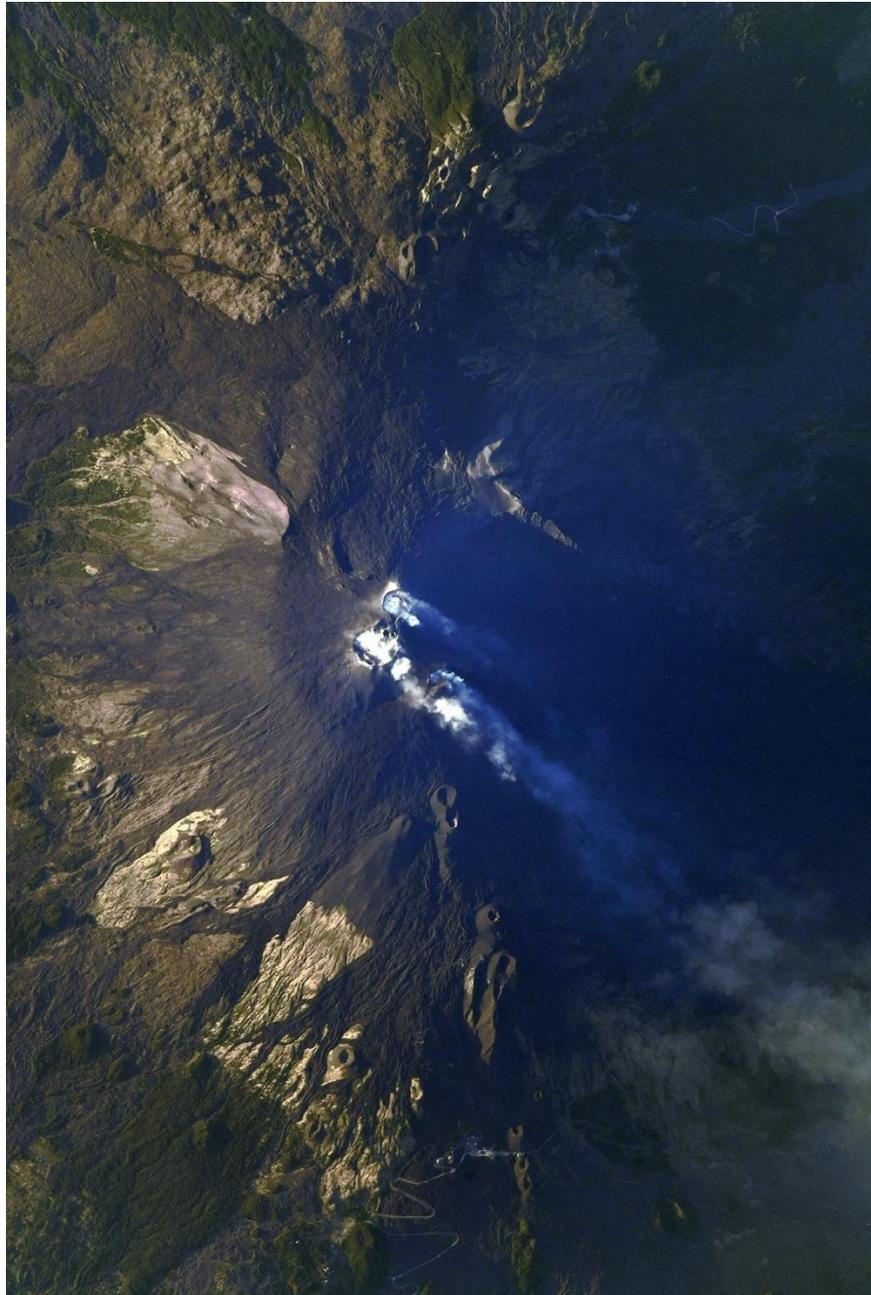
Mme Charlotte Segonne

**Caractérisation de la composition chimique des
panaches volcaniques par imagerie
hyperspectrale infrarouge**

Thèse présentée et soutenue à Aubière, le 15 novembre 2021.

Composition du Jury :

M. Laurent Deguillaume	Physicien, LaMP, Université Clermont Auvergne	Président du jury
Mme Gaëlle Dufour	Directrice de recherche, LISA, Université Paris Est Créteil	Rapporteuse
M. Hervé Herbin	Professeur des universités, LOA, Université Lille	Rapporteur
Mme Tjarda Roberts	Chargée de recherche, LPC2E, Université d'Orléans	Examinatrice
M. Andrew Harris	Professeur des Universités, LMV, Université Clermont Auvergne	Examineur
Mme Nathalie Huret	Professeure des Universités, LaMP, Université Clermont Auvergne	Directrice de thèse
M. Sébastien Payan	Professeur des Universités, LATMOS, Sorbonne Université	Co-directeur de thèse (Invité)



Photographie du soleil couchant éclairant les cratères fumants de l'Etna, prise par le spationaute français Thomas Pesquet, depuis l'ISS en août 2021.

(© Thomas Pesquet/ESA)

R emerciements

En quittant l'Université d'Orléans avec mon diplôme de Master en 2011, le doctorat me paraissait hors de portée. Et pourtant dix ans plus tard après m'être lancée dans l'aventure du doctorat en 2018, me voilà docteur en physique et chimie de l'atmosphère et climat de l'Université Clermont Auvergne. J'y suis arrivée ! Et cela a été possible car j'ai toujours été entourée de personnes qui ont cru en moi et m'ont faite avancer. Ces différentes personnes ont contribué à faire de cette aventure qu'est le doctorat un succès, une expérience formatrice, parfois faite de doute mais riche en découvertes et en émotions.

Dans un premier temps je souhaite remercier les membres de mon jury d'avoir accepté d'évaluer mon travail ainsi que pour les échanges et discussions qui ont suivi ma soutenance de thèse.

Il m'est difficile de trouver les mots pour te remercier assez Nathalie, pour toutes ces années à travailler à tes côtés. Tu as su croire en moi, me faire confiance, me bousculer lorsque c'était nécessaire et faire grandir la scientifique en moi. Sébastien, ta confiance et ta bienveillance ont également été des éléments essentiels à cette réussite. Malgré une disponibilité parfois très réduite, tu as toujours su être présent aux étapes importantes.

J'ai également une pensée pour Madame Suzanne et Reynald Coulon, que j'ai eu comme professeurs de physique-chimie au lycée Alain Colas à Nevers, et qui ont contribué à ce que je m'oriente vers des études supérieures scientifiques.

Merci aussi à Mathieu Gouhier de m'avoir également accompagnée dans cette aventure, je regrette cependant que l'on n'ait pas eu le temps de mener à bien cette étude sur les données du Stromboli.

Merci à Angélica, Christelle, Clémence, Géraldine, Guillaume, Pierre et Yannick pour vos remarques et regards neufs sur mes travaux pour que ma soutenance soit finalement à la hauteur de mes espérances. Merci à toutes les personnes de l'OPGC que j'ai pu côtoyer et avec qui j'ai passé de beaux moments comme pendant les Fêtes de la Science (Valérie, Manon, Alexandre et j'en oublie c'est sûr).

J'ai également une pensée pour mes anciens collègues, ami(e)s du LPC2E à Orléans. Malgré mon départ du fameux bureau 007 pour rejoindre Clermont Ferrand il y a trois ans, les copin(e)s sont toujours là. Merci à Laura, Corinna, Sandra et Manu d'être venus jusqu'à Clermont Ferrand pour assister à l'aboutissement de ces années de travail. Merci également à

Vanessa et Anne Laure de toujours avoir su trouver les mots réconfortants lorsque la pression était trop forte et aussi pour les relectures de chapitres.

Merci à mes partenaires de plongée Camille et Chacha pour votre soutien. Un grand merci à Emilie qui m'a vue évoluer depuis une dizaine d'années et qui est venue de Toulouse spécialement pour assister à ma soutenance.

Il m'est impossible de ne pas remercier également les copains de la team PhD vs Wild avec qui j'ai pu me vider la tête et me challenger en montagne ou ailleurs chaque été depuis quatre ans.

Un tendre et immense merci à toi Khalil d'avoir été là pour ces derniers moments stressants et d'avoir rendu cette fin de thèse bien plus sereine que je ne l'aurais imaginée. Tu m'as apporté bien plus que ce que tu ne peux l'imaginer.

Et pour finir, je souhaite remercier mes parents, Éric et Christine Segonne. Vous m'avez donné l'équilibre et l'éducation qui m'ont permis d'arriver jusqu'ici. La plus belle récompense de cet investissement qu'est le doctorat reste la fierté que j'ai pu lire dans vos yeux ce 15 novembre 2021. Merci aussi à mon frère Frédéric, et ma sœur jumelle Raphaëlle qui font partie de ce socle familial si important.

Avec du travail et de la persévérance, rien n'est impossible !

Table des matières

Remerciements	- 5 -
Introduction générale.....	- 11 -
1. Atmosphère, Transfert Radiatif et Télédétection	- 15 -
1.1. Introduction	- 19 -
1.2. L'atmosphère terrestre	- 19 -
1.2.1. Structure verticale de l'atmosphère	- 19 -
1.2.2. Composition de l'atmosphère.....	- 21 -
1.2.3. Les composés soufrés et particulaires dans l'atmosphère	- 22 -
1.3. Les émissions gazeuses des volcans : origine, composition et impacts	- 23 -
1.3.1. Composition des panaches volcaniques	- 24 -
1.3.2. L'origine des gaz présents dans les panaches volcaniques	- 27 -
1.3.3. L'Etna, un volcan sous surveillance	- 28 -
1.4. Télédétection des composants de l'atmosphère.....	- 33 -
1.4.1. La télédétection	- 33 -
1.4.2. La spectroscopie moléculaire atmosphérique	- 34 -
1.4.3. L'équation du transfert radiatif.....	- 42 -
1.4.4. Les instruments de télédétection des panaches volcaniques	- 44 -
1.4.5. Les imageurs hyperspectraux infrarouges	- 48 -
1.4.6. Les modèles de transfert radiatif	- 50 -
1.5. Conclusion	- 51 -
2. Cas d'étude : Caractérisation du panache de l'Etna par imagerie hyperspectrale infrarouge.....	- 55 -
2.1 Introduction	- 59 -

2.2	Campagne de mesures IMAGETNA du panache de l'Etna	- 59 -
2.2.1	Description de la campagne	- 59 -
2.2.2	Les principaux instruments de la campagne IMAGETNA	- 61 -
2.3	LARA : un modèle de transfert radiatif et d'inversion de données.....	- 67 -
2.3.1.	Modélisation du transfert radiatif pour des mesures de télédétection infrarouge au sol.....	- 68 -
2.3.2	L'inversion des données spectrales	- 76 -
2.4	Adaptation du modèle LARA aux mesures de l'Hyper-Cam au sol du panache de l'Etna.....	- 86 -
2.4.1	Conditions atmosphériques et géométriques de la visée	- 87 -
2.4.2	Géométrie de la ligne de visée	- 88 -
2.4.3	Caractéristiques du panache volcanique	- 88 -
2.5	Conclusion.....	- 89 -
3.	Validation des spectres de l'imageur hyperspectral infrarouge, du modèle LARA et résultats d'inversion des densités de colonnes de SO ₂ du panache de l'Etna	- 91 -
3.1	Validation des spectres de l'imageur hyperspectral infrarouge à l'aide de mesures FTIR.....	- 95 -
3.2	Inversion des densités de colonnes de SO ₂	- 97 -
3.2.1	Fenêtre spectrale pour la caractérisation de la composition en SO ₂ du panache.....	- 97 -
3.2.2	Espèces chimiques en entrée du modèle LARA	- 98 -
3.2.3	Caractéristiques des images du 26 juin 2015	- 100 -
3.2.4	Qualité des inversions	- 102 -
3.2.5	Tests de sensibilité sur les inversions des paramètres caractéristiques du panache dans le modèle LARA.....	- 104 -
3.2.6	Résultats des inversions des densités de colonnes de SO ₂	- 111 -
3.3	Conclusion.....	- 112 -
4.	Inter-comparaisons des résultats de quantification des densités de colonnes de SO ₂ du panache de l'Etna	- 115 -

4.1. Partie 1 : Inter-comparaison des résultats d'inversion des modèles LARA et KOPRA.....	- 120 -
4.1.1. Le modèle KOPRA	- 120 -
4.1.2. Les résultats de l'inversion avec KOPRA.....	- 121 -
4.1.3. Inter-comparaison des résultats d'inversion des mesures de l'Hyper-Cam par KOPRA et par LARA.	- 124 -
4.2. Partie 2 : Inter-comparaison des résultats des inversions des mesures de deux instruments : Caméra UV et imageur hyperspectral IR.....	- 133 -
4.2.1. Contexte de l'étude d'inter-comparaison	- 133 -
4.2.2. Inter-comparaison UV et IR.....	- 133 -
4.2.3. Discussion	- 136 -
4.3. Conclusion.....	- 137 -
5. Méthodologie de classification des spectres des images hyperspectrales infrarouges et estimation des flux d'émission de SO ₂	- 141 -
5.1. Introduction	- 145 -
5.2. Résumé en français.....	- 146 -
5.3. Article: "A spectra classification methodology of hyperspectral infrared images for near real-time estimation of the SO ₂ emission flux from Mount Etna with LARA radiative transfer retrieval model".....	- 148 -
5.3.1. Introduction	- 149 -
5.3.2. Materials and Methods	- 152 -
5.3.3. Results	- 163 -
5.3.4. Discussion	- 170 -
5.3.5. Conclusion.....	- 172 -
5.4. Conclusion.....	- 174 -
Conclusion et perspectives	- 175 -
Liste des acronymes	- 179 -
Liste des figures	- 183 -

Table des matières

Liste des tableaux - 189 -
Références - 191 -
Annexes - 205 -

I Introduction générale

La composition chimique de l'atmosphère terrestre est influencée par différentes sources d'émissions naturelles et anthropiques. Les mesures par télédétection de l'atmosphère permettent d'avoir une meilleure connaissance de l'influence de chacune de ces sources et d'obtenir une caractérisation à différentes échelles, locale, régionale ou globale, de la composition de l'atmosphère.

La contribution des émissions volcaniques est importante sur le bilan des émissions gazeuses et particulaires de l'atmosphère. Lorsque les volcans ne sont pas en phase d'activité éruptive, ils rejettent des panaches de gaz, plus ou moins denses, dans la troposphère dont les impacts sur la population (problèmes respiratoires) et l'environnement (acidification des sols) peuvent être à l'échelle locale ou régionale. Certaines éruptions ont des impacts globaux pouvant durer plusieurs années, lorsque gaz et particules sont injectés dans la stratosphère. On peut retenir les éruptions volcaniques majeures telles que celles du mont St Helens en 1980, ou du mont Pinatubo en 1991. La télédétection des panaches volcaniques s'est développée au cours des dernières décennies et a deux objectifs principaux : le suivi de l'activité volcanique et la prévention des éruptions, mais aussi la quantification des émissions volcaniques, pour une bonne prise en compte de la part des volcans dans les modèles de chimie atmosphérique et de climat.

Grâce à l'évolution des instruments de mesures, plusieurs réseaux de spectromètres dédiés au suivi des émissions volcaniques ont été mis en place sur plusieurs volcans actifs, tels que le réseau NOVAC (*Network for Observation of Volcanic and Atmospheric Change*) (Galle et al., 2010) couvrant 42 volcans autour du monde, comme par exemple sur le Piton de la Fournaise, Vulcano, La Soufrière ou le Popocatépetl, ou le réseau FLAME (*FLux Autmatic MEasurment*) (Salerno et al., 2009a) pour l'Etna en Sicile, pour n'en citer que deux.

Très récemment, un nouveau type d'instrumentation a été développé : les imageurs hyperspectraux infrarouges. Cette nouvelle technologie permet d'avoir une vision spatiale bidimensionnelle de la composition, et de la dynamique des panaches volcaniques, grâce à une haute résolution temporelle et spectrale. Contrairement aux mesures par télédétection dans

l'ultraviolet, les imageurs hyperspectraux infrarouges permettent d'acquérir des images aussi bien de jour que de nuit. Cet avantage est considérable sachant que tous les volcans sont soumis à une alternance du jour et de la nuit au cours de l'année. L'imagerie permet en plus un suivi bidimensionnel des émissions permettant de remonter aux flux d'émission, et leur variabilité, contrairement aux spectromètres qui se limitent à une mesure ponctuelle. Ce suivi, de jour comme de nuit, représente un objectif majeur pour la surveillance opérationnelle de l'activité volcanique.

Cependant, ces imageurs hyperspectraux infrarouges produisent une grande quantité de données, qui sont tridimensionnelles avec deux dimensions spatiales et une dimension spectrale. Ils demandent un traitement rapide et massif, nécessitant d'avoir recours à de nouvelles méthodes de traitements algorithmiques d'apprentissage (classification des spectres des pixels), pour réussir à arriver au suivi des émissions en opérationnel.

Les travaux présentés dans ce manuscrit rentrent dans le cadre de l'évaluation de la capacité de l'imagerie hyperspectrale infrarouge pour suivre et caractériser les flux d'émissions des gaz des panaches volcaniques. Pour caractériser les concentrations d'espèces chimiques à partir de mesures spectrales, il est nécessaire de pouvoir reproduire le transfert radiatif le long de la ligne de visée de l'instrument.

Pour les inversions, l'intérêt s'est porté sur la caractérisation de la composition en dioxyde de soufre (SO_2) présent dans le panache. Cette espèce fait partie de celles émises en grande quantité par les volcans et qui témoigne de l'activité de la chambre magmatique du volcan.

Ainsi, dans le Chapitre 1, après des rappels sur les notions de spectroscopie atmosphérique et de l'interaction rayonnement-matière, le principe des mesures par télédétection est présenté tout en faisant un rapide état des lieux des imageurs hyperspectraux existant, pour le suivi des émissions volcaniques, de même qu'une revue des modèles de transfert radiatif permettant une inversion raie-par-raie.

Dans le Chapitre 2 je présente les mesures effectuées avec l'imageur Hyper-Cam de la société Telops, lors d'une campagne de terrain réalisée au mont Etna (Sicile) en 2015 sur lesquelles mes travaux s'appuient. Je me suis également appuyée sur le modèle de transfert radiatif et d'inversion LARA (*LATMOS Atmospheric Retrieval Algorithm*). Son principe de simulation du transfert radiatif et de l'inversion de données du type Levenberg-Marquardt sont présentés. Enfin, en plus du formalisme du modèle, l'adaptation que j'ai effectuée de ce dernier aux conditions de mesures au limbe de la campagne sera détaillée.

Le Chapitre 3 présente le travail mené pour valider la qualité des spectres calibrés de radiance mesurés par l'Hyper-Cam avec les spectres acquis simultanément avec un spectromètre à transformée de Fourier (FTIR). Puis, un ensemble de tests de sensibilité sur les paramètres caractéristiques d'entrée de l'inversion sera exposé.

Dans le Chapitre 4, les résultats d'inversion des densités de colonnes obliques de SO₂ obtenues avec le modèle LARA, seront évalués via deux études d'inter-comparaison menées à l'aveugle. Elles ont été faites en comparant d'une part, les résultats issus d'un autre modèle de transfert radiatif et d'inversion nommé KOPRA (*Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm*), et d'autre part, les résultats issus du traitement des données d'un autre instrument de télédétection (spectromètre et caméra UV) déployé simultanément lors de la campagne de mesures IMAGETNA.

Le Chapitre 5 s'intéresse au traitement massif (développement de classification des spectres des pixels des images) des données afin de rendre le traitement des données hyperspectrales infrarouges opérationnelles, mais aussi au calcul des flux d'émission de SO₂.

Je présenterai enfin les conclusions et les perspectives de mes travaux de thèse.

CHAPITRE

1

Atmosphère, Transfert Radiatif et
Téledétection

Sommaire

1.1.	Introduction	- 19 -
1.2.	L'atmosphère terrestre.....	- 19 -
1.2.1.	Structure verticale de l'atmosphère	- 19 -
1.2.2.	Composition de l'atmosphère	- 21 -
1.2.3.	Les composés soufrés et particuliers dans l'atmosphère.....	- 22 -
1.3.	Les émissions gazeuses des volcans : origine, composition et impacts	- 23 -
1.3.1.	Composition des panaches volcaniques	- 24 -
1.3.2.	L'origine des gaz présents dans les panaches volcaniques	- 27 -
1.3.3.	L'Etna, un volcan sous surveillance	- 28 -
1.3.3.1.	Les évènements majeurs de l'Etna	- 28 -
1.3.3.2.	Réseaux de surveillance.....	- 30 -
1.3.3.3.	Les émissions de l'Etna	- 32 -
1.4.	Télédétection des composants de l'atmosphère	- 33 -
1.4.1.	La télédétection.....	- 33 -
1.4.1.1.	Le principe de la télédétection.....	- 33 -
1.4.1.2.	Les plateformes et visées de télédétection.....	- 33 -
1.4.2.	La spectroscopie moléculaire atmosphérique	- 34 -
1.4.2.1.	Profil de raie et bandes spectrales.....	- 35 -
1.4.2.2.	Radiance et température de brillance.....	- 37 -
1.4.2.3.	L'interaction rayonnement-matière	- 38 -
1.4.2.4.	L'épaisseur optique.....	- 40 -
1.4.2.5.	Raies d'émissions des composants atmosphériques.....	- 40 -

1.4.3.	L'équation du transfert radiatif	- 42 -
1.4.4.	Les instruments de télédétection des panaches volcaniques	- 44 -
1.4.4.1.	Depuis le sol	- 44 -
1.4.4.2.	Depuis un satellite	- 45 -
1.4.4.3.	Depuis un avion	- 46 -
1.4.5.	Les imageurs hyperspectraux infrarouges	- 48 -
1.4.6.	Les modèles de transfert radiatif	- 50 -
1.5.	Conclusion.....	- 51 -

1.1. Introduction

La caractérisation de la composition de l'atmosphère et son évolution dans le contexte du changement climatique est un enjeu majeur. L'évolution instrumentale dédiée à cette tâche a permis un gain en connaissance considérable. Dans le cadre de l'étude de l'impact des émissions gazeuses naturelles dans l'atmosphère, la part des volcans éveillent l'intérêt de la communauté scientifique depuis des décennies et participe à une meilleure compréhension du système volcan et de ses émissions gazeuses et particulaires. La caractérisation de la composition en gaz et en particules se fait par des mesures *in situ* mais également par des mesures par télédétection, qui se basent sur l'interaction atmosphère-rayonnement électromagnétique. Ces instruments de télédétection permettent d'accéder à la composition de l'atmosphère par des mesures au sol, aéroportées, sous ballon ou encore par satellites pour une vision globale. Ils sont en perpétuelle évolution de même que les outils de traitement associés à ces données.

Dans ce chapitre une description de l'atmosphère terrestre, sa structure, sa composition et les sources d'émissions naturelles et anthropiques de gaz (principalement le SO₂) et particulaire (composés soufrés) sera effectuée. Les émissions des volcans donneront lieu à une partie plus détaillée. Ensuite, le principe des mesures par télédétection, et les instruments couramment utilisés pour la caractérisation de l'atmosphère et des panaches volcaniques, seront présentés en passant par une description de la spectroscopie moléculaire atmosphérique. Enfin, les outils de traitement de données que sont les modèles de transfert radiatif et d'inversion seront introduits. Le but de ce chapitre est de donner un cadre général aux différentes thématiques et d'adresser les différentes questions scientifiques traitées dans les travaux présentés dans ce manuscrit.

1.2. L'atmosphère terrestre

1.2.1. Structure verticale de l'atmosphère

L'atmosphère terrestre est constituée de plusieurs couches gazeuses d'épaisseur et de composition différentes. Ces couches se caractérisent par des gradients de température différents en fonction de la verticale comme on peut le voir sur la Figure 1.1.

En partant du sol nous aurons d'abord la **troposphère**. Elle se caractérise par un gradient de température négatif jusqu'à la tropopause où se situe le point froid de la couche séparant la troposphère de la stratosphère. L'altitude maximale de la tropopause varie suivant la saison, les conditions météorologiques et la latitude. Elle se trouvera à environ 8 km aux pôles et environ 18 km au niveau de l'équateur.

La **stratosphère** débute par une couche isotherme sur une dizaine de kilomètres et voit ensuite sa température croître avec l'altitude. La stratopause, couche séparant la stratosphère de la mésosphère, se situe à environ 50 km d'altitude. L'augmentation de la température dans cette couche de l'atmosphère est liée à l'absorption du rayonnement ultraviolet du soleil.

La **mésosphère** voit sa température diminuer avec l'altitude à cause de l'émission infrarouge du dioxyde de carbone (CO₂), jusqu'à une altitude d'environ 85 km où se trouve la mésopause.

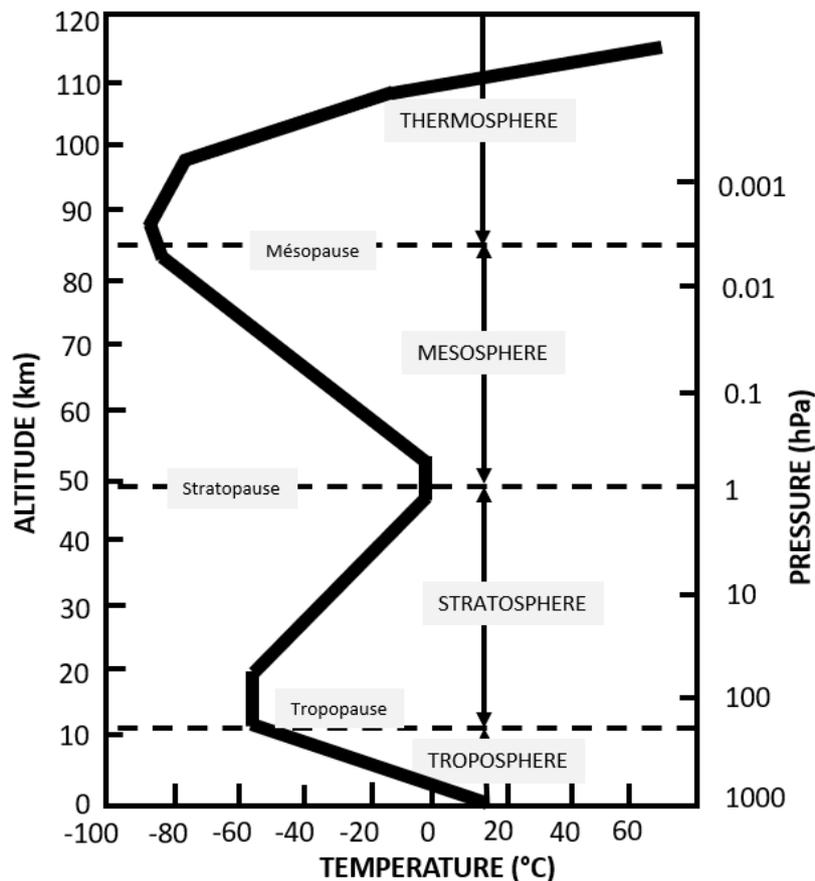


Figure 1.1 – Evolution de la température selon les couches verticales de l'atmosphère en fonction de l'altitude et de la pression (D'après (Seinfeld, J.H. and Pandis, S.N., 2006)).

La dernière couche de l'atmosphère est la **thermosphère** où la température va à nouveau augmenter avec l'altitude et sera très influencée par l'activité solaire. La densité de l'air est si

faible (< 0.01 hPa) dans cette couche que l'on peut la considérer comme étant le début de l'espace.

1.2.2. Composition de l'atmosphère

Le Tableau 1.1 liste les principaux gaz constituant l'air sec de l'atmosphère. Le diazote (N₂) et le dioxygène (O₂) représentent à eux seuls près de 99% du volume de l'air sec. Les autres gaz ne sont présents qu'à l'état de traces. Cependant, leur faible concentration ne les empêche pas d'avoir un rôle important dans les processus physico-chimiques atmosphériques. Bien que pouvant subir quelques fluctuations, la concentration de ces gaz, à l'exception de l'ozone (O₃), reste relativement stable et homogène.

Outre la composition en gaz présentée dans le Tableau 1.1, l'atmosphère terrestre est également constituée de vapeur d'eau (H₂O). Sa concentration varie en fonction des zones géographiques, de la température et donc des saisons (Genio et al., 1994; Randel et al., 2001). L'eau peut se présenter sous différents états, liquide, solide ou gazeux. La vapeur d'eau de l'atmosphère se trouve à 99% dans la troposphère.

Gaz constituants de l'air sec	Pourcentages en volume
Azote (N ₂)	78.09
Dioxygène (O ₂)	20.95
Argon (A)	0.93
Dioxyde de Carbone (CO ₂)	0.035
Néon (Ne)	1.8 10 ⁻³
Hélium (He)	5.24 10 ⁻⁴
Krypton (Kr)	1.0 10 ⁻⁴
Hydrogène (H ₂)	5.0 10 ⁻⁵
Xénon (Xe)	8.0 10 ⁻⁶
Ozone (O ₃)	1.0 10 ⁻⁶
Radon (Rn)	6.0 10 ⁻¹⁸

Tableau 1.1 – Composition de l'air sec tirée de [Météo France](#).

1.2.3. Les composés soufrés et particuliers dans l'atmosphère

D'autres gaz, présents en faibles quantités dans l'atmosphère jouent un rôle majeur dans la chimie atmosphérique et exercent une influence sur le bilan radiatif de façon directe ou indirecte (Delmas et al., 2005; Robock, 2000). C'est le cas des composés soufrés. Les différentes sources d'émission d'espèces soufrées, et leur masse par an, sont reportées dans le Tableau 1.2. On peut voir que les trois principales sources d'émission sont, dans l'ordre, d'origine anthropique avec 78.1 Tg/an, d'origine océanique avec 15.4 Tg/an et d'origine volcanique avec 9.4 Tg/an. Une part non négligeable, de près de 9%, des injections de composés soufrés dans l'atmosphère provient donc de l'activité volcanique (Bates et al., 1992). Ces composés soufrés d'origine volcanique sont principalement du dioxyde de soufre (SO₂) ~15-21 Tg/an et du sulfure d'hydrogène (H₂S) avec 1-37 Tg/an (Halmer et al., 2002).

	Océanique	Terrestre	Volcanique	Biomasse	Anthropogénique
Hémisphère Nord	6.4	0.2	6.7	1.2	70.4
Hémisphère Sud	9.0	0.1	2.7	1.0	7.7
Global	15.4	0.4	9.4	2.2	78.1

Tableau 1.2 – Sources de soufre dans l'atmosphère (exprimées en téragrammes par an) (Bates et al., 1992).

D'autres éléments, qui font partie intégrante de la composition de l'atmosphère et donnent lieu à des réactions chimiques, sont les aérosols solides ou liquides. Il existe des aérosols d'origine naturelle, représentant 94% des aérosols atmosphériques, comme le pollen, les grains de sable, les cendres volcaniques mis en suspension dans l'atmosphère grâce à la dynamique de l'atmosphère et 6% d'aérosols d'origine anthropique. Nous allons détailler les sources d'émission d'origine volcanique, ainsi que leurs impacts dans la section suivante. La part d'émission de composés soufrés d'origine anthropique provenant de rejets industriels, de la combustion ou encore du transport sont encadrés depuis 2005 par le protocole de Göteborg¹,

¹ Le protocole de Göteborg, relatif à la réduction de l'acidification, de l'eutrophisation et de l'ozone troposphérique fixe des plafonds d'émission nationaux pour 2010 et jusqu'en 2020. Les émissions concernent quatre polluants : le dioxyde de soufre (SO₂), les oxydes d'azote (NO_x), les composés organiques volatils (COV) et l'ammoniac (NH₃).

validé en décembre 1999. En ratifiant ce protocole, les pays européens concernés se sont engagés à réduire de près de 60% leurs émissions de SO₂ avant 2020 en se basant sur leurs données d'émission de 2005.

1.3. Les émissions gazeuses des volcans : origine, composition et impacts

Selon que ce soit après une éruption de faible ou de grande intensité, ou lié au dégazage passif des volcans, l'impact d'un panache volcanique sera différent à l'échelle locale, régionale ou globale. Comme on peut le voir sur le Figure 1.2, il faut distinguer les impacts du volcanisme selon que le panache atteigne la stratosphère ou soit confiné à la troposphère. Ceci est directement lié au niveau de l'activité volcanique : passive ou explosive.

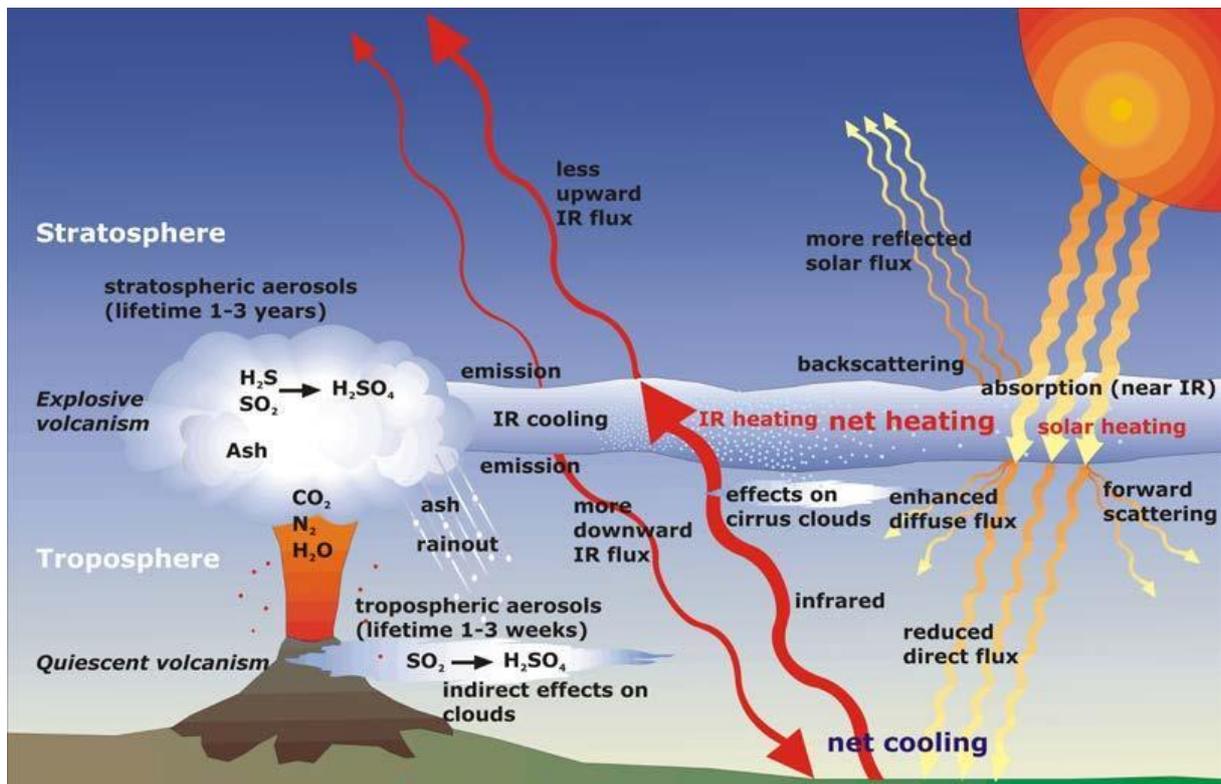


Figure 1.2 – Schématisation de l'impact du volcanisme passif et explosif sur le bilan radiatif de l'atmosphère terrestre ((Fischer, 2005) d'après (Robock, 2000)).

Les éruptions volcaniques explosives, avec un fort potentiel d'injection de gaz et d'aérosols dans la stratosphère, sont des événements qui marquent les esprits et ont donné lieu à de nombreuses études (Graft et al., 1993; Hansen et al., 1992). Certaines éruptions majeures

ont eu un impact sur le climat lorsque gaz et particules ont été injectés jusque dans la stratosphère. La durée de vie des aérosols volcaniques injectés dans la stratosphère, allant de 1 à 3 ans, fait qu'ils peuvent se disperser à grande échelle et finissent par provoquer une diminution du rayonnement solaire à la surface de la Terre. Cela provoque un refroidissement dans la troposphère, mesuré sur les années suivant l'éruption.

Ce phénomène s'est produit à la suite de l'injection dans la stratosphère de cendres et de gouttelettes d'acide sulfurique, après l'éruption du volcan El Chichón, en 1982 au Mexique (Labitzke et al., 1983), ou encore du mont Pinatubo, aux Philippines en 1991 (Hansen et al., 1992). On appelle d'ailleurs cela l'hiver volcanique ou forçage volcanique. En plus de l'effet sur les températures atmosphériques, des études de modélisation récentes ont montré l'importance du forçage des volcans sur l'« Oscillation Atlantique Multidécennale » et donc le lien entre variation atmosphérique (température, pluviométrie, ...) et température de surface de la mer (Birkel et al., 2018; Mann et al., 2021). Ces études confirment l'intérêt de la bonne caractérisation des émissions volcaniques pour une modélisation robuste de la part représentée par les volcans sur le climat passé et actuel.

Les effets des éruptions explosives peuvent aussi être plus courts dans le temps, mais avec un impact direct sur le citoyen et l'économie avec le blocage d'une partie du trafic aérien, pouvant durer plusieurs semaines, comme suite à l'éruption du mont Pinatubo (Casadevall et al., 1996) ou plus récemment dans l'hémisphère Nord entre l'Europe et l'Amérique du Nord après l'éruption du volcan islandais Eyjafjallajökull en 2010 (Gertisser, 2010, Article *le Monde* [1]).

Lorsque les injections de gaz et de particules se limitent à la troposphère, dans le cas d'un dégazage passif ou d'une éruption de petite ampleur, les conséquences sont plus locales ou régionales et les gaz et particules sont éliminés par dépôts humide ou sec. Les effets peuvent se caractériser par des pluies acides, des problèmes de croissance de la végétation située au voisinage des volcans, mais aussi des problèmes respiratoires, tels que l'asthme pour les populations locales. La durée de vie des aérosols volcaniques troposphériques étant de 1 à 3 semaines, les impacts se limitent à une échelle locale ou régionale.

1.3.1. Composition des panaches volcaniques

Lors des éruptions volcaniques, différents gaz, aérosols, roches sont projetés dans l'atmosphère en concentration variable selon l'importance de l'éruption et le type de volcan impliqué. Néanmoins, lorsqu'ils sont dans une phase non éruptive, les volcans rejettent des gaz

et des particules qui témoignent de l'activité variable au sein de la chambre magmatique. On appelle également cela le dégazage passif, qui peut potentiellement avoir des conséquences de l'échelle locale à l'échelle régionale.

<i>Gas</i>	<i>Emission rate (Tg yr⁻¹)</i>	<i>Reference</i>
H ₂	0.24	Cadle (1980)
H ₂ O	~700*	Stoiber (1995)
HF	0.7–8.6 0.06–6	Halmer <i>et al.</i> (2002) Symonds <i>et al.</i> (1988)
HBr	2.6–43.2 × 10 ⁻³ 3.3 × 10 ⁻³	Halmer <i>et al.</i> (2002) Stoiber <i>et al.</i> (1983)
HCl	1.2–170 0.4–11	Halmer <i>et al.</i> (2002) Stoiber <i>et al.</i> (1987)
H ₂ S	1.5–37.1 0.21 2.8	Halmer <i>et al.</i> (2002) Bandy <i>et al.</i> (1982) Andres and Kasgnoc (1998)
SO ₂	7.5–10.5 7.8 10.0 13.0 13.4 15.2 18.7 20.0	Halmer <i>et al.</i> (2002) Cadle (1975) Stoiber and Jepsen (1973) Bluth <i>et al.</i> (1993) Andres and Kasgnoc (1998) Berresheim and Jaeschke (1983) Stoiber <i>et al.</i> (1987) Graf <i>et al.</i> (1997)
OCS	10 ⁻⁴ –0.3 0.022 6 × 10 ⁻³ –0.09 0.3	Halmer <i>et al.</i> (2002) Bandy <i>et al.</i> (1982) Belviso <i>et al.</i> (1986) Andres and Kasgnoc (1998)
CS ₂	10 ⁻⁵ –4 × 10 ⁻² 0.022 0.3	Halmer <i>et al.</i> (2002) Bandy <i>et al.</i> (1982) Andres and Kasgnoc (1998)
CO ₂	100–500 65	Gerlach (1991) Williams <i>et al.</i> (1992)
CO	0.02	Cadle (1980)
CH ₄	0.34	Cadle (1980)
BrO	0.03 (Br)	Bobrowski <i>et al.</i> (2003)

* Best approximation.

Tableau 1.3 – Estimation actuelle des flux d'émissions des principaux gaz volcaniques dans l'atmosphère. (tiré du Chapitre 6 de « *Monitoring volcanoes in the North Pacific* » de (Dean and Dehn, 2015)).

Les principaux flux des gaz émis par les volcans sont présentés dans le Tableau 1.3.. L'émission de ces gaz par les volcans, dans la basse troposphère, joue un rôle non négligeable sur la chimie atmosphérique (Dean and Dehn, 2015). Dans la troposphère, les particules ont

généralement une durée de vie de l'ordre d'une semaine. Lorsqu'elles sont injectées dans la stratosphère, ces mêmes particules peuvent avoir une durée de vie de l'ordre d'une année. (Stephens and Tsay, 1990). Un panache volcanique est principalement composé de vapeur d'eau, dioxyde de carbone, dioxyde de soufre, de cendres et de particules soufrées.

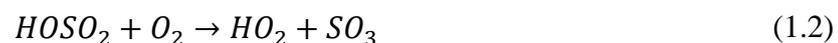
Le SO₂ joue un rôle important dans la chimie atmosphérique étant directement liée à la quantité de particules soufrées présentes dans l'atmosphère. Les particules soufrées sont très réfléchissantes et influencent de manière directe, ou indirecte, le bilan radiatif terrestre. L'intérêt de quantifier la concentration en SO₂ rejetée par les volcans est donc majeur. Le SO₂ a une faible concentration dans l'atmosphère terrestre, avec une concentration moyenne de ~ 1 ppbv, dans le ciel clair (Breeding et al., 1973) alors que des concentrations allant jusqu'à 10.4 ppmv de SO₂ ont été mesurées en septembre 2011 à environ 20 km du sommet de l'Etna, lors d'une campagne aéroportée (Voigt et al., 2014). Cela fait du SO₂ une espèce idéale pour le suivi des émissions volcaniques, même passives, et un traceur de la présence d'un panache volcanique.

Les volcans vont également émettre des aérosols que l'on peut classer en deux catégories : les aérosols d'émission primaire, qui sont principalement des cendres, et les aérosols de formation secondaire, résultats par exemple de la conversion gaz-particule par condensation du SO₂ et de la vapeur d'eau, amenant à la production de composés soufrés. En période d'activité passive, les émissions en aérosols primaires des volcans sont très faibles et résultent de la remobilisation d'éléments rocheux présents dans le conduit volcanique ou le cratère. Les aérosols de formation secondaire proviennent majoritairement de l'oxydation et de l'hydratation du SO₂ présent en quantité importante dans les panaches volcaniques.

Le produit de l'oxydation et de l'hydratation du SO₂ est l'acide sulfurique (H₂SO₄). Dans la phase gazeuse, le SO₂ va réagir avec le radical OH (hydroxyle) (Stockwell and Calvert, 1983):



À la suite de cette réaction, se produit la régénération du radical HO₂ (hydroperoxyde) :



La présence de vapeur d'eau dans le milieu convertira le trioxyde de soufre (SO₃) en acide sulfurique :



L'acide sulfurique est ensuite éliminé de l'atmosphère par des processus de dépôt sec ou humide. La durée de vie du SO_2 dans l'atmosphère est de l'ordre de deux semaines dans la troposphère mais peut se réduire à quelques jours ou quelques heures lorsqu'il y a une réaction hétérogène avec des gouttelettes d'eau (von Glasow et al., 2009). Ces réactions chimiques rapides peuvent alors influencer sur les mesures d'émission de SO_2 faites en aval des volcans (McGonigle et al., 2004). La durée de vie est également dépendante de l'ensoleillement, de la température et du taux d'humidité relatif. Toujours dans le cas d'émissions de SO_2 par les volcans, ces paramètres ont une influence considérable sur le taux de conversion de SO_2 en aérosols sulfatés (Eatough et al., 1994).

Même si je n'entrerai pas dans les détails ici, les volcans émettent d'autres espèces soufrées telles que l'oxysulfure de carbone (OCS), le disulfure de carbone (CS_2) ou le sulfure d'hydrogène (H_2S).

Quant aux émissions d'acide bromhydrique (HBr) et d'acide chlorhydrique (HCl), après seulement quelques minutes, les aérosols émis dans les panaches donnent lieu à leur conversion en composés halogénés hautement réactifs qui contribuent à la destruction de l'ozone sous le vent du panache (Roberts et al., 2018).

1.3.2. L'origine des gaz présents dans les panaches volcaniques

Comme il l'a déjà été dit, la composition et la concentration des gaz émis par les volcans sont des indicateurs de l'activité de la chambre magmatique. En effet, le magma contient de nombreuses espèces chimiques dissoutes de par la haute pression exercée par la croûte terrestre. A mesure que le magma monte dans les conduits volcaniques, la pression va diminuer et ces espèces chimiques peuvent commencer à s'exsolver du magma et former des bulles de gaz. Chacune des espèces aura des propriétés de solubilité dans le magma qui lui seront propres et elles s'exsolveront à des profondeurs différentes. Le SO_2 étant une espèce très soluble dans le magma il se dissout proche de la surface. Le CO_2 est moins soluble et sera donc dissout à des profondeurs plus grandes.

Les flux constants de gaz, de plusieurs kilotonnes par jour, pendant plusieurs mois lors de phases d'activités passives de certains volcans, peuvent s'expliquer selon deux approches.

Si la profondeur à laquelle la séparation gaz-magma s'effectue est faible, le flux dépend de la vitesse de transport de la matière du réservoir de la chambre magmatique vers les faibles profondeurs. Lorsque cette séparation gaz-magma se produit à des profondeurs plus importantes, les flux dépendront de la vitesse de remontée des bulles dans les conduits remplis de magma ou de la perméabilité des parois (Girona et al., 2014).

Une injection de magma frais, à faible profondeur, vient augmenter la concentration en SO₂, mesurée en sortie du cratère. Une diminution des concentrations de SO₂ et des autres gaz en sortie, est le signe du bouchage du conduit volcanique pouvant représenter les prémices d'une éruption explosive (Galle et al., 2010; Dean and Dehn, 2015). Les fontaines de lave sont des jets de gaz pouvant atteindre plusieurs centaines de mètres de haut, propulsant des fragments de lave à la suite du relâchement d'une poche de gaz bloquée en profondeur (Allard et al., 2005).

1.3.3. L'Etna, un volcan sous surveillance

L'Etna est un stratovolcan lieu d'éruptions effusives, avec des coulées de lave très fluides, mais aussi explosives de type strombolien. C'est le plus grand volcan actif d'Europe et le plus grand émetteur de composés volatils volcaniques dans l'atmosphère, au niveau mondial, (Allard, 1997) avec un dégazage passif en continu. A titre d'exemple, le flux moyen de SO₂ émis par l'Etna correspond à la totalité des émissions anthropogéniques de SO₂ de la France (Hansell and Oppenheimer, 2004). Cela fait de l'Etna un volcan très étudié et instrumenté, permettant de suivre l'évolution de ses émissions et de prévenir ses éruptions. Nombreuses études s'intéressent également à l'impact des émissions de l'Etna sur le bassin Méditerranéen (Sellitto et al., 2017, 2020).

1.3.3.1. Les événements majeurs de l'Etna

Les premières traces d'écrits faisant référence aux éruptions de l'Etna proviennent d'auteurs et poètes Grecques et Romains, à partir du V^{ème} siècle avant J.C.. En 1169, une éruption détruisit une grande partie de la ville de Catane, dont sa cathédrale. Une autre, en 1185, causa la mort de près de 15 000 personnes, tandis que l'on retient celle de 1665 par l'étendue de la lave couvrant 92 millions de mètres carrés.

L'éruption de mars 1669 est considérée comme la plus importante ayant eu lieu au dernier millénaire, et probablement la pire de l'histoire de l'Etna. Elle eut lieu sur la face Sud-

Est de l'Etna, où la densité de population était très élevée. Quarante villes et villages furent partiellement ou entièrement détruits, avec des coulées de lave sur près de 15 km. Une partie de la ville de Catane fut même recouverte par les coulées (Hyde, 1916). L'Etna connu 19 éruptions au cours du XIX^{ème} siècle. L'idée d'implanter un observatoire volcanologique sur l'Etna est venue de Orazio Silvestri en 1865 (Figure 1.3). Sa construction prit plusieurs années et se termina en 1882. Il fut ensuite détruit lors de l'éruption d'avril 1971.

En 1977, Letterio Villari, directeur de l'Institut international de volcanologie du CNR (Conseil National de Recherche) de Catane, projeta de construire un nouvel observatoire. L'observatoire Pizzi Deneri fut alors construit à l'été 1977 sur le côté nord de l'Etna dans un endroit jugé sûr par rapport aux risques de coulées de lave.

L'activité de l'Etna fut plus intense au cours du XX^{ème} siècle avec près de 80 éruptions qui en fait un des volcans les plus actifs du monde actuellement.

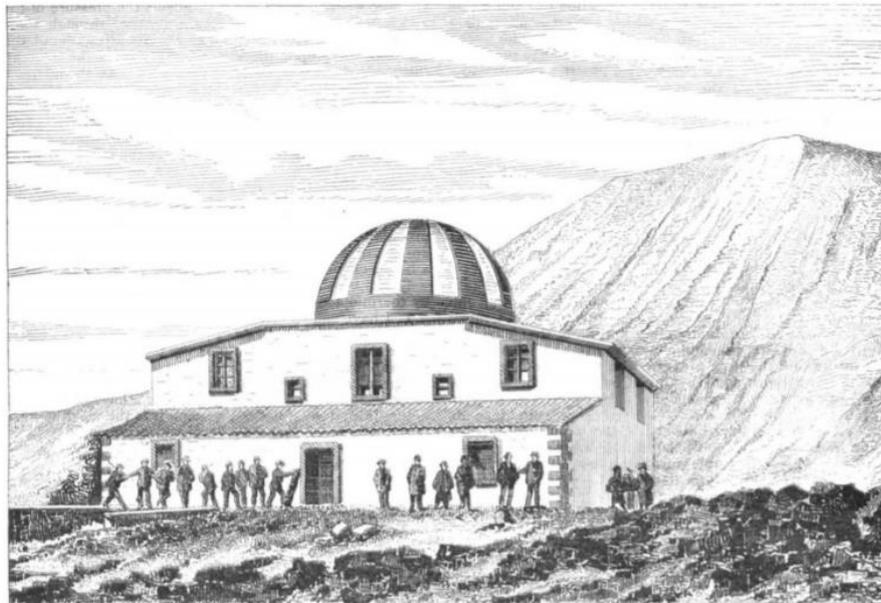


Figure 1.3 – Illustration représentant le premier observatoire de l'Etna dont la construction fut terminée en 1882 (*Nature*, 1881 [2]).

Malgré la fréquence des éruptions dans l'histoire de l'Etna, une étude statistique de son activité éruptive, effectuée avec des données commençant en 1610, a montré qu'il n'existait pas de cyclicité. Cependant, l'analyse des débits volumétriques de lave montre une forte augmentation de l'activité depuis l'éruption de 1971 qui correspond à la formation du cratère sud-est (Smethurst et al., 2009).

1.3.3.2. Réseaux de surveillance

L'Institut National de Géophysique et de Volcanologie (INGV, Italie) a développé et déployé différents réseaux, étendus et variés, de mesures permettant la surveillance de l'activité volcanique de l'Etna et la prévention des risques liés à une activité éruptive :

- *Sismicité*

Plusieurs capteurs de sismicité sont disséminés sur les flancs de l'Etna dont 6 se trouvent dans un rayon de 6 km autour du sommet de l'Etna. ([Réseau sismicité INGV](#))

- *Flux d'émissions de SO₂*

En 2004, le réseau FLAME (*FLux Automatic MEasurment*) composé de cinq spectromètres à balayage a été mis en place autour de l'Etna par l'INGV (Figure 1.4, (Salerno et al., 2009a)). Il permet d'obtenir les flux d'émission de SO₂ en continu et en temps réel depuis un emplacement fixe.

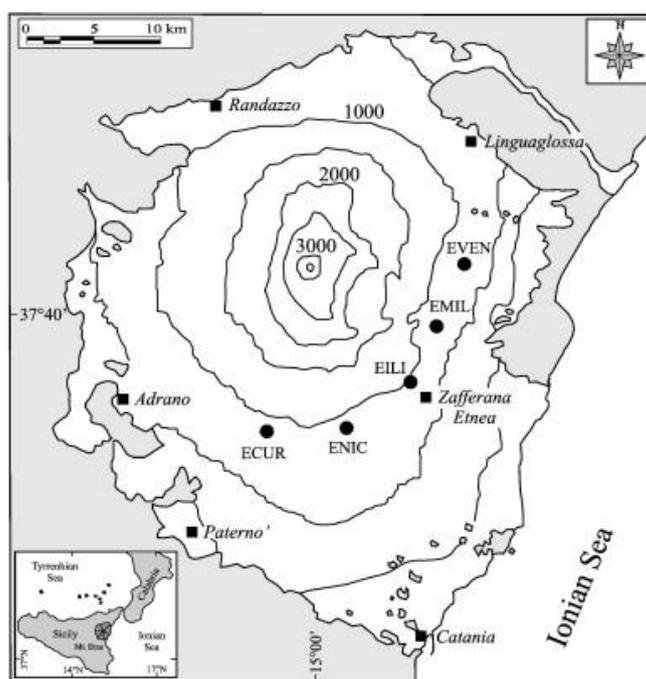


Figure 1.4 – Carte de l'Etna avec les différents emplacements des cinq spectromètres UV du réseau FLAME représentés par un point noir. (Figure extraite de (Salerno et al., 2009a))

- *Déformation des sols*

La déformation des sols est surveillée à l'aide de 4 dilatomètres installés dans des puits forés allant à des profondeurs comprises entre 120 et 200 mètres. Trois sont installés à l'ouest

du volcan près du Mont Ruvolo, du Mont Egypt et du Mont Scavo et le quatrième se trouve à proximité de l'observatoire volcanologique Pizzi Deneri à l'est du volcan.

- *Géochimie*

Outre les flux de SO₂ émis par l'Etna, il existe trois autres réseaux de surveillance géochimique à l'Etna : *Etna Acque* qui mesure le CO₂ dissous dans les eaux souterraines, *Etnagas* qui mesure les émissions de CO₂ au niveau du sol et enfin *Etna Plume* qui mesure le rapport C/S (espèces carbonées sur espèces sulfurées).

- *Caméras*

Un ensemble de 14 caméras (thermiques ou visibles) permet de suivre en continu l'activité du volcan.

- *Activité thermique*

L'activité thermique de l'Etna est suivie à l'aide d'un traitement d'images satellitaires multispectrales acquises par les capteurs SEVIRI (*Spinning Enhanced Visible and InfraRed Imager*), MODIS (*Moderate-Resolution Imaging Spectroradiometer*), SENTINEL-3 SLSTR (*Sea and Land Surface Temperature Radiometer*) et VIIRS (*Visible Infrared Imaging Radiometer Suite*).

Réseau de surveillance	Nombre total de stations
Sismologie	29
Déformation des sols	4
Caméras (thermique et visible)	14
Géochimie – CO ₂ dissous (réseau <i>Etna Acque</i>)	10
Géochimie – CO ₂ (réseau <i>Etnagas</i>)	14
Infrasons	10
Flux de SO ₂ FLAME-Etna	10
Géochimie C/S (réseau <i>Etna Plume</i>)	1

Tableau 1.4 – *Les différents réseaux de surveillance de l'Etna.*

Le site internet de l'INGV répertorie les communiqués hebdomadaires faisant le bilan des données collectées par les différents réseaux de surveillance de l'Etna. En plus du réseau

d'instrumentation pour la surveillance de l'Etna, l'INGV édite un « Avis de l'Observatoire des Volcans pour l'Aviation » (VONA) émis lors des épisodes éruptifs de l'Etna à destination des contrôleurs aériens, pilotes ou répartiteurs pour les informer sur les risques de formation de nuages de cendre pouvant perturber le trafic aérien ([VONA](#)).

1.3.3.3. Les émissions de l'Etna

Du fait de leurs fortes concentrations de fond dans l'atmosphère, les flux de H₂O et de CO₂ des volcans sont plus complexes à mesurer que ceux de SO₂ et une certaine lacune existe dans les connaissances de ces émissions. Certaines études sont tout de même parvenues à quantifier les flux de H₂O et de CO₂ de l'Etna (Aiuppa et al., 2008). De cette étude ressort une valeur de flux de 21 000 tonnes de volatils émis par l'Etna par jour dont 50 à 70% de ces volatils sont du H₂O. Un flux moyen de l'Etna a été estimé à 16.4 kt/j (Burton et al., 2013).

L'estimation de la masse totale de composés soufrés gazeux émis par l'Etna est de $0,7 \times 10^6$ tonnes annuelle, ce qui équivaut à environ dix fois les émissions anthropiques de soufre dans la même zone (Graf et al., 1997). Lorsque l'Etna est en éruption, les flux d'émission de SO₂ se situent autour de 10 à 25 kt/j (Caltabiano et al., 1994), contre 0.6 à 2 kt/j en phase de dégazage passif (Aiuppa et al., 2008; Roberts et al., 2018). L'altitude des cratères de l'Etna allant jusqu'à 3300 m, leurs émissions gagnent en grande partie la troposphère libre où la durée de vie du SO₂ est plus importante que dans la couche limite (Stevenson et al., 2003).

Plusieurs études récentes ont cherché à caractériser la composition en aérosols du panache de l'Etna. Une étude conduite par A.G. Allen (2006) (Allen et al., 2006) a permis de caractériser la distribution en taille et les différentes sources d'émission des aérosols de l'Etna. Différentes gammes de tailles d'aérosols ont été trouvées. Une gamme de diamètres de particules entre 0.4 et 0.6 µm avec une concentration corrélée aux émissions de SO₂ de l'Etna et une gamme de diamètres entre 2 et 7.5 µm caractéristique d'aérosols multimodaux. Le projet EPL-RADIO, rapporté par Sellitto et al. (2020) (Sellitto et al., 2020), avait pour objectif d'obtenir une estimation de l'impact radiatif local induit par un panache volcanique de dégazage passif, tel que celui de l'Etna, ainsi qu'une meilleure connaissance de la dispersion et des impacts de la physico-chimie des aérosols, émis selon leur gamme de taille dans la région méditerranéenne.

1.4. Télédétection des composants de l'atmosphère

1.4.1. La télédétection

1.4.1.1. Le principe de la télédétection

La télédétection consiste à mesurer à distance une variable donnée. La télédétection peut être active ou passive. Lorsqu'elle est active, comme pour les mesures Radar ou Lidar, l'instrument envoie un signal et capture les différentes interactions que subit ce signal dans l'environnement qu'il traverse. Quant à la télédétection passive, elle permet de mesurer le rayonnement d'une source ponctuelle (le soleil, une étoile, ...) ou étendue (atmosphère, surface). Différentes techniques et instruments existent et les usages sont tout aussi variés.

1.4.1.2. Les plateformes et visées de télédétection

Dans l'atmosphère terrestre, les processus chimiques, dynamiques et radiatifs vont de l'échelle locale à l'échelle globale. Pour cela différentes plateformes existent pour sonder l'atmosphère à ces différentes échelles. Les plateformes les plus répandues et connues sont les satellites, permettant des mesures à l'échelle globale et à long terme. Il existe aussi des plateformes sous ballons stratosphériques, fusées, drones, ou à bord d'avions utilisés lors de campagnes dédiées à des mesures à l'échelle locale et régionale, et enfin des plateformes au sol pour des mesures à l'échelle locale.

Tout comme il existe différentes plateformes, pour implanter un instrument de mesures à distance, il existe différentes visées en télédétection atmosphérique, les principales étant : vers le haut, au nadir et au limbe. La visée au nadir vise forcément la surface de la Terre et la visée au limbe pour laquelle le rayonnement restera confiné aux couches de l'atmosphère n'atteindra pas la surface de la Terre. La Figure 1.5 présente des exemples des différentes visées pour le cas de mesures par télédétection d'un panache volcanique. Une autre configuration consiste à placer une source de rayonnement artificielle (lampe infrarouge par exemple) de l'autre côté de la scène à mesurer comme représenté par la ligne hachurée en bleu sur la Figure 1.5.

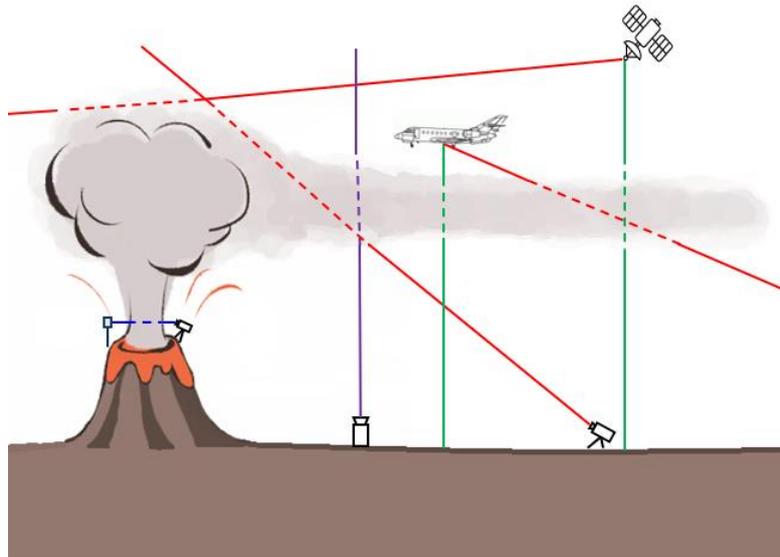


Figure 1.5 – Exemples de visées pour les mesures en télédétection dans le cas de panaches volcaniques : au nadir en vert, au limbe en rouge, vers le haut violet et avec une source de rayonnement artificielle en bleu, à partir d'instruments sur différentes plateformes : satellite, avion ou au sol.

1.4.2. La spectroscopie moléculaire atmosphérique

Le rayonnement électromagnétique se définit à la fois par sa période spatiale, on parlera alors de longueur d'onde λ que nous exprimons en μm , que par sa fréquence temporelle ν , exprimée en Hz (où c représente la vitesse de la lumière égale à $3 \times 10^8 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ dans le vide).

$$\nu \text{ (Hz)} = \frac{c \text{ (m}\cdot\text{s}^{-1}\text{)}}{\lambda \text{ (}\mu\text{m)}} \quad (1.4)$$

L'onde émise peut aussi se définir par sa fréquence spatiale, que l'on appellera nombre d'onde notée $\tilde{\nu}$ exprimée en cm^{-1} , qui est couramment utilisée par les spectroscopistes :

$$\tilde{\nu} \text{ (cm}^{-1}\text{)} = \frac{10^4}{\lambda \text{ (}\mu\text{m)}} \quad (1.5)$$

L'interaction du rayonnement électromagnétique avec des atomes, des molécules ou des particules se caractérise par un spectre dont l'intensité variera selon la valeur de nombre d'onde.

Cette variation suit l'expression des quanta d'énergies émises et absorbées :

$$E = h \cdot c \cdot \tilde{\nu} = \frac{h \cdot c}{\lambda} \quad (1.6)$$

où h est la constante de Planck.

1.4.2.1. Profil de raie et bandes spectrales

Dans la théorie, un paquet d'onde issu du changement d'état d'énergie d'un atome ou d'une molécule (constituant une onde électromagnétique) est monochromatique. Cela signifie que la densité spectrale d'énergie de l'onde ne possède qu'une seule longueur d'onde. Or ce n'est pas le cas dans la réalité dès que l'on parle de phénomènes d'émission ou d'absorption.

La forme naturelle d'une raie, résultat du principe d'incertitude de Heisenberg, est modifiée par deux éléments :

1) Les collisions des molécules sur le chemin de l'onde qui provoquent des modifications de niveaux d'énergie, donnent un profil de Lorentz.

$$I_L(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0, T) = \frac{1}{\pi} \frac{\Gamma_L}{(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0 - \Delta_L)^2 + \Gamma_L^2} \quad (1.7)$$

Avec :

- I_L : le profil de Lorentz,
- Γ_L : la demi-largeur à mi-hauteur du profil de Lorentz,
- Δ_L : le déplacement de la raie par collision (effet de pression),
- $\tilde{\nu}_0$: le nombre d'onde à laquelle la transition est observée.

2) La vitesse de l'agitation thermique des molécules, aussi appelée effet Doppler, sur le rayonnement conduit à un profil Gaussien.

$$I_D(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0, T) = \frac{1}{\Gamma_D} \sqrt{\frac{\ln(2)}{\pi}} \exp \left[-\ln(2) \left(\frac{\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0}{\Gamma_D} \right)^2 \right] \quad (1.8)$$

Avec :

- I_D : le profil de Doppler,
- Γ_D : la demi-largeur à mi-hauteur du profil Doppler.

Lorsque l'onde est confrontée aux deux effets, la raie prend alors la forme d'un profil de Voigt, qui est la convolution du profil de Doppler avec le profil de Lorentz.

$$I_V(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0, T) = I_D(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0, T) \otimes I_L(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0, T) \quad (1.9)$$

Avec : I_V le profil de Voigt.

Les différentes formes de raies sont présentées dans la Figure 1.6.

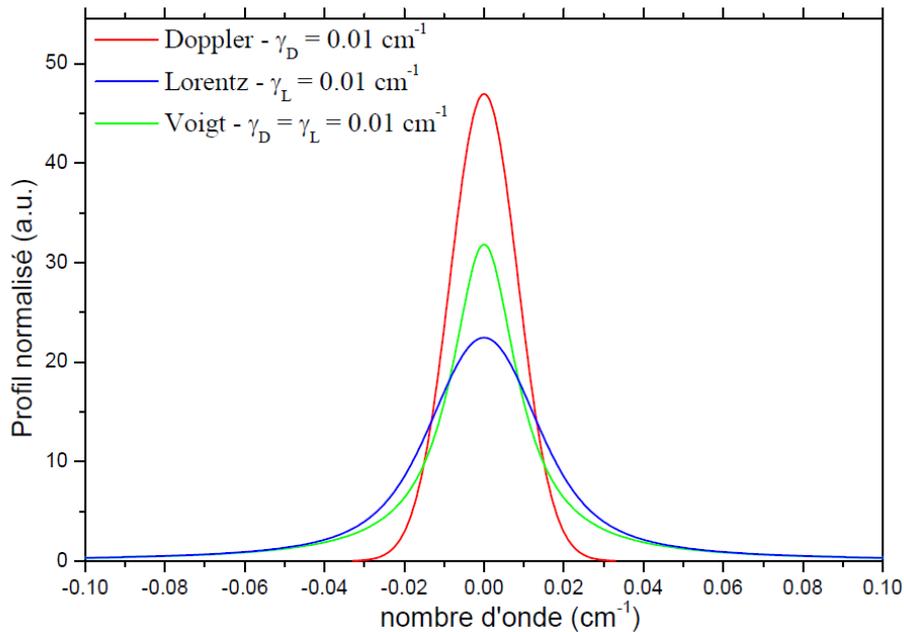


Figure 1.6 – Représentation des trois différents profils de raie : Doppler, Lorentz et Voigt (*Cours de transfert radiatif*, S. Payan).

Selon la région spectrale, les transitions radiatives diffèrent, ainsi le rayonnement électromagnétique est décomposé en plusieurs bandes plus ou moins larges, comme on peut le voir sur la Figure 1.7. Chaque bande a un processus radiatif moléculaire ou atomique bien particulier.

Dans ce manuscrit, nous nous intéresserons principalement aux bandes spectrales suivantes :

- Les domaines spectraux du visible (Vis) et de l'ultra-violet (UV), où l'interaction rayonnement-matière est principalement liée aux transitions électroniques.
- L'infrarouge (IR), qui est un domaine spectral où l'on observe majoritairement des transitions de vibration-rotation. Les spectres d'absorption de vibration-rotation sont formés de bandes caractéristiques de transitions vibrationnelles. Les raies constituant chaque bande sont associées aux transitions de vibration-rotation permises. Le

rayonnement infrarouge se décompose en plusieurs parties : la proche infrarouge ((0,7–1) à 2,5 μm), l'infrarouge moyen (2,5 à (25–40) μm) et l'infrarouge lointain ((25–40) à (200–350) μm). L'infrarouge thermique se situe à cheval sur l'infrarouge moyen et l'infrarouge lointain. Il renvoie à la température de surface d'un corps (aux températures terrestres).

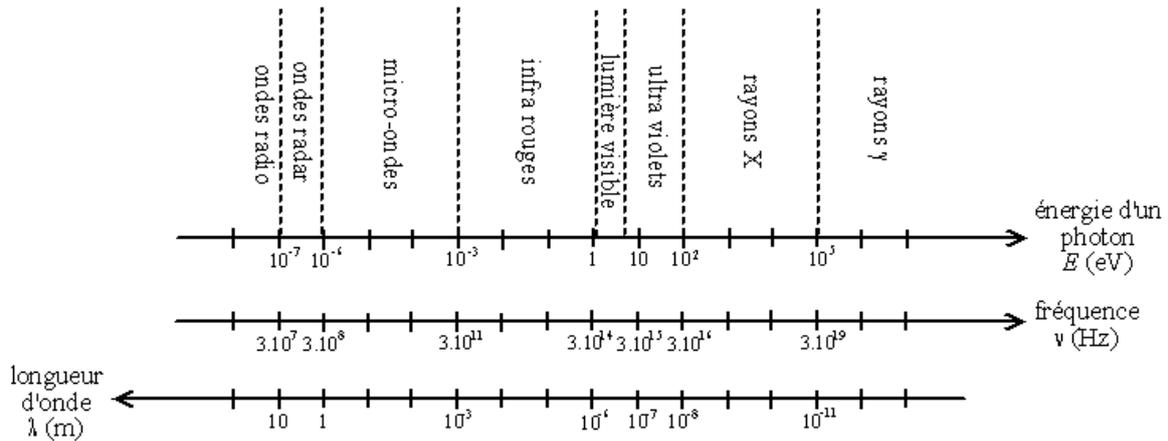


Figure 1.7 – Bandes spectrales du rayonnement électromagnétique.

1.4.2.2. Radiance et température de brillance

La luminance énergétique L , aussi appelée radiance (terme couramment utilisé dans la littérature spécifique au domaine de la télédétection), représente la puissance par unité de surface du rayonnement qui passe, ou qui est émis, en un point de cette surface dans une direction donnée, par unité d'angle solide. Elle s'exprime donc en $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{sr}^{-1}$.

$$L = \frac{d^2\Phi}{d\Sigma d\Omega} \quad (1.10)$$

$$d\Sigma = dS \cos\theta \quad (1.11)$$

Avec :

- $d^2\Phi$: le flux énergétique de rayonnement,
- $d\Sigma$: l'unité de surface émettrice apparente,
- $d\Omega$: l'angle solide,
- dS : la surface recevant le rayonnement,
- θ : l'angle avec la normale à la surface élémentaire émettrice.

En spectroscopie atmosphérique on utilise souvent le terme de température de brillance. Aussi appelée température radiative apparente d'une surface. Elle est équivalente à la température que délivrerait un corps noir, à une longueur d'onde donnée, avec la même luminance que celle de la surface étudiée. Elle s'exprime en Kelvin (K).

On appelle corps noir, un corps que l'on considère comme idéal. C'est à dire qui absorbe l'intégralité du rayonnement incident, en réémettant celui-ci avec une température de brillance égale à sa température. Cela signifie que la luminance spectrale de ce corps dépendra uniquement de sa température.

La température de brillance $T_B(\lambda)$, pour une longueur d'onde λ , peut être exprimée analytiquement grâce à la formule de Planck :

$$T_B(\lambda) = \frac{hc}{\kappa\lambda} \ln^{-1} \left(1 + \frac{2hc^2}{\lambda^5 I(\lambda)} \right) \quad (1.12)$$

La luminance énergétique spectrale, introduit l'unité spectrale de la luminance, que l'on peut exprimer en $W/(m^2 \cdot sr \cdot m)$ (ou $W/(cm^2 \cdot sr \cdot cm^{-1})$ si la variable spectrale est le nombre d'onde) :

$$L_{\Omega,\lambda}^{\circ}(\lambda, T) = \frac{2hc^2}{\lambda^5} \frac{1}{e^{hc/(\lambda kT)} - 1} \quad (1.13)$$

Où dans les deux cas :

- h : la constante de Planck ($h = 6.6237 \times 10^{-34}$ J.s.),
- c : la vitesse de la lumière dans le vide ($c = 299\,792\,458$ m.s⁻¹),
- κ : la constante de Boltzmann ($\kappa = 1.381 \times 10^{-23}$ J.K⁻¹)
- $I(\lambda)$: l'intensité lumineuse à la longueur d'onde λ .

1.4.2.3. L'interaction rayonnement-matière

La présence de molécules et autres particules dans l'atmosphère va modifier le rayonnement énergétique incident. Il peut être absorbé ou diffusé, la somme de ces deux interactions donnant ce que l'on appelle l'extinction du rayonnement :

$$\alpha_{\nu}^x = \alpha_{\nu}^a + \alpha_{\nu}^d \quad (1.14)$$

α_{ν}^a et α_{ν}^d sont respectivement appelés coefficient d'absorption et de diffusion.

- **La diffusion**

La diffusion va modifier la direction dans laquelle se propage le rayonnement incident. Lorsque cette direction est modifiée plusieurs fois on parle de diffusion multiple. Le mécanisme de la diffusion est directement lié à la taille des particules diffusantes qui se trouvent sur le chemin du rayonnement. Pour les petites particules, on parle de **diffusion de Rayleigh** tandis que pour les plus grosses particules on parle de **diffusion de Mie**.

Les gouttelettes d'eau, les cristaux de glace ou encore les aérosols présents dans l'atmosphère se trouvent principalement dans des gammes de tailles supérieures ou égales à la longueur d'onde du rayonnement, et sont donc vecteur de la diffusion de Mie. Elle est inversement proportionnelle à la longueur d'onde du rayonnement incident.

Dans l'infrarouge, le terme de diffusion peut être négligé. En effet, la diffusion Rayleigh est très inefficace aux grandes longueurs d'onde et les molécules telles que les gouttelettes d'eau sont grosses et donc typiquement plus absorbantes. Cependant, le terme d'émission atmosphérique dans l'infrarouge doit lui être considéré en plus de l'absorption de rayonnement.

- **L'absorption**

Dans le cas d'une absorption partielle ou totale du rayonnement, il y a un échange d'énergie. L'énergie du rayonnement absorbée va modifier l'énergie interne de la molécule en la faisant passer d'un niveau d'énergie au niveau d'énergie supérieur. Cette transition entre niveaux d'énergie dépend de la longueur d'onde du rayonnement.

- **L'émission**

Tout corps dont la température est supérieure au zéro absolu (i.e. 0 Kelvin) va émettre un rayonnement thermique spontané. L'émission est un processus linéaire tout comme l'extinction qui, pour une couche de l'épaisseur ds , suit la relation :

$$dL_{\nu}^{émision} = -\alpha_{\nu}^e J_{\nu}(s) ds \quad (1.15)$$

Où :

- α_{ν}^e : le coefficient d'émission,

- $J_{\tilde{\nu}}$: la fonction source de la couche traversée.

La loi de Kirchhoff établit une égalité entre coefficients d'émission et d'extinction :

$$\alpha_{\tilde{\nu}} = \alpha_{\tilde{\nu}}^x = \alpha_{\tilde{\nu}}^e = \alpha_{\tilde{\nu}}^a + \alpha_{\tilde{\nu}}^d \quad (1.16)$$

Le rapport entre le rayonnement énergétique mesuré et le rayonnement énergétique incident donne le terme de transmittance du milieu traversé souvent exprimé en pourcentage.

$$T = \frac{I_s}{I_0} \quad (1.17)$$

1.4.2.4. L'épaisseur optique

L'atténuation de la radiance causée par la présence de différentes couches avec une composition, des propriétés et une épaisseur donnée, le long de la ligne de visée d'un instrument de télédétection correspond à l'épaisseur optique. Il permet de définir le degré d'opacité du milieu et est une grandeur sans unité. Elle est reliée au coefficient d'extinction τ qui s'exprime par unité de longueur en m^{-1} .

$$\tau = \int \alpha_{\tilde{\nu}}^x(s) ds \quad (1.18)$$

La transmittance t est reliée à l'épaisseur optique par la relation :

$$\tau(\tilde{\nu}) = -\ln(t(\tilde{\nu})) \quad (1.19)$$

1.4.2.5. Raies d'émissions des composants atmosphériques

La collision du rayonnement incident avec les molécules atmosphériques, présentes dans le milieu traversé, ainsi que l'effet Doppler, induit par la vitesse de déplacement des molécules amenant à une transition entre deux niveaux d'énergie, impliquent un élargissement des raies

L'absorption et l'émission sont bien identifiables par la forme des raies observées (Figure 1.8).

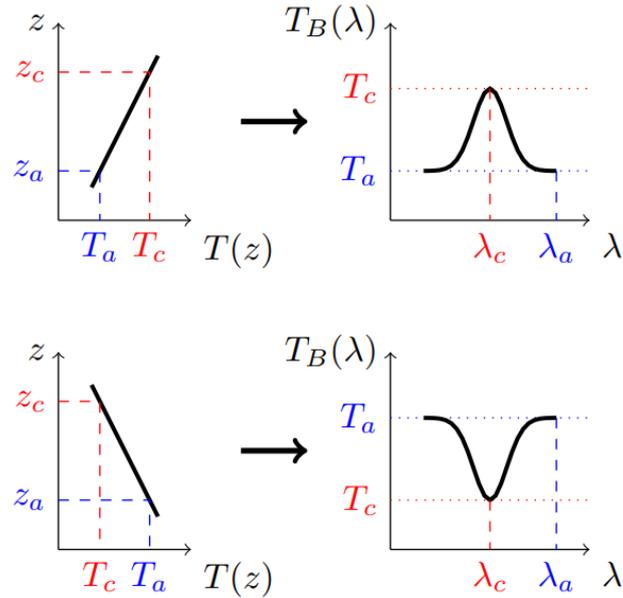


Figure 1.8 – Formes des raies observées en émission (en haut) ou en absorption (en bas) (Crédit : Emmanuel Marcq, LATMOS)

Lorsque le profil de température, entre le cœur des raies (T_c) et les ailes des raies (T_a) croît avec l'altitude, respectivement z_c et z_a , alors les raies sont en émission, $T_c(\lambda_c) > T_a(\lambda_a)$. Inversement, lorsque le profil décroît avec l'altitude, les raies sont en absorption, $T_c(\lambda_c) < T_a(\lambda_a)$.

Les molécules et particules composant l'atmosphère influencent le rayonnement sur des bandes spectrales qui leurs sont propres. La Figure 1.9, présente les bandes d'absorption de plusieurs espèces plus ou moins absorbantes en parallèle d'un spectre de radiance infrarouge de l'atmosphère en absorption, mesuré par l'instrument satellitaire IASI/MetOp-A² qui effectue des mesures au nadir de l'atmosphère par télédétection depuis 2006. Les principales espèces absorbantes dans l'infrarouge sont la vapeur d'eau, le monoxyde de carbone CO, le dioxyde de carbone CO₂, l'ozone l'O₃, le méthane CH₄ et le protoxyde d'azote N₂O. Le dioxyde de soufre présente deux régions d'absorption dans la bande de l'infrarouge : une région forte centrée autour de 1400 cm⁻¹ ($\nu_3 \sim 7.3 \mu\text{m}$) et une région plus faible centrée autour de 1150 cm⁻¹ ($\nu_2 \sim 8.6 \mu\text{m}$). La région « forte » se trouve en dehors de la fenêtre atmosphérique et n'est donc pas utilisable dans le cadre de mesures à basse altitude.

² La fin des opérations de la version A de la série de satellites MetOp (*Meteorological Operational Satellite*) est prévue en novembre 2021 (<https://www.eumetsat.int/plans-metop-end-life>).

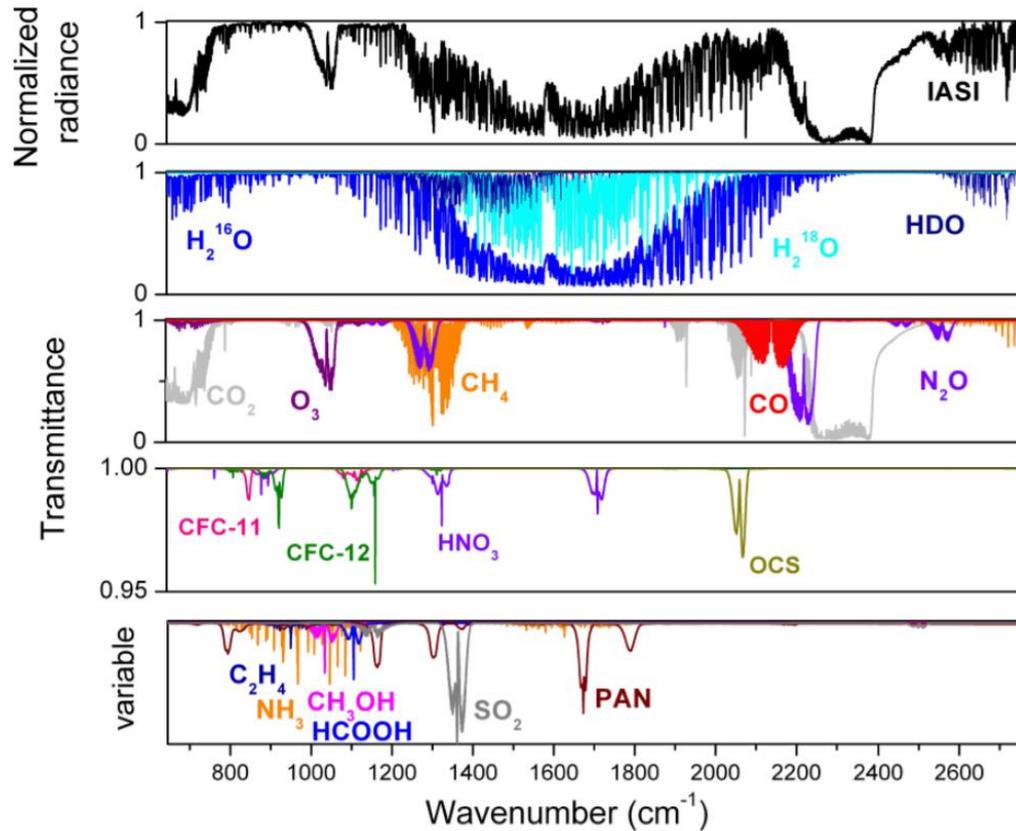


Figure 1.9 – Spectre de radiance atmosphérique normalisé, mesuré par l'instrument IASI/MetOp-A au-dessus de l'ouest de l'Australie (20/12/2006) (en haut) et la simulation de la transmittance des principaux gaz absorbant dans cette gamme spectrale (au milieu) et les espèces absorbant moins (en bas) (Clerbaux et al., 2009).

1.4.3. L'équation du transfert radiatif

Le rayonnement électromagnétique, dans les domaines de longueur d'onde de l'ultraviolet, du visible et de l'infrarouge, joue un rôle fondamental dans de nombreux processus atmosphériques. Il constitue la source initiale d'énergie pour différents mécanismes physico-chimiques qui influencent la distribution de nombreux constituants atmosphériques. Les interactions avec le rayonnement au travers des processus d'absorption, d'émission et de diffusion affectent le système atmosphérique global (Delmas et al., 2005). Par ailleurs, les interactions entre la matière et le rayonnement électromagnétique, au sens large, sont à la base des techniques de télédétection des espèces chimiques gazeuses et des aérosols. L'émission propre de l'atmosphère induite par ses composés chimiques, associée à la température et aux rapports de mélange de ces composés, donnera une signature spectrale spécifique.

Pour pouvoir simuler le spectre de rayonnement mesuré on utilise l'équation du transfert radiatif avec laquelle on cherche à reproduire les différents processus radiatifs qui ont lieu dans l'atmosphère.

Dans l'infrarouge, le terme de diffusion de l'extinction peut être négligé. On a alors l'équation du transfert radiatif dans une atmosphère non diffusante :

$$\frac{dL_\lambda}{ds} = -a_\lambda(s) \left(L_\lambda(s) - J_\lambda(T(s)) \right) \quad (1.20)$$

Pour établir l'équation du transfert radiatif le long de la ligne de visée d'un instrument de télédétection, nous allons supposer l'équilibre thermodynamique local, hypothèse vraisemblable dans la troposphère et la basse stratosphère. Elle permet de définir les différents éléments constituant la radiance spectrale mesurée par l'instrument. L'équation du transfert radiatif se base sur deux lois : la loi de Kirchhoff et la loi de Beer-Lambert. En supposant négligeable la diffusion dans l'infrarouge, pour une visée au limbe à l'abscisse curviligne s le long de la ligne de visée, l'équation s'écrit alors :

$$L_{\bar{\nu}}(s) = L_{\bar{\nu}}(0)T_{\bar{\nu}}(0,s) + \int_0^s J_{\bar{\nu}}(s')T_{\bar{\nu}}(s,s')\alpha_{\bar{\nu}}(s')ds' + (1-\epsilon_{\bar{\nu}}) \left[\int_{+\infty}^0 J_{\bar{\nu}}(s')T_{\bar{\nu}}(s,s')\alpha_{\bar{\nu}}(s')ds' \right] T_{\bar{\nu}}(0,s) \quad (1.21)$$

Avec:

- $L_{\bar{\nu}}(s)$: la radiance à la sortie de la ligne de visée, exprimée en $W / (cm^2 sr cm^{-1})$,
- $L_{\bar{\nu}}(0)$: la radiance à l'entrée de la ligne de visée, exprimée en $W / (cm^2 sr cm^{-1})$,
- $T_{\bar{\nu}}(0,s)$: la transmission de la colonne de gaz (émission du fond de l'atmosphère),
- $\alpha_{\bar{\nu}}(s')$: le coefficient d'absorption, exprimé en $(1/cm^{-1})$,
- $J_{\bar{\nu}}(s')$: la fonction source au point d'abscisse curviligne s' , exprimée en $W/(cm^2.sr.cm^{-1})$,
- $T_{\bar{\nu}}(s,s')$: la transmission entre l'abscisse curviligne s et s' d'une couche de l'atmosphère.

1.4.4. Les instruments de télédétection des panaches volcaniques

Les instruments de télédétection doivent adapter leurs bandes de mesures aux fenêtres atmosphériques. La notion de fenêtre atmosphérique rend compte des bandes spectrales où les raies d'absorption d'espèces telles que H₂O, O₂ et CO₂ seront faibles et où la transmission des espèces atmosphériques d'intérêt sera élevée. Il existe trois fenêtres atmosphériques dans l'infrarouge, elles s'étendent de 760 à 1 300 cm⁻¹, de 2 000 à 2 300 cm⁻¹ et de 2 390 à 3 000 cm⁻¹. La première fenêtre atmosphérique est couramment utilisée (infrarouge thermique). En effet, elle joue un rôle important dans les échanges radiatifs car le maximum d'émission du corps noir, aux températures usuelles de l'atmosphère, se fait à ces longueurs d'ondes. La principale source d'absorption de cette fenêtre atmosphérique est due au continuum de la vapeur d'eau qui se trouve avoir des raies fortes au voisinage de la fenêtre.

1.4.4.1. Depuis le sol

Les toutes premières mesures des émissions volcaniques ont été faites au sol. Elles se faisaient *in situ* à l'aide de bouteilles de solution alcaline pour capter les espèces acides puis étaient analysées en laboratoire comme ont pu le faire Franck Perret et Thomas Jaggar, deux volcanologues américains, au début du XX^{ème} siècle (Oppenheimer et al., 2011). Au cours des cinquante dernières années, les mesures à distance, plus sécuritaires pour les scientifiques de terrain, ont connu un fort développement instrumental. Outre la sécurité qu'apporte la distance d'au moins 1 km des sources d'émission des gaz, ces instruments permettent souvent une analyse en temps réel. Le premier instrument de télédétection très utilisé à partir des années 1970 pour la surveillance des panaches volcaniques est l'instrument COSPEC (*Correlation Spectrometer*) (Williams-Jones et al., 2008). Il permet de caractériser les flux d'émission de SO₂. Il faut d'ailleurs noter qu'il joua un rôle essentiel dans la planification de l'évacuation de la population avant l'éruption du mont Pinatubo en 1991 (Daag et al., 1996). Grâce à l'implantation de cet instrument sur plusieurs volcans actifs autour du globe, les mesures collectées ont permis d'obtenir une première estimation des émissions globales de SO₂ des volcans. Une version miniaturisée, légère et peu chère appelée FLYSPEC fut développée par la suite (Horton et al., 2006).

Quelques années plus tard est apparue une nouvelle méthode de mesures à partir des spectres UV (*Ultraviolet*) : le DOAS pour *Differential Optical Absorption Spectroscopy*. Cette

nouvelle méthode s'est répandue dans la communauté des volcanologues au début des années 2000 grâce à la commercialisation de spectromètres UV abordables, petits et peu gourmands en énergie (Oppenheimer et al., 2011). L'essor de cette technologie a permis un déploiement en réseau sur plusieurs volcans de spectromètres UV comme via le projet européen NOVAC (*Network for Observation of Volcanic and Atmospheric Change*) (Galle et al., 2010). A ce jour, le réseau NOVAC comprend une centaine d'instruments déployés sur 42 volcans dans le monde entier ([NOVAC network](#)). Différentes techniques de mesures, se basant sur la méthode DOAS, ont été développées pour permettre d'augmenter la résolution temporelle des estimations du flux d'émission de SO₂ pouvant atteindre une fréquence de 1 Hz. C'est le cas de l'étude reportée par Boichu et al. (2010) (Boichu et al., 2010) grâce à l'utilisation de deux spectromètres UV améliorant la détermination de la vitesse de déplacement du panache.

Les imageurs UV sont eux apparus au milieu des années 2000 et ont constitué une avancée majeure car ils permettent le suivi des flux d'émission des gaz volcaniques (Bluth et al., 2007; McGonigle et al., 2017). Le challenge de ces instruments est d'avoir des technologies qui permettent d'obtenir un bon compromis entre l'information spectral et la durée d'acquisition des images (Platt et al., 2015).

1.4.4.2. Depuis un satellite

Il n'y a actuellement pas de capteurs sur satellite spécifiquement développés pour la surveillance des volcans. Cependant les caractéristiques de certains capteurs font qu'ils peuvent être en adéquation avec des mesures de flux thermiques, d'émissions de gaz et de cendres ou de déformation de la surface de la Terre, dédiés aux volcans. C'est ce qu'il s'est passé en 1982 avec les mesures du satellite TOMS (*Total Ozone Mapping Spectrometer*) suite à l'éruption du volcan El Chichón au Mexique (Krueger, 1983). Ces mesures représentent les débuts de la télédétection par satellite des panaches volcaniques.

La motivation première de ces mesures par satellite est d'améliorer les connaissances de l'impact de ces émissions sur la chimie atmosphérique et sur le climat (Robock, 2000). Avec le temps, les capteurs ont gagné en sensibilité et permettent de mesurer les émissions de plus petites éruptions tout comme les émissions de SO₂ dans la troposphère, de même que quelques autres gaz en faible proportion (Carn et al., 2016).

Depuis 1999, plusieurs satellites ont été lancés avec à leur bord des instruments, dont les mesures ont servi au suivi de l'activité des volcans, tels que : OMI (*Ozone Monitoring Instrument*) lancé en 2004 sur Aura, IASI (*Interféromètre Atmosphérique de Sondage dans*

l'Infrarouge) lancé en 2006, 2012 et 2018 lancé sur les satellites MetOp, SEVIRI en 2002, 2005, 2012 et 2015 sur les satellites Eumetsat, AIRS (*Atmospheric InfraRed Sounder*) en 2002 sur Aqua, ASTER (*Advanced Spaceborne Thermal Emission and Reflection Radiometer*) en 1999 sur Terra, MODIS en 1999 et 2002 sur les satellites Terra puis Aqua et le plus récent est TROPOMI (*Tropospheric Monitoring Instrument*) lancé en 2017 sur Sentinel-5P. Parmi ces instruments, IASI a permis de suivre plusieurs éruptions volcaniques (Taylor et al., 2018) depuis 2007. C'est un spectromètre à transformée de Fourier associé à un imageur infrarouge qui permet de suivre plus de 25 espèces chimiques atmosphériques simultanément. TROPOMI quant à lui, grâce à sa limite de détection améliorée d'un facteur quatre par rapport à celle de l'instrument OMI, permet de caractériser les flux d'émission de SO₂ des volcans comme celui de l'Etna (Theys et al., 2019).

1.4.4.3. Depuis un avion

Les phases éruptives des volcans permettent des campagnes aéroportées visant à caractériser les aérosols et autres émissions gazeuses présents dans les panaches volcaniques. Les mesures sont la plupart du temps couplées à des mesures satellitaires ou au sol.

Certains instruments comme l'instrument COSPEC ou les mini-DOAS ont également été déployés sur avion ou hélicoptère (Galle et al., 2003). L'instrument aéroporté MIVIS (*Multispectral Infrared and Visible Imaging Spectrometer*) est un spectro-imageur multispectral mesurant dans quatre gammes spectrales allant du visible à l'infrarouge thermique qui a permis de caractériser l'épaisseur optique des aérosols de l'Etna pendant une phase non éruptive, puis une phase éruptive du volcan (Spinetti and Buongiorno, 2007).

Dans le cadre de la préparation de la mission spatiale HypsIRI (*Hyperspectral Infrared Imager*) et du développement d'un imageur hyperspectral HyTI (*Hyperspectral Thermal Imager*) de la NASA (*National Aeronautics and Space Administration*), une campagne aéroportée a été menée en janvier et février 2018 au-dessus des volcans Kilauea et Mauna Loa à Hawaii (Gabrieli et al., 2018; Wright et al., 2019). La caractérisation des émissions volcaniques, alliée à la prévention des risques liés aux volcans, est l'un des objectifs de cette mission. Si ce projet aboutit, cela ferait de HyTI le premier instrument sur satellite développé, au moins en partie, pour cette thématique de recherche.

Les principaux instruments au sol, aéroportés ou sur satellites ayant contribué jusqu'à ce jour aux mesures des émissions des volcans sont listés dans le Tableau 1.5.

<i>Instrument</i>	<i>Platform</i>	<i>Bands</i>	<i>Gases</i>	<i>Spatial resolution (FOV size, km)</i>
<i>Infrared</i>				
HIRS	NOAA series	7.3 μm	SO ₂	~15–30
VISSR	GOES	7.2 μm	SO ₂	~5
MODIS	Terra/Aqua	4.0, 7.3, 8.6 μm	SO ₂ , ash	~1
ASTER	Terra	8.6 μm	SO ₂ , ash	~0.09
SEVIRI	MSG	4.0, 7.3, 8.6 μm	SO ₂ , ash	~4
AIRS	Aqua	4.0, 7.3, 8.6 μm	SO ₂ , CO ₂ , HCl, H ₂ S, CO, O ₃	~15
TES	Aura	4.0, 7.3, 8.6 μm	SO ₂ , CO ₂ , HCl, H ₂ S	~5
IASI	MetOp-A	4.0, 7.3, 8.6 μm	SO ₂ , CO ₂ , HCl, H ₂ S, CO, O ₃	~15
<i>Ultraviolet</i>				
TOMS	Various	300–360 nm	SO ₂ , O ₃	~50
OMI	Aura	270–310 nm 310–500 nm	SO ₂ , BrO, OClO, NO ₂ , O ₃	~12–48
OMPS	JPSS	250–1,000 nm	O ₃ , SO ₂ , NO ₂	50
GOME	ERS-2	240–790 nm	SO ₂ , BrO, OClO, NO ₂ , O ₃	~40–320
GOME-2	MetOp-A	240–790 nm	SO ₂ , BrO, OClO, NO ₂ , O ₃	40–80
SCIAMACHY	ENVISAT	240–1,700 nm, 2–2.4 μm	SO ₂ , BrO, OClO, NO ₂ , CO ₂	~32–215
<i>Microwave</i>				
MLS	Aura	118 GHz–2.5 THz	SO ₂ , BrO, HCl, NO ₂ , H ₂ O, O ₃ , CO, ClO	~2–17
<i>Ground-based</i>				
COSPEC	Ground-based	300–315 nm	SO ₂ , NO ₂	Variable
FT-IR	Ground-based	3–15 μm	CO ₂ , CO, HF, SO ₂ , HCl, H ₂ SO ₄	Variable
UV spectrometers	Ground-based	300–315 nm ^a	SO ₂ , HCl, BrO, NO ₂	Variable
IR cameras	Ground-based	7–14 μm	SO ₂ , H ₂ O, CO ₂ , H ₂ SO ₄ , ash	Variable

^aDepends on device: FlySpec (300–315 nm); DOASIS (303–313 nm).

Tableau 1.5 – Instruments sur satellite (en UV, en IR et en micro-ondes) et au sol ou aéroportés capables de mesurer les émissions de SO₂ et des autres gaz et particules volcaniques (tiré de (Dean and Dehn, 2015)).

1.4.5. Les imageurs hyperspectraux infrarouges

Un imageur hyperspectral se définit comme étant une technologie capable de mesurer des images sur au moins une centaine de canaux spectraux, étroits et contigus, contrairement à un instrument multispectral, qui lui se réduira au plus à une vingtaine de canaux souvent isolés les uns des autres. Les imageurs hyperspectraux représentent donc une avancée majeure pour les mesures de télédétection grâce au développement de détecteurs mesurant dans l'UV, le visible ou l'infrarouge avec une très grande résolution spectrale permettant de caractériser avec plus de finesse les milieux ciblés par les mesures. Ils mesurent ce que l'on peut considérer être des cubes avec deux dimensions spatiales et une dimension spectrale.

Un intérêt plus particulier est donné ici aux imageurs hyperspectraux infrarouges. Les imageurs hyperspectraux dans le visible ou l'ultraviolet ne font pas partie des travaux présentés dans ce manuscrit.

Il existe différents imageurs commercialisés notamment par les sociétés comme Bruker et Telops. D'autres imageurs sont quant à eux opérés par des laboratoires, sur satellite ou autres plateformes de mesures. L'un des avantages majeurs des imageurs hyperspectraux infrarouges est leur capacité à effectuer des mesures de jour comme de nuit. Cet aspect est primordial dans le cadre de mesures de suivi ou de surveillance en opérationnel d'émissions gazeuses.

L'instrument TROPOMI développé par le KNMI (*Institut royal météorologique des Pays-Bas*) et l'ESA (*European Space Agency*) est un imageur hyperspectral lancé sur le satellite Sentinel-5P en 2017. Il permet la mesure de nombreux gaz grâce aux trois gammes spectrales qu'il couvre, de l'UV au visible jusqu'à l'infrarouge.

L'Hyper-Cam LWIR (*Long Wavelength InfraRed*) est l'un des imageurs de la gamme Hyper-Cam de la société Telops. Il a déjà été déployé plusieurs fois sur des volcans comme sur l'Etna en Sicile en juin 2015 (Huret et al., 2019) et sur le Stromboli en octobre 2015 (Smekens and Gouhier, 2018). D'autres imageurs hyperspectraux infrarouges de chez Telops opèrent dans l'infrarouge moyen au sol ou sur avion.

Le Tableau 1.6, regroupe quelques imageurs hyperspectraux infrarouges ainsi que leurs caractéristiques principales. Parmi ces imageurs, seuls l'Hyper-Cam LWIR, le HyTI et THI (*Thermal Hyperspectral Imager*), développé au HIGP (*Hawai'i Institute of Geophysics and Planetology*) ont été spécifiquement déployés pour la caractérisation des panaches volcaniques au sol ou depuis un avion.

Nom (Compagnie / Laboratoire)	Bande spectrale	Taille des images	Dispositif optique	Références
Hyper-Cam LWIR (Telops)	850 – 1300 cm ⁻¹ (i.e. 7.7 – 11.8 μm) résol. max 0.25 cm ⁻¹	320 × 256 pixels	Interféromètre de Michelson + détecteur matriciel à plan focal	(Gagnon et al., 2014; Huret et al., 2019; Smekens and Gouhier, 2018)
HI-90 (Bruker)	850 – 1440 cm ⁻¹	256 × 256 pixels	Interféromètre de Michelson + détecteur matriciel à plan focal	(Rosi et al., 2013; Sabbah et al., 2012)
THI (HIGP)	7.5 – 13.5 μm (50 bandes)	324 × 256 pixels	Interféromètre de Sagnac + bolomètre non refroidi	(Wright et al., 2013; Gabrieli et al., 2016)
HyTI (NASA)	8 – 10.7 μm (25 bandes)	320 × 512 pixels	Interféromètre de Fabry-Perrot	(Gabrieli et al., 2018; Wright et al., 2019)
MR-i (Bomem)	0.7 – 20 μm 3 bandes	32 × 32 pixels	Interféromètre en V-shape	(Prel et al., 2011)
TROPOMI (KNMI/ESA)	UV : 270 – 495 nm VIS : 710 – 775 nm IR : 2305 – 2385 nm	Bandes de 7 × 2600 km	Spectromètre à grille	(Veefkind et al., 2012)

Tableau 1.6 – Exemples d’imageurs hyperspectraux commerciaux ou de laboratoire mesurant dans l’infrarouge.

L’avancée que représente l’émergence d’imageurs hyperspectraux depuis quelques années vient se confronter à une problématique déjà connue mais amplifiée par ces nouveaux instruments. Cette problématique concerne la quantité de données collectées par ces instruments à haute résolution spectrale, spatiale et temporelle. Les outils de traitement, associés à ces mesures, doivent être dimensionnés pour pouvoir inverser les données des spectres collectés mais aussi être capable de fournir des résultats en quasi-temps réel.

1.4.6. Les modèles de transfert radiatif

Le développement d'un instrument de mesures implique nécessairement de développer en parallèle les outils permettant de traiter les données collectées. Pour les mesures à distance de l'atmosphère, l'outil indispensable pour un traitement optimal des spectres collectés est un modèle de transfert radiatif. Il permet de déterminer les paramètres des conditions physiques sous-jacentes à la signature spectrale mesurée par l'instrument. Il serait difficile de tous les citer, alors seuls quelques modèles de transfert radiatif raie-par-raie croisés au travers du travail de bibliographie sur le traitement de données spectrales de panaches volcaniques, au cours de ma thèse, sont listés par ordre alphabétique ci-dessous. Les modèles de transfert radiatif raie-par-raie sont coûteux en temps de calcul mais demeurent indispensables pour l'analyse de données à haute résolution spectrale.

- **ARTS** pour « *Atmospheric Radiative Transfer Simulator* » est un code disponible en open source (<https://radiativetransfer.org/>). Il est maintenu par l'Université de Hambourg en Allemagne et l'Université de Chalmers à Göteborg en Suède. Il a été développé pour des applications dans la gamme des micro-ondes et dans les gammes de l'infrarouge moyen et lointain. (Buehler et al., 2005)
- **GARLIC** pour « *Generic Atmospheric Radiation Line-by-line Infrared Code* » (Schreier et al., 2014) est un code dont le développement a commencé au milieu des années 1990. Il est utilisable pour des géométries d'observation et des champs de vue instrumentaux arbitraires.
- **KOPRA** pour « *Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm* ». (Stiller et al., 1998; Hoepfner et al., 1998) a été spécifiquement développé pour l'analyse des données de l'instrument MIPAS (*Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding*) lancé en 1999 sur le satellite ENVISAT-1. Il fut également utilisé quelques années plus tard pour le traitement des données de l'instrument hyperspectral GLORIA (*Gimballed Limb Observer for Radiance Imaging of the Atmosphere*) (Johansson et al., 2018) déployé sur avion.
- **LARA** pour « *LATMOS Atmospheric Retrieval Algorithm* » (originellement LPMAA *Atmospheric Retrieval Algorithm*) a été développé au LPMAA (*Laboratoire de*

Physique Moléculaire pour l'Atmosphère et l'Astrophysique) puis au LATMOS (*Laboratoire Atmosphère, Milieux, Observations Spatiales*) au cours des 20 dernières années. Le modèle a permis de traiter les données spectrales atmosphériques acquises au sol, sous ballons ou sur satellites, que ce soit en émission ou en absorption, et aussi bien en visée au nadir qu'en visée au limbe (Payan et al., 1998; Razavi et al., 2009; Payan et al., 2009; Keim et al., 2009; Huret et al., 2019).

- **LBLRTM** pour « *Line-by-Line Radiative Transfer Model* » a été développé au *Atmospheric and Environmental Research, Incorporated (AER)* (Clough et al., 1992; Clough and Iacono, 1995). Le code continue d'être validé par rapport aux spectres de rayonnement atmosphérique pour une gamme spectrale allant de l'ultraviolet jusqu'au submillimétrique. La dernière version disponible est la v12.11.
- **MODTRAN** pour « *MODerate resolution atmospheric TRANsmision* » est un modèle développé conjointement entre SSI (*Spectral Sciences Inc.*) et AFRL (*Air Force Research Laboratory*) il y a une trentaine d'années et en est à sa 6^{ème} version (Berk et al., 2014). Il est très populaire et touche diverses catégories d'utilisateurs, de la recherche scientifique, aux institutions de formation ou encore des sociétés commerciales. Il est commercialisé et se présente sous la forme d'une interface graphique.
- **RFM** pour « *Reference Forward Model* » a été développé pour le traitement des données MIPAS-Envisat par l'AOPP (*Atmospheric Oceanic & Planetary Physics*) de l'Université d'Oxford. Il est supporté par le NCEO (*National Centre for Earth Observation*). (Dudhia, 2017)

1.5. Conclusion

Dans ce premier chapitre j'ai introduit les principales caractéristiques de l'atmosphère terrestre, de sa structure à sa composition. Les bases de la spectroscopie atmosphérique ont également été abordées de manière à pouvoir comprendre la complexité que représente la caractérisation des paramètres atmosphériques, à partir de mesures par télédétection grâce à la simulation du transfert radiatif et l'utilisation de modèles d'inversion.

Une rapide revue de quelques modèles de transfert radiatif raie-par-raie a été faite, et permet d'avoir un aperçu de la variété des modèles existants, souvent reliés à un instrument ou un type de mesures précis. Le modèle LARA étant le modèle au centre de mes travaux de thèse, il sera décrit avec plus de détails dans le prochain chapitre.

Une revue des instruments de télédétection, dont les caractéristiques permettent des mesures de panaches volcaniques, a également été reportée dans ce chapitre montrant la variété des développements instrumentaux existants, mais aussi l'émergence de l'imagerie hyperspectrale infrarouge. Ces instruments hyperspectraux infrarouges relativement récents représentent une avancée majeure pour des mesures à haute résolution spectrale, spatiale et temporelle avec l'avantage de pouvoir mesurer de jour comme de nuit. Néanmoins, ces imageurs produisent une quantité de données colossale et représentent donc un défi pour pouvoir obtenir un traitement en quasi-temps réel de la masse de données collectées. Un traitement par classification des spectres devient indispensable pour optimiser les temps de calculs.

Les premiers imageurs hyperspectraux infrarouges déployés au sol, pour mesurer les panaches volcaniques, l'ont été en 2015 et ces travaux de thèse découlent des mesures acquises lors de la campagne de mesures IMAGETNA qui a eu lieu sur les flancs du Mont Etna (Chapitre 2). Le traitement de ces mesures doit permettre d'avoir une meilleure connaissance des capacités de ces instruments pour la caractérisation des panaches volcaniques, en répondant à plusieurs questions :

- Est-ce qu'un imageur hyperspectral infrarouge a une sensibilité suffisante pour la mesure des gaz caractéristiques des émissions des volcans, et est donc adapté à la mesure par télédétection des panaches volcaniques ?
- Est-ce que les modèles de transfert radiatif et d'inversion raie-par-raie sont suffisamment robustes pour simuler le transfert radiatif, à partir d'images 3D à haute résolution spectrale, pour caractériser finement les densités de colonnes de gaz présents dans les panaches volcaniques ?
- Est-ce qu'il est possible de mettre en place une méthodologie de traitement massif des données hyperspectrales infrarouges pour permettre un suivi des flux d'émission en quasi-temps réel ?

La campagne de mesures entre dans le cadre du LabEx Voltaire financé par l'Agence Nationale de la Recherche (n°ANR-10-LABX-100-01) et le programme national de chimie

LEFE-CHAT (CNRS/INSU). La suite des travaux a été financée grâce à des financements venant de l'infrastructure européenne HEMERA (Programme Européen Horizon H2020 N°730970) et du CNES (APR 2020 CNRS/INSU).



CHAPITRE

2

Cas d'étude : Caractérisation du
panache de l'Etna par imagerie
hyperspectrale infrarouge

Sommaire

2.1	Introduction	- 59 -
2.2	Campagne de mesures IMAGETNA du panache de l'Etna	- 59 -
2.2.1	Description de la campagne	- 59 -
2.2.2	Les principaux instruments de la campagne IMAGETNA	- 61 -
2.2.2.1	Le spectromètre FTIR-OPAG 33	- 62 -
2.2.2.2	La caméra et le spectromètre UV	- 63 -
2.2.2.3	L'imageur hyperspectral infrarouge Hyper-Cam LWIR	- 65 -
2.3	LARA : un modèle de transfert radiatif et d'inversion de données	- 67 -
2.3.1.	Modélisation du transfert radiatif pour des mesures de télédétection infrarouge au sol.....	- 68 -
2.3.1.1	Equation du transfert radiatif pour les mesures à distance dans un panache volcanique depuis le sol	- 68 -
2.3.1.2	Calcul raie-par-raie	- 70 -
2.3.1.3	Sections efficaces et <i>look-up tables</i>	- 71 -
2.3.1.4	Fonction d'appareil.....	- 71 -
2.3.1.5	Le continuum de la vapeur d'eau	- 72 -
2.3.1.6	L'extinction des aérosols	- 73 -
2.3.2	L'inversion des données spectrales.....	- 76 -
2.3.2.1	Le concept de l'inversion	- 76 -
2.3.2.2	Méthode d'ajustement des spectres par les moindres carrés	- 77 -
2.3.2.3	Méthode de Levenberg-Marquardt.....	- 80 -
2.3.2.4	L'information <i>a priori</i>	- 86 -

2.4	Adaptation du modèle LARA aux mesures de l’Hyper-Cam au sol du panache de l’Etna.....	- 86 -
2.4.1	Conditions atmosphériques et géométriques de la visée.....	- 87 -
2.4.2	Géométrie de la ligne de visée	- 88 -
2.4.3	Caractéristiques du panache volcanique	- 88 -
2.5	Conclusion.....	- 89 -

2.1 Introduction

Ce chapitre est consacré à la description du cas d'étude de mes travaux de thèse. Il réunit les différents éléments qui ont été utilisés pour répondre aux questions scientifiques adressées dans le chapitre précédent. Ces éléments regroupent les instruments déployés et les données collectées lors d'une campagne de mesures. Un autre élément essentiel pour mes travaux est le modèle de transfert radiatif et d'inversion LARA (développé aujourd'hui au LATMOS, et précédemment au LPMAA). Sa description se fera en deux parties : tout d'abord une description du processus de modélisation du transfert radiatif et ensuite une description générale de ce que l'on appelle l'inversion de données, et comment cela est effectué dans LARA. La troisième section de ce chapitre est dédiée aux travaux d'ajustement du modèle qui ont découlé des conditions de mesures de la campagne IMAGETNA, avec la prise en compte d'une couche caractéristique le long de la ligne de visée par l'introduction de paramètres caractéristiques du panache volcanique dans la géométrie du modèle. Les différentes données d'entrée générales du modèle y seront aussi présentées.

L'objectif de ce chapitre est de présenter les différents outils et jeux de données qui ont servi de matière première à ma réflexion et à mes travaux.

2.2 Campagne de mesures IMAGETNA du panache de l'Etna

2.2.1 Description de la campagne

La campagne s'est déroulée du 21 au 26 juin 2015 depuis l'observatoire Pizzi Deneri situé à une altitude de 2 850 m correspondant aux coordonnées GPS suivantes : 37.7596°N – 15.01718°E. Cet observatoire dispose d'une plateforme extérieure, située à environ 2 km du sommet de l'Etna, permettant l'installation de plusieurs instruments et fournissant également les ressources en énergie nécessaire à leur fonctionnement.

La Figure 2.1 présente une carte du relief de l'Etna avec différents agrandissements permettant d'identifier la position géographique des différents cratères de l'Etna (dans l'encart bleu) ainsi que la situation de l'observatoire par rapport à ces différents cratères (point et encart rouge). L'Etna possède quatre cratères principaux : le Bocca Nuova (BN), le Voragine (VOR), le cratère Nord-Est (NEC) et les cratères Sud-Est (SEC). Durant la campagne, l'Etna était dans une phase d'activité relativement calme avec un panache pauvre en cendre. Néanmoins, la

variabilité de l'opacité du panache, visible à l'œil nu, témoignait de la variabilité dans sa consistance et de l'intensité de émissions du volcan. Pendant la campagne, les émissions provenaient principalement du cratère nord-est.

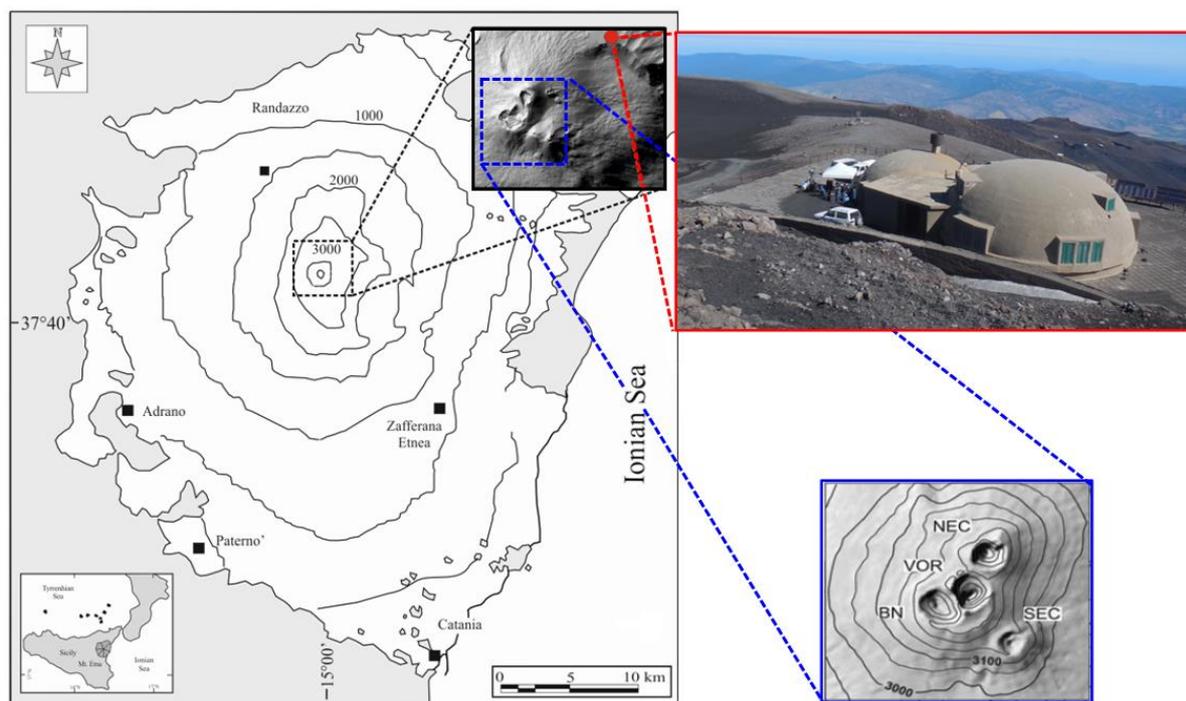


Figure 2.1 – Carte du relief de l'Etna (à gauche) avec différents agrandissements. La zone d'intérêt lors de la campagne reportée dans l'encart noir, une photographie de l'observatoire Pizzi Deneri dans l'encart rouge et le détail du relief des différents cratères de l'Etna dans l'encart bleu. (Adaptée de figures tirées de (Alparone et al., 2003; Huret et al., 2019).

Les mesures ont été effectuées tôt le matin pour s'assurer d'avoir un fort contraste de température entre le ciel clair et le panache de l'Etna (*n.b.* on qualifie de ciel clair la partie du ciel où le panache volcanique est absent). De plus, la formation de nuages convectifs étant fréquente dans l'après-midi, cela a permis de minimiser la présence de nuages dans le champ de vue des instruments.

Le déploiement des instruments, les divers tests, ainsi que la calibration, ont été effectués au cours de la première journée de la campagne et les jours suivants ont permis l'acquisition de plusieurs séquences de mesures. Cependant, des passages nuageux induisant une trop forte opacité pour les mesures dans l'infrarouge ainsi que des vents forts provoquant une vibration trop importante des instruments ont eu pour conséquence de devoir écarter, dans mon étude, certaines séquences ou parties de séquences de mesures.

2.2.2 Les principaux instruments de la campagne IMAGETNA

Lors de la campagne IMAGETNA, plusieurs laboratoires étaient impliqués : l'ONERA (*Office National d'Etudes et de Recherches Aérospatiales*), l'INGV (*Institut national de géophysique et de volcanologie*) et le LPC2E (*Laboratoire de Physique et Chimie de l'Atmosphère de l'Environnement et de l'Espace*). Outre des prototypes testés lors de la campagne, mais non présentés dans mes travaux, l'équipe de l'ONERA avait la charge d'un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier, le FTIR - OPAG 33 (*Fourier Transform Infra-Red Spectrometer*). L'INGV a déployé une caméra et un spectromètre UV tandis que le LPC2E a mis en œuvre l'imageur hyperspectral infrarouge Hyper-Cam LWIR (*Long Wavelength InfraRed*) de la société Telops.



Figure 2.2 – Photographies de la disposition des instruments sur la plateforme de l'observatoire Pizzi Deneri de l'Etna pendant la campagne IMAGETNA.

Les photographies de la campagne, présentées sur la Figure 2.2, montrent une vue sur le panache de l'Etna lors d'une phase de mesures sans nuages et sans vents forts (en haut) ainsi qu'une photographie de la disposition des instruments sur la plateforme de l'observatoire Pizzi Deneri (en bas).

Laboratoires	Instruments	Gamme spectrale (μm)	Remarques
ONERA	FTIR - OPAG 33	[3.5 – 14]	-
LPC2E	Hyper-Cam LWIR	[7.7 – 11.8]	Commercial
INGV	Caméra + Spectromètre UV	0.310 et 0.330	-

Tableau 2.1 – Liste des instruments et laboratoires impliqués dans la campagne IMAGETNA.

Pour mieux identifier les instruments utilisés lors de la campagne, dont les mesures ont été traités pour ces travaux, le principe de fonctionnement et les caractéristiques des trois instruments (Tableau 2.1) sont présentés dans les paragraphes qui suivent.

2.2.2.1 Le spectromètre FTIR-OPAG 33

Le FTIR OPAG 33 de la société Bruker est un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier. Le logiciel de Bruker, dédié à l'instrument, permet l'acquisition d'un spectre pour lequel les effets de non-linéarité sont traités et donnent en sortie un spectre brut dans la gamme spectrale allant de 3.5 à 14 μm . Un corps noir de référence à quatre températures différentes, 5°C, 10°C, 15°C et 20°C, permet pendant la campagne d'étalonner l'instrument à chaque longueur d'onde par la méthode des moindres carrés linéaires. Le champ de vue de l'instrument est de 10 mrad.

Ces mesures se font en émission à température ambiante, ainsi les spectres mesurés sont plus intenses dans la bande spectrale 8-12 μm que dans la bande 3-5 μm .

Une caméra FLIR (*Forward Looking InfraRed*), permettant d'obtenir des cartes de luminance de la scène observée, était positionnée à côté du FTIR lors de chaque séquence de mesures comme nous pouvons le voir sur la photo du haut de la Figure 2.3 (FLIR en bleu et FTIR en blanc). Cela a permis d'avoir une indication de l'emplacement du mono-pixel mesuré par le FTIR. Plusieurs exemples de la superposition du mono-pixel sur une image de la caméra FLIR pour diverses configurations de mesures sont présentés dans la Figure 2.4.

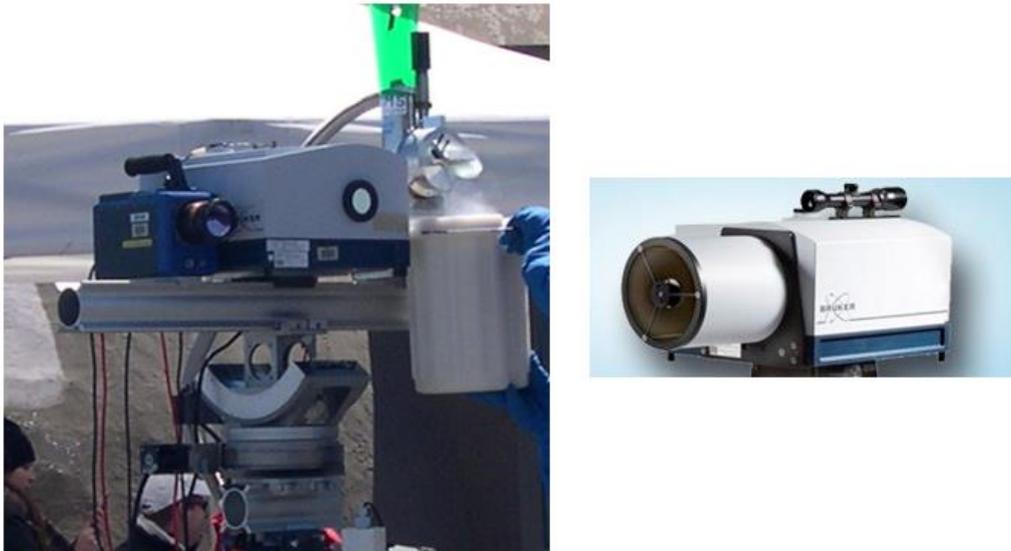


Figure 2.3 – Photographie du FTIR OPAG (blanc) et de la caméra FLIR (bleue) lors de la campagne IMAGETNA (à gauche) et photographie commerciale du FTIR (à droite).

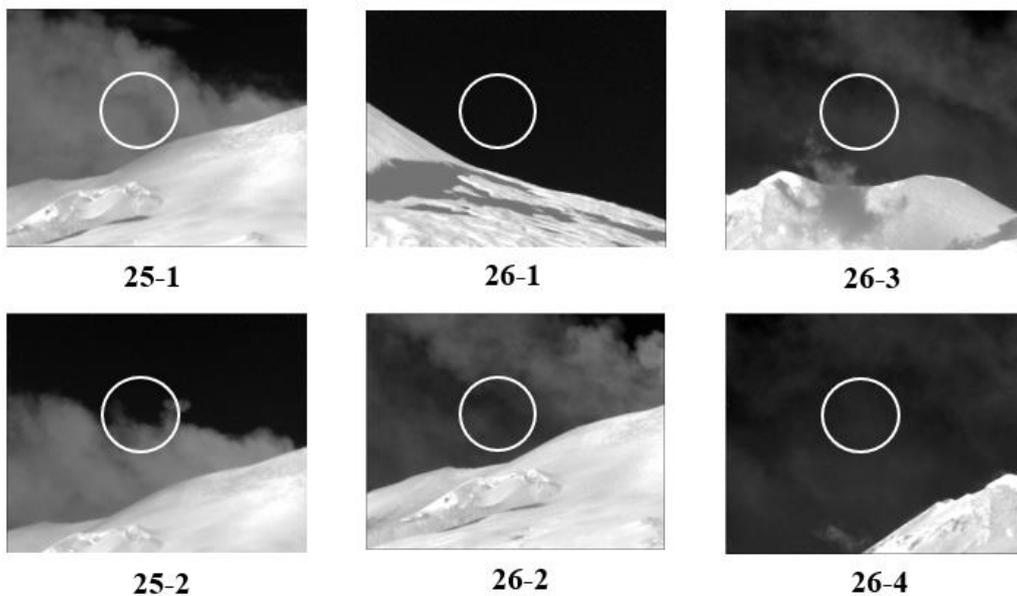


Figure 2.4 – Images issues de la caméra FLIR acquises lors de la campagne IMAGETNA avec la position du mono-pixel du FTIR (cercle blanc).

2.2.2.2 La caméra et le spectromètre UV

L'instrument UV déployé par l'équipe de l'INGV est constitué de deux caméras CCD (JAY CM-140GE-UV) munies des capteurs Sony ICX407BLA pour des images de 1380 × 1040 pixels. La lumière est focalisée sur les capteurs en utilisant des lentilles en quartz avec une focale de 12 mm. Les caméras sont montées côte à côte de manière à capturer une scène

identique. Les photographies de la Figure 2.5 montrent la caméra UV lors de la campagne de mesures.



Figure 2.5 – Photographies de la caméra UV durant la campagne IMAGETNA.

Deux filtres passe-bande sont montés sur les lentilles pour augmenter la sensibilité au SO_2 , avec une longueur d'onde centrale de 310 nm d'une part, et pour augmenter la sensibilité aux aérosols d'autre part, avec une longueur d'onde centrale de 330 nm. Le champ de vue de l'instrument est de 28.8° de largeur par 21.9° de hauteur. La caméra UV est contrôlée par un logiciel développé spécifiquement pour la caméra. En fonction de la luminosité de la scène, les images sont collectées à une fréquence de 0.1 à 0.03 Hz. Pour éviter une surexposition, le temps d'obturation est ajusté automatiquement.

Ce système est couplé à un spectromètre UV (Ocean Optics usb200+) qui capture un spectre dans l'ultraviolet dans le panache permettant de calibrer la colonne de SO_2 apparente acquise par la caméra en absolu. Les images brutes sont traitées en utilisant le protocole décrit dans Burton et al. (2015) (Burton et al., 2015). Ce protocole utilise des images du ciel clair pour normaliser les images mesurées aux longueurs d'onde 310 nm et 330 nm. Les images sont ensuite divisées l'une par l'autre pour obtenir une image de transmittance de SO_2 . L'étape

suivante est de prendre le logarithme naturel négatif de l'image de transmittance et de la convertir en épaisseur optique différentielle qui est enfin convertie en colonne oblique de SO₂ (ou SCD pour *Slant Column Density*) grâce à la calibration de la quantité de SO₂ inversée par la spectroscopie UV DOAS.

2.2.2.3 L'imageur hyperspectral infrarouge Hyper-Cam LWIR

- Description de l'instrument :

L'imageur Hyper-Cam LWIR est un instrument de télédétection hyperspectral qui combine une caméra IR et un FTIR ce qui permet d'acquérir des images avec une haute résolution spatiale, spectrale et temporelle. Il a été développé par la société canadienne Telops et a été loué à l'occasion de la campagne de mesures. A l'aide d'un interféromètre de Michelson, dont le schéma de principe est présenté sur la Figure 2.6, l'instrument capture la radiance dans l'infrarouge thermique dans la fenêtre spectrale 840-1300 cm⁻¹ (i.e. 7.7-11 μm) de la scène visée et enregistre un spectre haute résolution pour chaque pixel de l'image aux dimensions choisies, comme l'illustre le schéma sur la partie droite de la Figure 2.7.

Le détecteur de l'imageur (i.e. matrice de plan focal) permet d'acquérir des images pouvant atteindre au plus 320 × 256 pixels. Le champ de vue est de 6.4 × 5.1°, mais peut être modifié à l'aide de différents optiques. Lors de la campagne IMAGETNA un télescope externe a permis d'élargir par un facteur 4 le champ de vue, donnant alors un champ de vue de 25.6 × 20.4°. La résolution spectrale est fixée par l'utilisateur avec une valeur allant de 0.25 à 150 cm⁻¹.

Deux corps noirs servent à calibrer l'instrument en fixant une température différente pour chacun d'entre eux. Lors de la campagne IMAGETNA les températures des corps noirs ont été fixées à 15°C et 25°C, sachant qu'il est recommandé d'avoir au minimum une différence de 10°C entre les deux corps noirs. Étant donné les conditions d'humidité et de température lors de la campagne, une température plus faible aurait pu provoquer de la condensation sur les corps noirs.

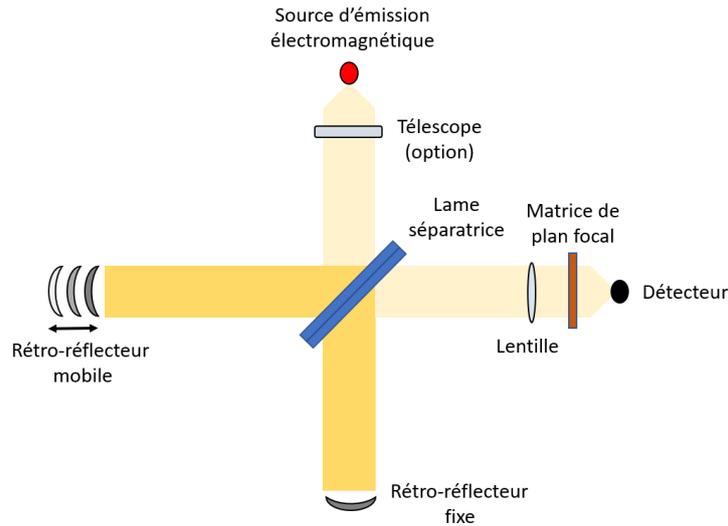


Figure 2.6 – Schéma représentant le principe de l'interféromètre de Michelson de l'Hyper-Cam (Adapté d'une figure de (Moore et al., 2009)).

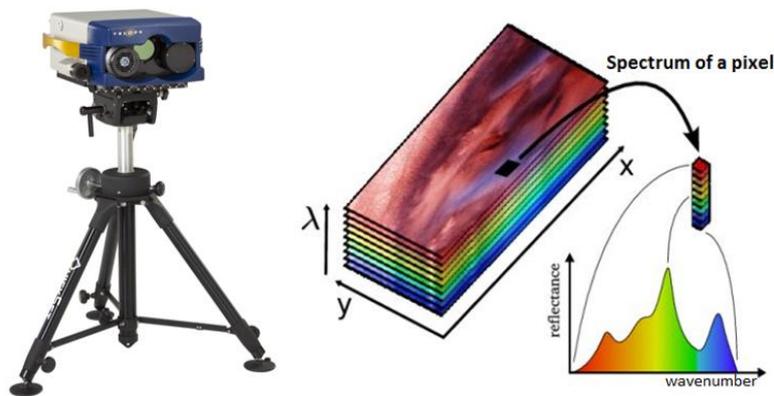


Figure 2.7 – L'imagerieur hyperspectral infrarouge Hyper-Cam de la société Telops (à gauche) et une schématisation des images 3D acquises par l'Hyper-Cam (à droite).

Avant chaque phase de mesures, une calibration radiométrique de l'instrument est effectuée, puis à nouveau à intervalle régulier au cours d'une séquence de mesures. Le temps d'acquisition d'une image est variable. C'est un compromis fait par l'utilisateur entre la résolution spectrale et la résolution spatiale choisies. Le logiciel utilisé pour l'acquisition des images est Reveal Pro 5, un logiciel également développé par la société Telops.

L'ensemble imageur plus trépied pèse plus de 30 kg, ce qui en fait un instrument transportable non sans une certaine difficulté dans des zones non accessible par véhicule.

- Détails des données collectées :

Quelques informations sur les différentes séquences réalisées avec l'Hyper-Cam sont réunies dans le Tableau 2.2. Plusieurs résolutions spectrales, tailles d'images ont été testées. L'intégralité des informations sur les séquences se trouvent en Annexes de ce manuscrit (pages 210 à 218). Plus de 7000 images du panache de l'Etna ont été capturées lors de la campagne de mesures. Une partie de ces images n'est pas exploitable à cause de passages nuageux, de vents forts ou le passage d'individus dans le champ de vue de l'instrument.

Date	Nombre de séquences	Nombre d'images	Durée des mesures	Remarques
22-06-2015	5	848	36'34''	Phase de tests
23-06-2015	5	971	1h23'06''	Très bonnes conditions de mesures, pas de nuages.
24-06-2015	3	313	35'58''	Très nuageux, passages pluvieux
25-06-2015	11	3724	2h13'14''	Rares passages nuageux sur les dernières séquences
26-06-2015	4	1348	49'	Quelques passages de nuages

Tableau 2.2 – Quelques informations sur les séquences de mesures acquises par l'Hyper-Cam lors de la campagne IMAGETNA de juin 2015.

2.3 LARA : un modèle de transfert radiatif et d'inversion de données

Dans le chapitre précédent, les bases de la spectroscopie atmosphérique et de l'interaction rayonnement-matière ont été abordées. Pour remonter aux paramètres atmosphériques constituant le spectre mesuré par un instrument de télédétection, il faut reproduire le transfert radiatif le long de la ligne de visée et minimiser les écarts entre la mesure et la simulation, pour obtenir une solution physiquement réaliste. Pour mes travaux de thèse, le

modèle choisi est le modèle LARA actuellement développé au LATMOS. Ce modèle présente l'avantage de coupler un code de simulation du transfert radiatif raie-par-raie à haute résolution spectrale et un algorithme de minimisation. LARA permet donc de simuler et d'inverser les spectres atmosphériques pour remonter aux densités de colonnes d'espèces chimique du milieu mesuré. Depuis son développement initial, il a été utilisé et adapté plusieurs fois à différents instruments et lignes de visées ((Payan et al., 1998, 2009; Keim et al., 2009; Razavi et al., 2009). Outre les adaptations pour l'ajuster à la configuration des mesures et aux caractéristiques de l'instrument, LARA conserve une structure de base constituée de deux éléments : la simulation du transfert radiatif à partir des données *a priori* fournies en entrée du modèle, et une deuxième partie qui est l'inversion des données avec une méthode de type Levenberg-Marquardt. Ces deux parties du modèle vont être présentées dans les paragraphes suivants tout en ajoutant des notions plus générales, sur certains effets instrumentaux et phénomènes de spectroscopie atmosphérique, que le modèle doit prendre en compte.

2.3.1. Modélisation du transfert radiatif pour des mesures de télédétection infrarouge au sol

La simulation d'un spectre synthétique nécessite de prendre en compte plusieurs caractéristiques : la forme et l'intensité des raies des espèces chimiques présentes le long de la ligne de visée, l'effet de l'instrument sur le spectre, ainsi que l'effet d'autres phénomènes moléculaires telles que les continua. Ces trois effets seront décrits à tour de rôle dans les paragraphes suivants.

2.3.1.1 Equation du transfert radiatif pour les mesures à distance dans un panache volcanique depuis le sol

Pour reproduire le spectre en émission, capturé par un instrument de mesures au sol avec une visée au limbe, il faut calculer le transfert radiatif entre l'altitude de l'instrument et l'altitude du fond de l'atmosphère. De manière générale, on considère que le fond de l'atmosphère se trouve au niveau de la thermosphère, soit à 100 km d'altitude.

La Figure 2.8 représente la géométrie le long de la ligne de visée d'un imageur au sol avec une visée au limbe en présence d'une couche d'intérêt bien spécifique. Cette couche peut être un nuage, un panache volcanique, ou tout autre panache gazeux. Dans notre cas d'étude, cette couche est le panache de l'Etna.

La ligne de visée est composée de trois parties principales que sont l'atmosphère entre l'instrument et le panache, le panache en lui-même et enfin l'atmosphère au-delà du panache.

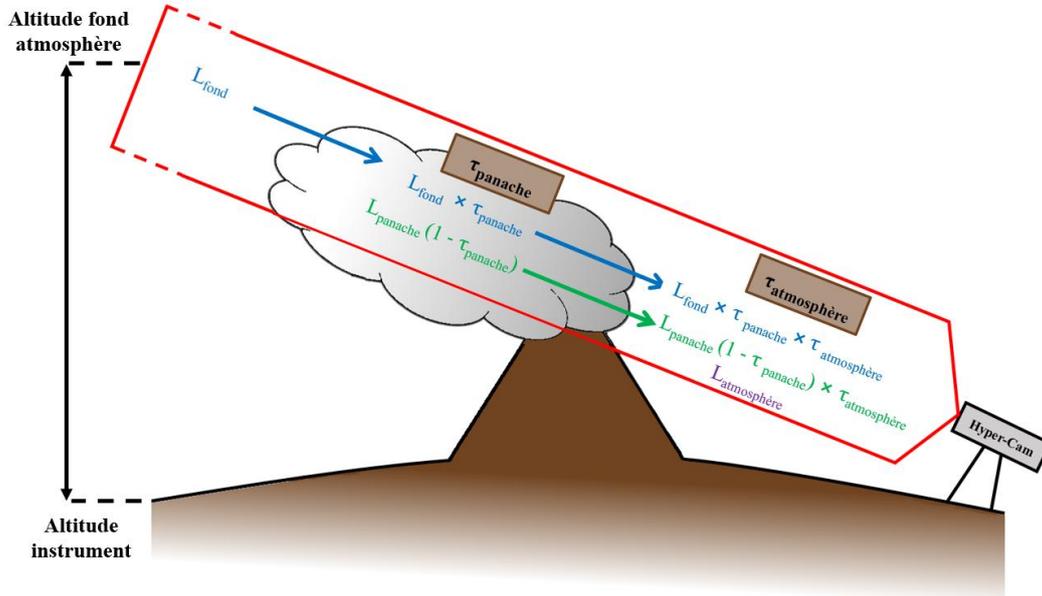


Figure 2.8 – Géométrie le long de la ligne de visée d'un imageur hyperspectral infrarouge pour l'équation du transfert radiatif pour la mesure par télédétection d'un panache volcanique depuis le sol.

Ces trois couches regroupent les grandeurs présentes dans l'équation du transfert radiatif de forme réduite suivante :

$$L_{totale} = \left(L_{fond} \times t_{panache} + L_{panache} \times (1 - t_{panache}) \right) \times t_{atmosphère} + L_{atmosphère} \quad (2.1)$$

Avec :

- L_{tot} : la luminance totale reçue par l'instrument,
- L_{fond} : la luminance provenant du fond de l'atmosphère,
- $L_{panache}$: la luminance propre au panache,
- $L_{atmosphère}$: la luminance de l'atmosphère entre le panache volcanique et le capteur de l'imageur,
- $t_{panache}$: la transmittance du panache,

- $t_{atmosphère}$: la transmittance de l'atmosphère entre le panache volcanique et le capteur de l'imageur.

La forme des raies dans le spectre simulé par LARA est calculée à partir d'un profil de Voigt en se basant sur les paramètres Lorentziens listés dans la base de données spectroscopiques HITRAN (*HIGH-resolution TRANsmission molecular absorption database*).

2.3.1.2 Calcul raie-par-raie

Dans l'infrarouge, nous devons prendre en compte ce que l'on appelle un spectre de raies. Pour pouvoir discrétiser le transfert radiatif atmosphérique, l'atmosphère est définie comme une succession de n couches homogènes isothermes et isobares avec des longueurs différentes. Ainsi, la luminance émergeant de chaque couche $\{k, k = 1, \dots, n\}$, vaut alors :

$$L_k = L_{k-1}t_k + B_k(\bar{T}_k)[1 - t_k] \quad (2.2)$$

Où les transmissions t_k par couche k s'écrivent :

$$t_k = \exp \left[- \sum_i \left(\sum_j s_{\tilde{\nu}_j}^{N_i}(\bar{T}_k) \varphi_V(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_j, \bar{P}_k, \bar{T}_k) + \sigma_e^{N_i}(\tilde{\nu}, \bar{P}_k, \bar{T}_k) \right) \bar{C}_{i,k} \right] \quad (2.3)$$

Avec :

- i : les différentes espèces absorbantes,
- j : l'ensemble des raies de chaque espèce,
- $s_{\tilde{\nu}_j}^{N_i}$: l'intensité de la raie j de l'espèce i ,
- φ_V : le profil de raie de Voigt,
- t_k : la transmittance de la couche k ,
- \bar{P}_k : la pression moyenne dans la couche k ,
- \bar{T}_k : la température moyenne dans la couche k ,
- $\bar{C}_{i,k}$: la colonne partielle moyenne de l'espèce i (en molécules.cm⁻²) dans la couche k .

Ainsi, en partant de la mesure spectrale L_{tot} , il est en théorie possible de remonter à la colonne $\bar{C}_{i,k}$ d'une espèce i à l'altitude de la couche k tant que la mesure est suffisamment résolue spectralement pour l'espèce en question.

2.3.1.3 Sections efficaces et *look-up tables*

Comme il a déjà été expliqué précédemment, la forme du spectre mesuré est le résultat de l'association des raies d'émission des diverses espèces chimiques présentes le long de la ligne de visée. Le modèle de transfert radiatif doit donc prendre en compte l'effet des raies à partir de bases de données spectroscopiques pour les gammes de température et de pression des conditions atmosphériques au moment de la mesure. Pour cela nous utilisons des tables que l'on appelle « *look-up tables* » regroupant ces caractéristiques. Il existe plusieurs bases de données spectroscopiques telles que HITRAN ou GEISA (Gestion et Etude des Informations Spectroscopiques Atmosphériques). LARA utilise les données spectroscopiques issues de HITRAN 2012 (Rothman et al., 2013).

A partir de ces « *look-up tables* » et dans un souci de gain de temps de calcul, les sections efficaces des espèces chimiques sont précalculées en se basant sur les valeurs de pression et température du fichier de géométrie de la ligne de visée. Cette étape permet d'enregistrer les sections efficaces et de ne pas avoir à renouveler cette opération à chaque itération du modèle du moment que le fichier de géométrie ne change pas.

2.3.1.4 Fonction d'appareil

Précédemment, nous avons établi la relation qui existe entre un spectre mesuré en émission thermique et les différents constituants de l'atmosphère, via l'équation du transfert radiatif. S'en tenir seulement aux composants atmosphériques biaiserait la simulation du spectre synthétique. En effet les spectres mesurés tiennent aussi compte d'autres phénomènes qui viennent s'ajouter au calcul direct raie-par-raie. L'un de ces phénomènes complètement indépendants des raies spectroscopiques est l'influence de l'instrument avec lequel les spectres sont mesurés. Chaque instrument a une signature spécifique sur les spectres qu'il mesure. Il faut donc aussi en tenir compte lors du calcul des spectres synthétiques. On appelle cette signature la fonction de réponse de l'instrument (ILS : *Instrument Line Shape* en anglais), ou fonction d'appareil. Le spectre simulé doit être convolué avec cette fonction d'appareil pour reproduire la dégradation causée par des limitations instrumentales.

LARA permet d'utiliser deux types de fonctions d'appareil. Elle peut être soit une fonction de type gaussienne / lorentzienne ou une fonction sinus cardinal (voir un mélange pondéré de ces deux formes). Les allures de ces deux fonctions d'appareil simulées par LARA sont présentées dans la Figure 2.9. Pour cet exemple, les fonctions d'appareil sont calculées

pour un demi-intervalle spectrale de 50 cm^{-1} , une résolution de 2.016 cm^{-1} et un pas de calcul de 0.005 cm^{-1} . La largeur à mi-hauteur de ces fonctions dépend de la résolution de l'instrument.

Le spectre synthétique est défini comme le produit de convolution du spectre à résolution infinie T_{calc} par la fonction d'appareil Fap :

$$T_{spec}(\tilde{\nu}) = T_{calc}(\tilde{\nu}) \otimes Fap(\tilde{\nu}) \quad (2.4)$$

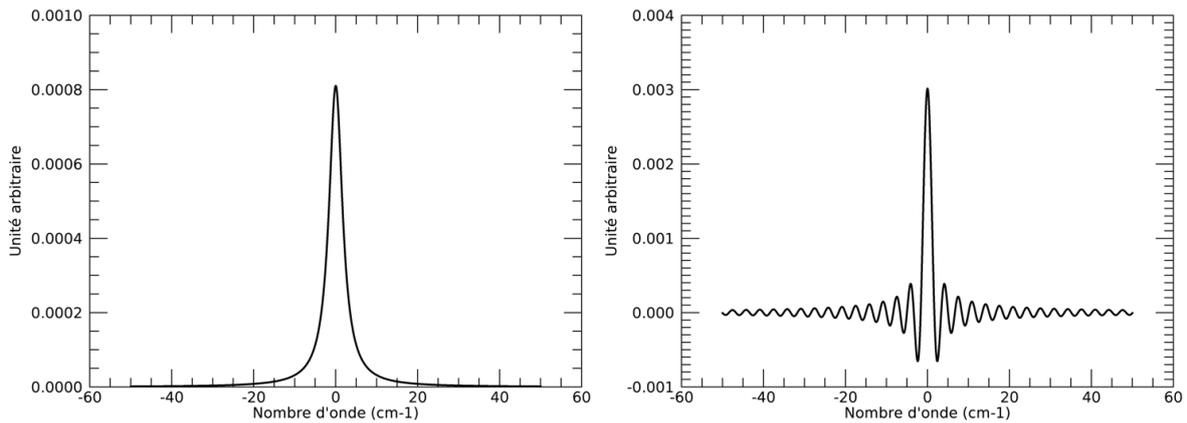


Figure 2.9 – Fonctions d'appareil gaussienne/lorentzienne (à gauche) et sinus cardinal (à droite) avec un demi-intervalle spectrale de 50 cm^{-1} et un pas de calcul de 0.005 cm^{-1} pour une résolution de 2.016 cm^{-1} .

2.3.1.5 Le continuum de la vapeur d'eau

Pour simuler le transfert radiatif il faut également prendre en compte un autre phénomène moléculaire qui est le continuum de la vapeur d'eau. Il tient un rôle important dans le calcul du bilan énergétique de l'atmosphère terrestre. L'origine exacte du continuum de la vapeur d'eau est source de beaucoup de questionnement depuis plusieurs décennies (Shine et al., 2012). Un début d'explication vient de l'absorption due à différents « phénomènes physiques » comme l'absorption des ailes lointaines des raies permises du monomère H_2O , celle des dimères stables ou métastables comme : $\text{H}_2\text{O}-\text{H}_2\text{O}$ ou $\text{H}_2\text{O}-\text{N}_2$, ou encore celle induite par collision.

Ce continuum de la vapeur d'eau est pris en compte dans LARA grâce au modèle empirique MT-CKD (Clough et al., 2005). Ce phénomène atmosphérique fait encore l'objet d'études car il reste en partie incompris (Lechevallier et al., 2018).

2.3.1.6 L'extinction des aérosols

En plus de la contribution des molécules de l'atmosphère, la contribution des aérosols le long de la ligne de visée a été spécialement paramétrisée dans LARA pour cette étude du panache volcanique de l'Etna. Cette paramétrisation est d'autant plus importante si l'on se place dans le contexte du cas d'étude de mesures hyperspectrales infrarouges d'un panache volcanique.

La Figure 2.10 montre des résultats de la simulation de l'extinction de trois types d'aérosols, typiquement présents dans un panache volcanique : les gouttelettes d'eau, les cendres et l'acide sulfurique (H_2SO_4). D'après une étude de Allen et al. (2006) (Allen et al., 2006) sur des mesures de la distribution en tailles des particules du panache de l'Etna proche de la source d'émission (été 2004), trois diamètres de particules sont présentés : 0.5 , 1 et 5 μm , qui sont les diamètres de particules qui ressortent des résultats de leur étude. Ces calculs ont été faits avec un modèle de Mie pour les différents diamètres de particules, avec une concentration de $10^6 L^{-1}$, dans la gamme spectrale de l'Hyper-Cam (i.e. 850 – 1300 cm^{-1}) (courtoisie de H. Herbin). Les indices de réfraction utilisés pour ces trois types de particules sont tirés de Deguine et al. (2020) (Deguine et al., 2020) pour les cendres de l'Etna, Downing and Williams (1975) (Downing and Williams, 1975) pour les gouttelettes d'eau et de Biermann et al. (2000) (Biermann et al., 2000) pour l'acide sulfurique (fraction massique de 57 %m).

L'allure des variations des coefficients d'extinction des trois types d'aérosols est similaire pour les diamètres de particules de 0.5 et 1 μm avec différents pics bien distincts pour l'acide sulfurique et les cendres, comparée à celle des extinctions pour des diamètres de 5 μm qui est plus lissée. Plus le diamètre des aérosols est grand, plus l'extinction de ces aérosols est importante. Pour des aérosols de 0.5 μm les extinctions de la vapeur d'eau, de l'acide sulfurique et des cendres se situent entre ~ 0.05 et $0.47 km^{-1}$. Elles sont entre ~ 0.5 et $3.25 km^{-1}$ pour les diamètres de 1 μm et entre ~ 10 et $65 km^{-1}$ pour les particules de 5 μm de diamètre. L'extinction de la vapeur d'eau est relativement constante. Il faut rappeler que ces valeurs d'extinction sont directement liées à la valeur de la concentration des aérosols de $10^6 L^{-1}$, utilisée pour les simulations. Si la concentration était de $10^5 L^{-1}$, les valeurs de coefficients d'extinction seraient divisées par 10.

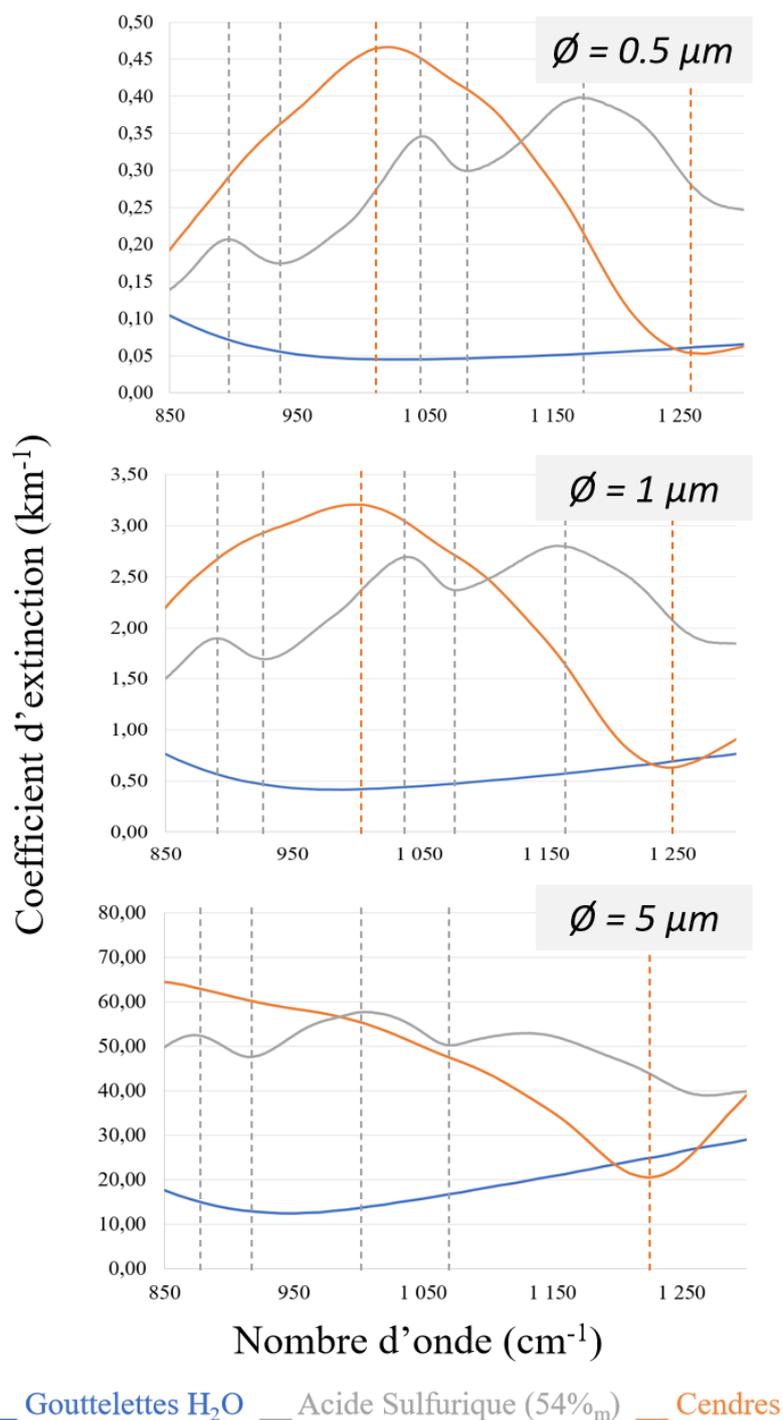


Figure 2.10 – Coefficients d’extinction des gouttelettes d’eau (bleu), de l’acide sulfurique (gris) et des cendres (orange) pour trois diamètres de particules différents : 0.5 μm (haut), 1 μm (milieu) et 5 μm (bas), calculés par un code de Mie pour une concentration de 10^6 L^{-1} .

Si l’on reprend les observations précédentes, on peut noter que l’extinction des aérosols peut être paramétrisée comme une droite, croissante ou décroissante, entre les pics marqués par des lignes hachurées sur la Figure 2.10. Pour l’acide sulfurique, les pics se situent autour de ~

890, 930, 1050, 1090, 1180 et 1250 cm^{-1} pour les particules ayant un diamètre de 0.5 ou 1 μm , et autour de 875, 916, 1010, 1070 et 1260 cm^{-1} pour le diamètre de 5 μm . Pour l'extinction des cendres, les diamètres de 0.5 et 1 μm , ont deux pics situés autour de 1010 et 1250 cm^{-1} et seulement un pic autour de 1220 cm^{-1} pour les particules de 5 μm de diamètre.

Lorsque l'on considère des micro-fenêtres spectrales, cette dépendance peut être négligée. Dans le cas de fenêtres spectrales plus larges, comme cela est le cas dans mon travail de thèse, il est primordial de prendre en compte cette dépendance spectrale de l'extinction des aérosols pour limiter l'erreur sur l'inversion des densités de colonnes d'une espèce d'intérêt.

Dans LARA, la prise en compte de la contribution des aérosols du panache de l'Etna, a été spécifiquement effectuée pour ces travaux.

Pour une couche k , la contribution des aérosols est paramétrisée suivant la relation :

$$EO(k, \tilde{\nu}) = \alpha_{panache}(\tilde{\nu}) \cdot \exp\left(-\left(\frac{Z_k - Z_{panache}}{Ep_{panache}}\right)^2\right) \quad (2.5)$$

Où :

$$\alpha_{panache}(\tilde{\nu}) = \alpha_{panache}^0 + \alpha_{panache}^1(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_1) \quad (2.6)$$

Avec :

- $EO(k, \tilde{\nu})$: l'épaisseur optique pour une couche k et un nombre d'onde $\tilde{\nu}$,
- Z_k : l'altitude effective de la couche k ,
- $Z_{panache}$: l'altitude du centre du panache (i.e. l'altitude où l'épaisseur optique est supposée être maximale),
- $Ep_{panache}$: la demi-épaisseur du panache,
- $\alpha_{panache}(\tilde{\nu})$: l'extinction maximale dans le panache au nombre d'onde $\tilde{\nu}$. La dépendance au nombre d'onde est prise en compte par une droite de pente $\alpha_{panache}^1$ et d'origine $\alpha_{panache}^0$ (domaine spectrale de calcul $[\tilde{\nu}_1, \tilde{\nu}_2]$).

Le terme $\alpha_{panache}^1$ permet la prise en compte de la dépendance spectrale de l'extinction des aérosols. L'extinction se trouve être ici une droite dont le coefficient directeur est définie par $\alpha_{panache}^1$ tandis que $\alpha_{panache}^0$ sera la valeur de l'ordonnée à l'origine de cette droite.

Ainsi pour chaque inversion de spectres de l'image, un profil de l'extinction due aux aérosols est généré par LARA en prenant en compte la dépendance spectrale.

2.3.2 L'inversion des données spectrales

2.3.2.1 Le concept de l'inversion

Lorsqu'on se trouve dans le cas de mesures *in situ*, il est souvent possible de déterminer les paramètres atmosphériques tels que la température, la pression ou la concentration du constituant d'intérêt, il n'est alors pas toujours nécessaire d'avoir recours à un algorithme d'inversion. Cependant, dans le cas de mesures à distance, ces informations ne sont pas connues et il faut pour chaque instrument mettre au point un algorithme permettant, à partir des spectres mesurés, de remonter aux profils de concentration recherchés, c'est à dire la résolution d'un problème inverse. On utilise le terme générique de méthodes d'inversion pour désigner les algorithmes ayant cet usage. Les différents processus permettant de remonter par exemple au profil vertical d'une espèce par une méthode d'inversion sont présentés dans la Figure 2.11. Dans tous les cas, il faut savoir traiter le problème direct, c'est-à-dire disposer d'un algorithme permettant de calculer un spectre à partir d'un état donné de l'atmosphère et de la géométrie de la visée de l'instrument.

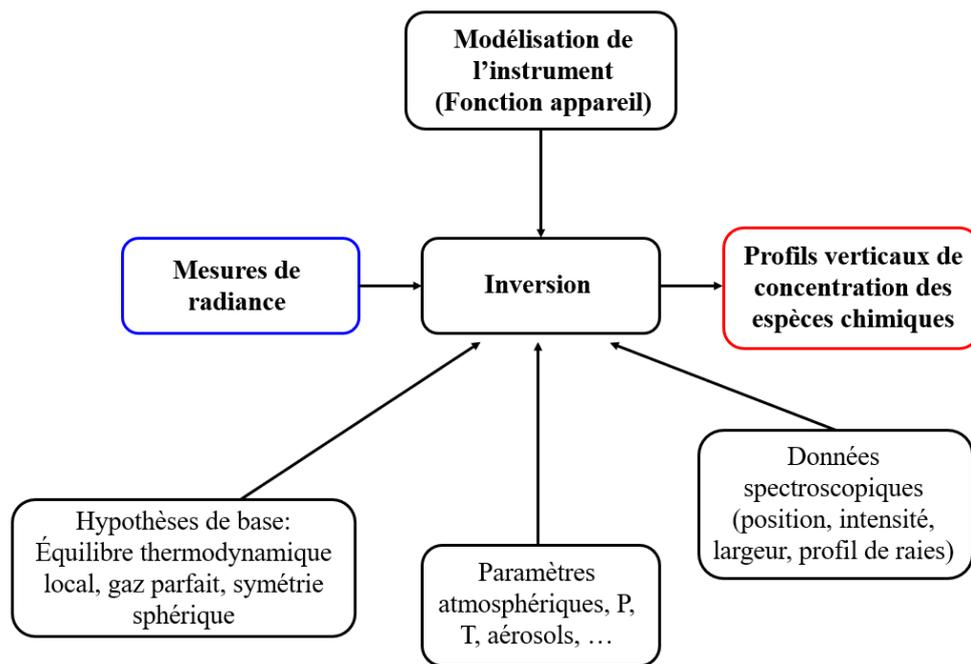


Figure 2.11 – Schématisation du processus d'inversion permettant de remonter aux profils verticaux de la concentration des espèces chimiques à partir de mesures de radiance.

Pour cela il faut utiliser au mieux l'information disponible. Dans le cas d'images hyperspectrales infrarouges, il s'agit de l'information contenue dans l'ensemble des spectres de

l'image correspondant à des situations atmosphériques différentes et donc caractéristiques de la scène avec une visée au limbe. Le signal infrarouge dépend de différents facteurs comme la température à l'intérieur des différentes couches traversées, la pression ou encore le rapport de mélange des espèces composant le milieu traversé par la ligne de visée de l'instrument. Ces différents paramètres d'entrée proviennent de bases de données, de radiosondage et d'hypothèses spécifiques à la condition dans lesquelles les mesures ont été effectuées. Le but est de suffisamment contraindre l'algorithme avec ces éléments pour obtenir une solution physiquement juste.

Le modèle LARA permet de remonter à cette information physique, grâce à son modèle d'inversion des spectres permettant de déterminer les profils verticaux de concentration des constituants atmosphériques. L'ajustement des spectres étant l'élément nous garantissant la robustesse de la caractérisation des espèces tirées des mesures il est important d'en détailler le concept dans ce manuscrit.

2.3.2.2 Méthode d'ajustement des spectres par les moindres carrés

La rédaction de ce qui suit dans ce chapitre, est inspirée de la thèse de Victor Feirreira (Ferreira, 2005) et du cours sur les algorithmes d'inversion de Sébastien Payan (Cours sur l'inversion des données [3]) qui utilisent par ailleurs les notations introduites par Rodgers et Clough et al. (Rodgers, 2000; Clough et al., 1995).

Nous utiliserons dans les équations qui suivent les notations suivantes :

- i : indice correspond à un élément spectral donné,
- n_{pt} : le nombre total d'éléments spectraux considérés,
- np : le nombre de paramètres à déterminer
- j (ou k) : indice représentant un des np paramètres à déterminer,
- y : la grandeur mesurée (ici la radiance spectrale),
- \hat{y} (ou $f(x)$) : la radiance calculée par le modèle ou spectre synthétique,
- x : les paramètres à déterminer,
- e : l'écart entre les spectres calculés et mesurés ou résidus.

La détermination des paramètres ne sera évidemment possible que si la condition $n_{pt} \geq np$ est vérifiée. La relation linéaire générale liant les grandeurs mesurées aux paramètres du modèle s'écrit sous la forme :

$$y_i = \hat{y}_i + e_i = f_{ij}(x_j) + e_i \quad (2.7)$$

Dans le cas simple d'une solution par un modèle linéaire, l'équation (2.7) peut être réécrite sous forme matricielle :

$$Y = \hat{Y} + E = FX + E \quad (2.8)$$

Pour reproduire au mieux la mesure, nous cherchons à déterminer les paramètres x_j pour lesquels les écarts e_i ($= y_i - f_{ij}(x_j)$) sont les plus faibles possibles. Cela revient à minimiser la fonction de χ^2 défini par :

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^{npt} \frac{(y_i - \hat{y}_i)^2}{(\Delta y_i)^2} = \sum_{i=1}^{npt} (y_i - \hat{y}_i)^2 w_i \quad (2.9)$$

Où :

- Δy_i : représente l'écart type sur la mesure y_i ,
- $w_i = 1/\Delta y_i^2$: le poids correspondant.

Le χ^2 réduit représente le χ^2 par degré de liberté. Il est défini par la relation suivante :

$$\chi_{réduit}^2 = \frac{\chi^2}{npt - np} \quad (2.10)$$

La valeur du critère illustrant la qualité de l'ajustement sera d'autant meilleure au sens statistique qu'elle sera proche de 1. Ainsi, lorsque le $\chi_{réduit}^2$ est > 1 , l'inversion n'est pas satisfaisante mais peut cependant parfois être considérée comme correcte jusqu'à une valeur limite ($1 \leq \chi_{réduit}^2 \leq 10$, par exemple), de même, lorsque le $\chi_{réduit}^2$ est < 1 , les valeurs des erreurs sur les mesures sont vraisemblablement surestimées.

Les paramètres recherchés (x_j) étant ceux qui doivent minimiser le χ^2 , l'équation (2.9) peut s'écrire sous la forme matricielle :

$$\chi^2 = E^T W E \quad (2.11)$$

Où E^T est la transposée de la matrice $E = Y - \hat{Y}$ et où W est la matrice diagonale ayant pour éléments diagonaux les poids w_i (inverse des variances).

Lorsqu'il y a corrélation entre les points spectraux, il arrive que la matrice W ait des éléments non diagonaux. Pour que le χ^2 soit minimum, il est nécessaire que sa dérivée par rapport à chaque paramètre soit nulle :

$$\left(\frac{\partial \chi^2}{\partial x}\right) = 0 \Leftrightarrow \left(\frac{\partial \chi^2}{\partial x_j}\right) \text{ pour } j \in [1, np], j \in |N| \quad (2.12)$$

En utilisant la notation matricielle (2.11) et en utilisant l'expression de E déduite de l'équation (2.8), l'équation ci-dessus peut s'écrire :

$$\frac{\partial}{\partial x} \{(Y - Fx)^T W (Y - Fx)\} = 0 \quad (2.13)$$

En utilisant la théorie des matrices on montre que l'équation précédente est équivalente à :

$$(F^T W F)x = F^T W Y \quad (2.14)$$

L'équation (2.14), appelée équation normale, a pour solution :

$$x = (F^T W F)^{-1} F^T W Y \quad (2.15)$$

Si $ntp - np \gg 1$, une estimation de l'erreur sur les paramètres recherchés, avec un intervalle de confiance de 68%, est donnée par :

$$\left[x_j - \sqrt{(F^T W F)^{-1}_{jj}} \chi^2, x_j + \sqrt{(F^T W F)^{-1}_{jj}} \chi^2 \right] \quad (2.16)$$

Où x_j est l'estimation déduite de l'équation (2.15) pour le $j^{\text{ème}}$ paramètre recherché.

Néanmoins dans la plupart des cas, les modèles utilisés pour reproduire la mesure ne sont pas linéaires. Dans ce cas-là il est possible de linéariser l'équation (2.7) en modifiant les poids w_i .

Lorsque la relation entre les valeurs mesurées et les paramètres du modèle est intrinsèquement non linéaire dans l'équation (2.7), il est possible de linéariser le modèle par un développement de Taylor. Cela permet par la suite de pouvoir appliquer la méthode des moindres carrés linéaires ou la méthode des moindres carrés avec amortissement dans le cas où la variation des valeurs des paramètres du modèle est trop sensible au bruit de mesure.

Les moindres carrés avec amortissement permettent au cours du processus itératif de limiter la variation des paramètres. Cela revient à remplacer la fonction du χ^2 par une autre fonction Z appelée fonction coût définie par :

$$Z = E^T W E + \lambda \Delta x^T S_a^{-1} \Delta x \quad (2.17)$$

Avec :

$$E = Y - \hat{Y} = Y - F(x) \quad (2.18)$$

Où λ est le paramètre d'amortissement et où S_a est une estimation *a priori* de la matrice variance-covariance des paramètres. Ainsi, les variations trop importantes des paramètres sont pénalisées au cours du processus itératif, par rapport à leurs erreurs telles qu'elles peuvent être estimées *a priori*. En effet, les éléments diagonaux de la matrice variance-covariance donnent une estimation statistique de l'erreur sur la détermination des paramètres. L'introduction d'un amortissement implique une contrainte sur la variation de ces paramètres, lors de l'ajustement dans un domaine limité approximativement, par la valeur de leurs erreurs.

Cela permet, après linéarisation, à la minimisation de la nouvelle fonction Z définie par l'équation (2.17) de conduire à un nouvel accroissement calculable par :

$$\Delta x = (K^T W K + \lambda S_a^{-1})^{-1} K^T W (Y - F(x)) \quad (2.19)$$

On retrouve sous cette forme l'expression utilisée par Rodgers (Rodgers, 2000).

Deux situations sont à éviter :

- Un amortissement λ trop fort ferait que la solution resterait confinée autour de la solution initiale x^0 , même si elle est loin de la solution optimale.
- Un amortissement λ trop faible reviendrait à se ramener à une méthode des moindres carrés sans amortissement ($\lambda=0$).

La valeur du terme d'amortissement λ peut changer au cours du processus d'itération. En principe cette valeur tend vers zéro lorsque la méthode converge. Dans les faits, lorsque la solution semble être correcte, la valeur est utilisée comme valeur initiale avec un amortissement égale à zéro pour vérifier que la nouvelle solution reste proche de la solution initiale. C'est à dire que les écarts demeurent inférieurs aux erreurs sur les paramètres recherchés. Ainsi, le choix du paramètre λ va plus ou moins accélérer la convergence du modèle sans affecter la solution trouvée.

2.3.2.3 Méthode de Levenberg-Marquardt

Certaines méthodes de minimisation, comme la méthode des moindres carrés, se ramènent à une solution de forme linéaire de la relation entre les grandeurs mesurées et les

paramètres que l'on cherche à déterminer. LARA utilise une méthode dite de Levenberg-Marquardt qui est une procédure qui permet de trouver une solution à un problème de minimisation d'une fonction non linéaire à plusieurs variables en linéarisant une fonction coût. Cela passe par une amélioration des valeurs des paramètres à déterminer par un processus itératif en minimisant la valeur de la fonction de mérite χ^2 (fonction coût). Cette partie s'inspire également de *Numerical Recipes in Fortran* (Press et al., 1992).

En supposant que la fonction χ^2 puisse être approximée par une forme quadratique :

$$\chi^2(X) = \chi^2(X^0) + (X - X^0)^T B + \frac{1}{2} (X - X^0)^T D (X - X^0) \quad (2.20)$$

où B est le vecteur gradient avec :

$$b_j = \frac{\partial \chi^2(X^0)}{\partial x_j} = -2 \sum_{i=1}^{npt} w_i (y_i - \hat{y}_i) \frac{\partial \hat{y}_i}{\partial x_j} \quad j = 1, np \quad (2.21)$$

et D la matrice Hessienne avec:

$$d_{j,k} = \frac{\partial^2 \chi^2(X^0)}{\partial x_j \partial x_k} = 2 \sum_{i=1}^{npt} w_i \left(\frac{\partial \hat{y}_i}{\partial x_j} \frac{\partial \hat{y}_i}{\partial x_k} - (y_i - \hat{y}_i) \frac{\partial^2 \hat{y}_i}{\partial x_j \partial x_k} \right) \quad j, k = 1, np \quad (2.22)$$

Afin de se ramener à une écriture matricielle, on définit la matrice K et la matrice L de la manière suivante :

$$K_{i,j} = \frac{\partial \hat{y}_i}{\partial x_j} \quad j = 1, np \quad \text{et} \quad i = 1, npt \quad (2.23)$$

$$L_{i,j,k} = \frac{\partial^2 \hat{y}_i}{\partial x_j \partial x_k} \quad j, k = 1, np \quad \text{et} \quad i = 1, npt \quad (2.24)$$

On peut alors exprimer le vecteur B et la matrice D de la manière suivante :

$$B = -2K^T W E \quad (2.25)$$

$$D = 2(K^T W K + L^T W E) \quad (2.26)$$

Si $\Delta X = X - X^0$, on peut réécrire l'équation (2.20) sous la forme :

$$\chi^2(X) = \chi^2(X^0) - 2\Delta X^T K^T W E + \Delta X^T (K^T W K + L^T W E) \Delta X \quad (2.27)$$

En dérivant l'équation (2.27) par rapport à X , on obtient³ :

$$\nabla\chi^2(X) = -2K^TWE + 2(K^TWK + L^TWE)\Delta X \quad (2.28)$$

Si X minimise $\chi^2(X)$ alors $\nabla\chi^2(X) = 0$ et d'après (2.28) on a :

$$\Delta X = (K^TWK + L^TWE)^{-1}(K^TWE) \quad (2.29)$$

Si l'incrément ΔX correspond à une amélioration du χ^2 alors de nouvelles valeurs sont données aux paramètres pour l'itération suivante :

$$X \rightarrow X^0 + \Delta X \quad (2.30)$$

Pour pouvoir utiliser l'équation (2.29) de l'incrément, il faut que le gradient et la matrice Hessienne du χ^2 soit calculable. Ceci ne pose en principe pas de problème étant donné que l'on sait écrire le modèle direct. En effet, le χ^2 de l'expression (2.9) dépend juste des valeurs de la grandeur mesurée, de leur estimation faite par le modèle direct ($\hat{Y} = F(x)$) et de l'incertitude qui existe entre la valeur mesurée et l'estimation du modèle. La dérivée par rapport aux paramètres recherchés ne laisse que le terme dépendant du modèle donc le calcul des dérivées est possible.

On peut constater que les éléments des matrices K et L , permettant le calcul de la matrice Hessienne (expression (2.25)), dépendent des dérivées premières et des dérivées secondes du χ^2 (expression (2.22) et (2.23)) par rapport aux paramètres. Il arrive parfois que certains traitements classiques ignorent les dérivées secondes sans toujours justifier cette approximation. Le terme qui est multiplié par la dérivée seconde est $(y_i - \hat{y}_i)$. Pour un modèle bien adapté, on considère que ce terme doit être proche de l'erreur aléatoire sur la mesure en chaque point et doit généralement ne pas être corrélé avec le modèle. Ainsi, les termes de dérivées secondes tendent à s'annuler lorsque l'on somme sur les points de mesures. En outre, il faut remarquer que la présence des termes dérivées secondes peut être déstabilisante si le modèle reproduit mal les points de mesures ou s'il est contaminé par des points aberrants (aussi appelés « *outliers* ») qui seront difficilement « compensés » par des points avec des écarts de signes opposés.

A la lumière de ces explications, nous utilisons donc comme définition des éléments de la matrice Hessienne. Nous nous plaçons ici dans ce cas après quelques explications.

³ ∇ est l'opérateur Laplacien.

Le terme de dérivée seconde peut être écarté lorsqu'il est nul (en cas de dépendance linéaire), ou suffisamment petit pour être négligé devant les termes qui font intervenir les

$$D = 2K^T WK \quad (2.31)$$

et nous réécrivons l'expression (2.29) sous la forme :

$$\Delta X = (K^T WK)^{-1} (K^T WE) \quad (2.32)$$

Si maintenant l'expression (2.27) est une mauvaise approximation locale de la fonction que l'on cherche à minimiser, la méthode du gradient de plus forte pente à pas prédéterminé (*steepest descent method*) consiste à estimer une nouvelle valeur des paramètres recherchés à partir du vecteur gradient multiplié par un coefficient d'amortissement μ positif et suffisamment petit pour que cette estimation ne donne pas une valeur de X trop éloignée de la solution de départ X^0 soit :

$$\Delta X = -\mu B = -\mu 2K^T WE \quad (2.33)$$

et on détermine de cette façon une nouvelle valeur des paramètres (expression (2.30)).

On considère deux méthodes correspondant aux cas où le modèle représente bien et mal les mesures lorsqu'on utilise un développement à l'ordre 2 de la fonction à minimiser. La méthode de Levenberg-Marquardt permet de réunir ces deux méthodes en une méthode unique. La méthode du gradient de plus forte pente à pas prédéterminé (2.33) est utilisée loin du minimum, laissant graduellement la place à la méthode de la Hessienne inverse (2.32) lorsqu'on s'approche du minimum. Cette méthode est bien sûr itérative et permet de déterminer une solution de proche en proche en modifiant à chaque étape l'importance relative des deux processus permettant la diminution du χ^2 .

Le χ^2 est sans dimension alors que les éléments de B ont la dimension de $1/x_j$ (chaque élément de B peut être de dimension différente). La constante multiplicative μ dans l'équation (2.33) doit par conséquent avoir la dimension de x_j^2 . Ainsi l'inverse des éléments diagonaux de la matrice Hessienne $1/(K^T WK)_{j,j}$ (ayant la dimension de x_j^2) nous permettent d'obtenir une estimation des « bornes » de la constante μ , mais cet intervalle pouvant être non réaliste, on le divise par un facteur λ sans dimension avec la possibilité de prendre ce facteur très inférieur à 1 ce qui permet d'augmenter l'intervalle dans lequel se situe la nouvelle solution. On remplace donc l'équation (2.33) en intégrant le facteur 2 dans le coefficient λ par :

$$\Delta x_j = \frac{1}{\lambda(K^T W K)_{j,j}} (K^T W E)_j \Rightarrow \lambda(K^T W K)_{j,j} \Delta x_j = (K^T W E)_j \quad (2.34)$$

et en notation matricielle, on peut écrire :

$$\gamma I \Delta X = K^T W E \quad (2.35)$$

où I est la matrice unité et γ la matrice dont les éléments sont donnés par :

$$\begin{aligned} (\gamma)_{j,j} &= \lambda(K^T W K)_{j,j} \quad j = 1, np \\ (\gamma)_{j,k} &= 0 \quad j, k = 1, np ; j \neq k \end{aligned} \quad (2.36)$$

La relation (2.34) ou (2.35) est vraie uniquement si le terme $1/(K^T W K)_{j,j}$ est positif pour tout k . C'est bien le cas étant donné sa définition (voir équation (2.22)) pour $j = k$ et en négligeant les dérivées secondes.

La méthode de Levenberg-Marquardt réunit les équations (2.34) et (2.32) permettant de déterminer un nouvel incrément ΔX :

$$\Delta X = (K^T W K + \gamma I)^{-1} (K^T W E) \quad (2.37)$$

ce qui revient à définir une nouvelle matrice Hessienne : $D' = K^T W K + \gamma I$

Quand λ est très grand, la matrice D' est « forcée » par ses éléments diagonaux et l'équation (2.27) tend à être identique à l'équation (2.35). Au contraire, lorsque λ est proche de zéro, l'équation (2.27) tend à être identique à l'équation (2.32).

Un ensemble de données de départ étant fixé et pour un choix de paramètres X à inverser, le processus d'inversion est itératif suivant l'organigramme de la Figure 2.12.

Il est nécessaire de fixer un critère pour stopper l'itération car en pratique on n'atteint que rarement l'égalité $\chi^2 = 1$. En fait, le minimum recherché ne correspond qu'à la meilleure estimation statistique des paramètres x_j et un changement des paramètres qui change le χ^2 d'une quantité très inférieure à 1 est rarement significatif. En pratique le processus itératif est stoppé après trois itérations successives où le χ^2 n'aura ni diminué ni augmenté. Une fois le critère de convergence satisfait, il est possible de restituer les profils verticaux ou les colonnes des espèces chimiques.

Lorsqu'un minimum acceptable a été trouvé, la matrice Hessienne D' est recalculée pour $\lambda = 0$, matrice qui, une fois inversée, donne une estimation de la matrice variance-covariance des erreurs sur la détermination des paramètres inversés (les éléments diagonaux de cette matrice correspondant aux variances). On peut alors obtenir un intervalle de confiance (seuil de confiance de 68 %) pour chaque paramètre inversé :

$$\left[x_j - \sqrt{\chi_r^2 (K^T W K)_{jj}^{-1}}, x_j + \sqrt{\chi_r^2 (K^T W K)_{jj}^{-1}} \right] \quad (2.38)$$

où χ_r^2 est le χ^2 réduit (expression (2.10)) et où $(K^T W K)_{jj}^{-1}$ est le $j^{\text{ème}}$ élément diagonal de la matrice Hessienne inverse.

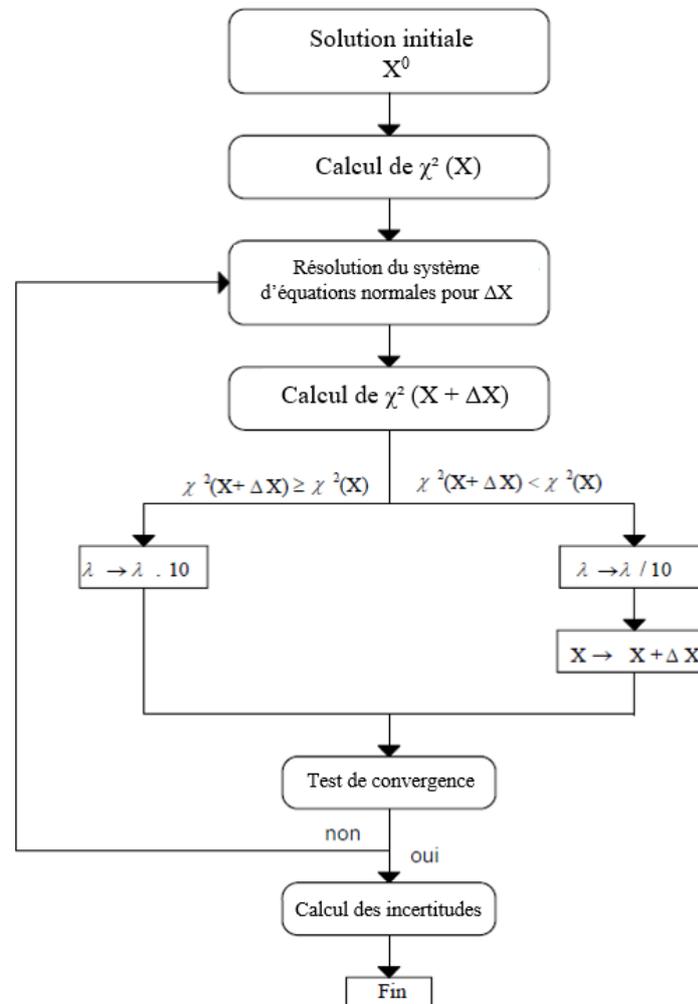


Figure 2.12 – Principe de l'algorithme d'inversion de Levenberg-Marquardt.

Selon Rodgers, l'erreur sur l'inversion est la somme de quatre sources d'erreurs : le lissage, les paramètres du modèle, l'erreur dans la modélisation et le bruit de mesure. Ces erreurs sont à la fois liées à l'instrument et la géométrie de mesure qu'à la connaissance de l'état de l'atmosphère et donc les paramètres spectroscopiques et les conditions de pression et de température.

2.3.2.4 L'information *a priori*

Dans la méthode de Levenberg-Marquardt présentée précédemment, la valeur de la fonction de mérite χ^2 est testée pour une incrémentation de Δx des valeurs des paramètres x que l'on cherche à déterminer. Avec $\Delta x = x - x_0$ où x_0 est la valeur initiale du paramètre dans le modèle. Dans ce cas de figure, l'algorithme de Levenberg-Marquardt peut déterminer une solution qui corresponde bien à un minimum de la fonction de coût mais qui n'ait aucune réalité physique. C'est pour cela que dans les paramètres d'entrée du modèle, une information *a priori* peut être fournie pour introduire une contrainte supplémentaire sur la cohérence des solutions trouvées par le modèle.

L'information *a priori* peut, par exemple, être le profil vertical de concentration d'une espèce chimique que l'on souhaite mesurer. En général, elle correspond à l'état de l'atmosphère, connu, avant la mesure. Le profil *a priori* peut être utilisé pour plus de simplicité comme profil de départ aussi appelé « *first guess* » (Rodgers, 2000).

Cette contrainte supplémentaire est rajoutée à la fonction de coût du modèle. Alors $\Delta x = x - x_0$ devient $x - x_a$ où x_a représente les valeurs *a priori* des paramètres recherchés (avant la mesure), ce qui permet d'avoir une solution de départ qui a un sens physique. Les variations trop importantes des valeurs des paramètres inversés par rapport aux valeurs *a priori* sont pénalisées. Chaque paramètre inversé obtient une nouvelle valeur qui tient compte de l'information *a priori* donné en entrée du modèle qui permet de contraindre la solution dans une domaine de validité physique.

2.4 Adaptation du modèle LARA aux mesures de l'Hyper-Cam au sol du panache de l'Etna

Le modèle LARA avait été développé, à l'origine, pour l'analyse de mesures au limbe depuis un ballon stratosphérique de l'instrument LPMA-DOAS (*Limb Profile Monitor of the Atmosphere - Differential Optical Absorption Spectrometer*) ou au nadir pour les vols IASI-

ballon ou les mesures spatiales IASI ou GOSAT (*Greenhouse Gases Observing Satellite*) (Payan et al., 2016). Pour les mesures au sol de la campagne IMAGETNA, des modifications ont dû être apportées pour répondre aux caractéristiques de la scène mesurée. Cette section vise donc à présenter les différents paramètres d'entrée du modèle spécifiques au cas d'étude. Une série de tests de sensibilité des paramètres introduits pour la définition de la géométrie du panache va également être présentée.

2.4.1 Conditions atmosphériques et géométriques de la visée

Concernant les profils verticaux de température et de pression rendant compte des conditions atmosphériques au moment de la mesure, ils proviennent d'un radiosondage effectué le jour des mesures depuis la station de Trapani au nord-ouest de la Sicile. Les mesures sont faites entre l'altitude du sol (niveau de la mer) et environ 32 km, l'altitude maximale du ballon météorologique. Le reste du profil vertical, soit de 32 km jusqu'à 80 km, provient des fichiers d'analyses de l'ECMWF du même jour. Les profils verticaux complets de température et de pression sont présentés dans la Figure 2.13. Bien que la station de Trapani soit située à environ 200 km de l'Etna, elle se trouve être la station de sondage météorologique la plus proche.

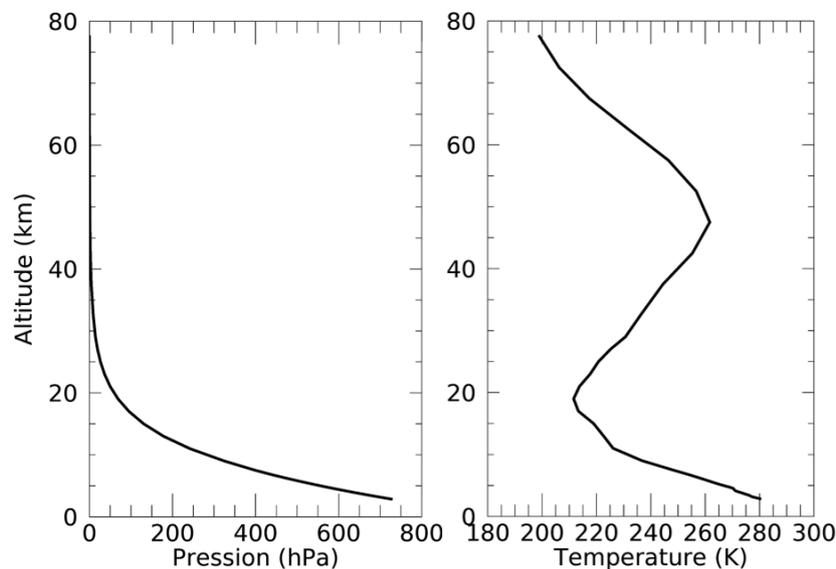


Figure 2.13 – Profils verticaux de pression (à gauche) et de température (à droite) construits à partir du radiosondage effectué depuis la station météorologique de Trapani et des analyses de l'ECMWF du 26 juin 2015.

Dans le fichier de géométrie se trouve également la longueur de chaque couche. Cette longueur prend en compte la réfraction atmosphérique selon l'angle d'incidence qui influe sur le chemin optique. Pour les images de la séquence traitée, l'Hyper-Cam avait un angle de 15° par rapport à l'horizontale.

2.4.2 Géométrie de la ligne de visée

Pour ce qui est du découpage en couches de l'atmosphère le long de la ligne de visée, il est volontairement plus fin sur les premiers kilomètres contenant le panache volcanique. Un fichier contenant les conditions géophysiques des conditions initiales que l'on appelle aussi fichier de géométrie regroupe ces différentes couches. Pour notre étude, la ligne de visée est composée de 43 couches partant de l'altitude de l'instrument, déployé à l'observatoire Pizzi Deneri à 2.8 km d'altitude, jusqu'au sommet de l'atmosphère, considéré comme étant à 80 km d'altitude. Les différentes épaisseurs de couches du découpage de la ligne de visée sont présentées dans le Tableau 2.3. Chaque couche est isotherme et isobare.

Épaisseur des couches (en m)	Altitudes des couches (min – max)
100	2.8 km - 4 km
200	4 km - 5 km
500	5 km - 8 km
2000	8 km - 30 km
5000	30 km - 80 km

Tableau 2.3 – Longueurs des couches le long de la ligne de visée selon l'altitude.

Ce découpage permet également, lors de l'inversion, de sélectionner les couches à l'intérieur desquelles nous souhaitons déterminer la proportion d'une espèce en particulier.

2.4.3 Caractéristiques du panache volcanique

La définition de la géométrie du panache est un autre élément essentiel pour des mesures à distance de panaches volcaniques, pour pouvoir remonter aux paramètres atmosphériques des spectres mesurés par l'imageur hyperspectral Hyper-Cam.

Deux paramètres ont été définis pour caractériser cette géométrie :

- L'altitude du centre du panache, $Z_{panache}$.
- La demi-épaisseur du panache, $E_{p_{panache}}$.

A partir de ces paramètres, la forme générale du panache est considérée comme étant une distribution gaussienne (voir Figure 2.14) avec une hauteur maximale centrée sur l'altitude $Z_{panache}$ et une demi-largeur à mi-maximum égale à $E_{p_{panache}}$. En se basant sur des observations de la forme du panache lors des mesures et les caractéristiques du relief de l'Etna, l'estimation de l'altitude $Z_{panache}$ est de 3.2 km et la demi-épaisseur $E_{p_{panache}}$ de 400m.

Un autre paramètre a été introduit pour caractériser le panache volcanique :

- La température additionnelle du panache $\Delta T_{panache}$ par rapport à la température ambiante.

L'estimation de la température additionnelle dans le panache volcanique se porte sur une valeur faible à cause de la distance de plusieurs centaines de mètres entre la source d'émission et la partie du panache mesurée. On estime cette température additionnelle à +1K.

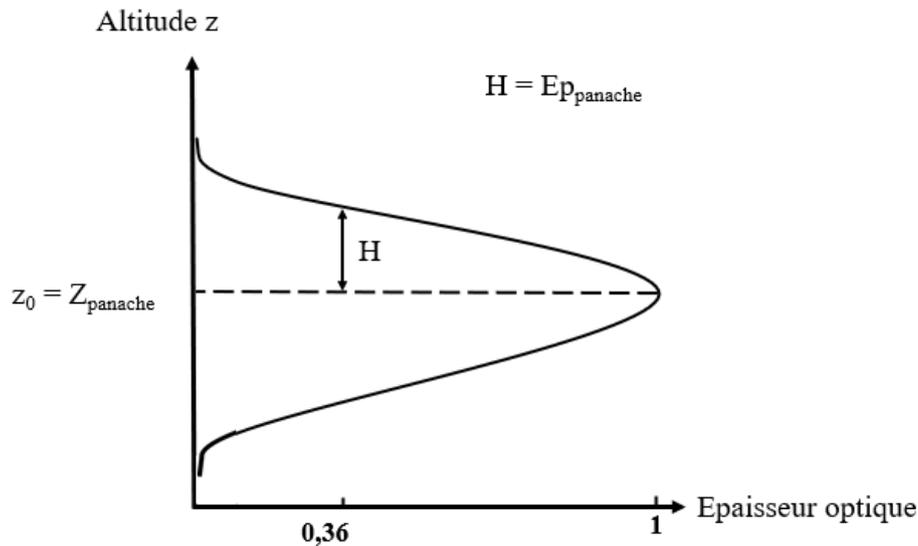


Figure 2.14 – Schématisation de la paramétrisation de la géométrie d'un panache volcanique dans LARA

2.5 Conclusion

Ce chapitre a permis d'introduire les outils et données utilisés pour mes travaux. Le formalisme de la modélisation du transfert radiatif et de l'inversion des données spectrales, pour

des mesures au limbe a été présenté à partir des caractéristiques du modèle LARA utilisé pour traiter les données de l’imageur hyperspectral infrarouge. L’ensemble du processus est résumé dans la Figure 2.15.

Cela nous permet dans le chapitre suivant de présenter la validation des spectres de l’imageur hyperspectral, les tests de sensibilité des paramètres caractéristiques du panache volcanique que j’ai ajoutés au modèle LARA et les résultats d’inversion des spectres des images de la campagne IMAGETNA, utilisées comme cas d’étude pour mes travaux de thèse.

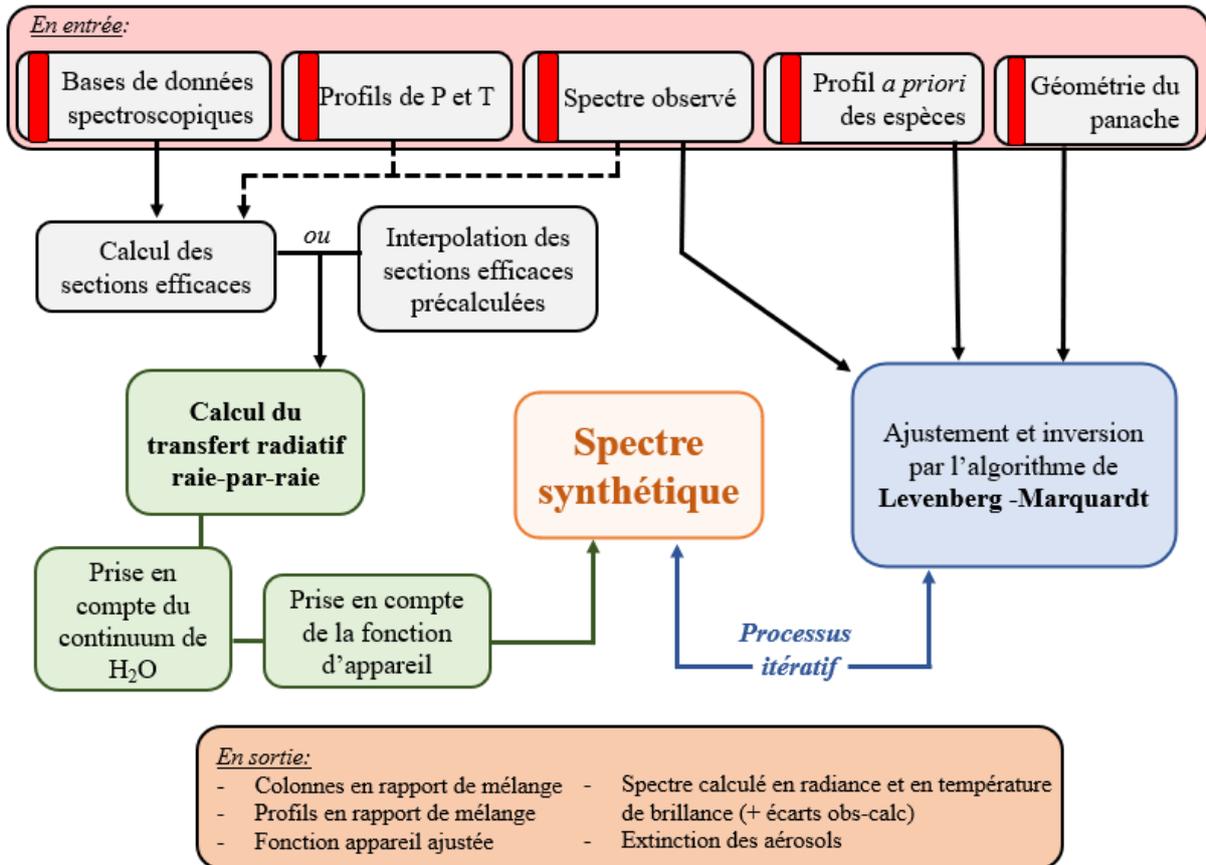


Figure 2.15 – Résumé des processus et des informations en jeu lors de la simulation du transfert radiatif et de l’inversion des spectres infrarouges avec le modèle LARA.



Validation des spectres de l'imageur
hyperspectral infrarouge, du modèle
LARA et résultats d'inversion des
densités de colonnes de SO₂ du panache
de l'Etna

Sommaire

3.1	Validation des spectres de l'imageur hyperspectral infrarouge à l'aide de mesures FTIR.....	- 95 -
3.2	Inversion des densités de colonnes de SO ₂	- 97 -
3.2.1	Fenêtre spectrale pour la caractérisation de la composition en SO ₂ du panache.....	- 97 -
3.2.2	Espèces chimiques en entrée du modèle LARA	- 98 -
3.2.3	Caractéristiques des images du 26 juin 2015	- 100 -
3.2.4	Qualité des inversions	- 102 -
3.2.5	Tests de sensibilité sur les inversions des paramètres caractéristiques du panache dans le modèle LARA	- 104 -
3.2.5.1.	Méthodologie des tests de sensibilité des paramètres	- 104 -
3.2.5.2.	Influence de l'altitude du panache.....	- 106 -
3.2.5.3.	Influence de l'épaisseur du panache	- 108 -
3.2.5.4.	Influence de la température additionnelle dans le panache	- 109 -
3.2.6	Résultats des inversions des densités de colonnes de SO ₂	- 111 -
3.3	Conclusion.....	- 112 -

Ma contribution dans ce chapitre a été de mener la comparaison des spectres de radiance de l'Hyper-Cam et du FTIR, les tests de sensibilité des paramètres du panache et de mettre en œuvre des inversions des densités de colonnes de SO₂ avec le modèle LARA.

Dans le chapitre précédent, les différents éléments sur lesquels se basent les travaux de ma thèse ont été présentés : les instruments de mesures de la campagne IMAGETNA à l'Etna, les données collectées et le modèle de transfert radiatif et d'inversion LARA, adapté aux mesures du cas d'étude de la campagne. Ce chapitre permet de présenter différents travaux préliminaires que j'ai effectués pour permettre de valider des mesures hyperspectrales infrarouges, mais aussi de valider le modèle LARA, à la suite de son adaptation aux conditions de mesures de la campagne IMAGETNA. Cela me permettra ensuite de présenter les résultats d'inversion des densités de colonnes de SO₂ dans la dernière section de ce chapitre.

Ainsi ce chapitre est composé de trois sections : la première sur la validation des spectres de l'Hyper-Cam après une comparaison avec les mesures d'un FTIR. Une deuxième section regroupe la méthodologie et les résultats des tests évaluant la sensibilité du modèle LARA aux paramètres ajoutés, pour caractériser la géométrie du panache. Et enfin, la dernière section présente la méthodologie mise en place pour l'inversion des spectres de l'imageur hyperspectral infrarouge, pour l'inversion des densités de colonnes obliques de SO₂ dans le panache de l'Etna, et les résultats obtenus.

3.1 Validation des spectres de l'imageur hyperspectral infrarouge à l'aide de mesures FTIR

L'Hyper-Cam a été développé pour répondre à diverses applications scientifiques que ce soit dans le domaine de la défense, de la géologie, ou de la recherche industrielle. La campagne IMAGETNA a donné lieu à l'un des premiers déploiements de l'Hyper-Cam dans le cadre d'un projet de recherche portant sur les panaches volcaniques. Il a donc fallu avant toute chose s'assurer que l'instrument était suffisamment sensible aux émissions de fond des volcans. Pour cela, les spectres mesurés par l'imageur Hyper-Cam, lors de la campagne, ont été comparés aux spectres mesurés par le FTIR OPAG 33 acquis simultanément.

Le FTIR capture ce que l'on appelle un mono-pixel, c'est à dire un seul spectre infrarouge. De son côté l'Hyper-Cam capture un spectre par pixel sur une image pouvant atteindre 320 × 256 pixels. Comme précisé dans les caractéristiques des instruments dans le Chapitre 2, la résolution spatiale des deux instruments est très différente. Le FTIR a un champ de vue de 10 mrad contre 1.4 mrad pour l'Hyper-Cam, dans les conditions de mesures de la campagne (i.e. champ de vue élargie d'un facteur 4 grâce à un télescope). Par conséquent, il est logique que le mono-pixel du FTIR englobe plusieurs pixels de l'image acquise par l'Hyper-Cam.

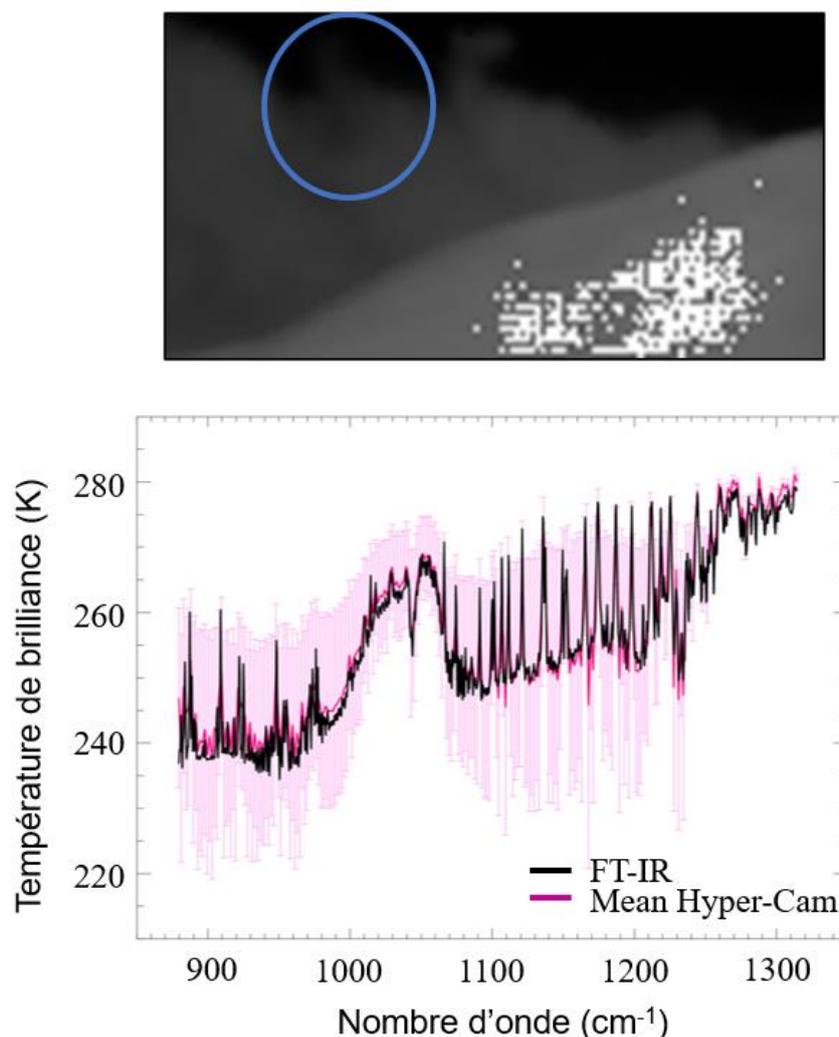


Figure 3.1 – Superposition du mono-pixel du FTIR OPAG 33 sur une image large bande d'une séquence de l'Hyper-Cam (en haut), et superposition du spectre mesuré par le FTIR OPAG 33 en noir, le spectre moyen des spectres de l'Hyper-Cam contenus dans le mono-pixel en rose et les barres d'erreur correspondant à un écart type de 1σ en rose pâle (en bas).

Dans un premier temps, la tâche a consisté à identifier plusieurs images de l'Hyper-Cam acquises simultanément avec le mono-pixel du FTIR pour lesquelles le champ de vue du FTIR entre intégralement dans ces images. Cela s'est révélé être plus complexe à obtenir que prévu. En effet, la taille du mono-pixel étant importante, au regard de la taille des images de l'Hyper-Cam, il n'entrait parfois que partiellement dans le champ de vue de l'Hyper-Cam et cela sur plusieurs séquences. Une fois ces images identifiées, les deux champs de vues sont superposés dans le but de déterminer au mieux l'ensemble des pixels de l'image infrarouge compris dans

la surface qu'englobe le mono-pixel. Un spectre moyen est alors calculé avec ces pixels ainsi que l'écart-type correspondant.

Un exemple de comparaison des mesures issues de la séquence du 25 juin 2015 à 07:24 UTC est présenté dans la Figure 3.1. Le mono-pixel, identifié par un cercle bleu sur la figure du haut, correspond à près de 930 pixels de l'image hyperspectrale infrarouge. Le spectre du FTIR, en noir, et le spectre moyen de l'Hyper-Cam, en rose, donnent un très bon accord. On note que les barres de l'écart type $\pm 1\sigma$, en rose pâle, sont importantes sur une grande partie de la fenêtre spectrale et témoignent de la variété des spectres compris dans ce mono-pixel. En effet, la variabilité de la température de brillance des pixels de l'Hyper-Cam atteint $\pm 20\text{K}$ sur certaines parties de la fenêtre spectrale.

3.2 Inversion des densités de colonnes de SO₂

Le traitement des images hyperspectrales infrarouges s'est porté sur la caractérisation de la densité de colonnes de SO₂ dans le panache de l'Etna. Cette section regroupe plusieurs étapes constituant les travaux préliminaires nécessaires à l'inversion des images hyperspectrales infrarouges avec le modèle LARA.

3.2.1 Fenêtre spectrale pour la caractérisation de la composition en SO₂ du panache

L'imageur hyperspectral infrarouge Hyper-Cam mesure dans la gamme spectrale 850-1300 cm^{-1} (i.e. 7.7-11.8 μm). Cette gamme comprend une bande d'émission spécifique au SO₂ centrée autour de 1150 cm^{-1} (i.e. bande de gauche de la Figure 3.2). Au-delà de la caractérisation de la composition en SO₂, un des objectifs est la réduction du temps de calcul nécessaire au modèle pour l'inversion des spectres, ainsi la portion des spectres des images appartenant à la fenêtre spectrale 1100 – 1200 cm^{-1} est extraite.

Comme il a été montré dans la section 2.3.1.6 (page - 73 -), la fenêtre spectrale 1100-1200 cm^{-1} fait partie des portions, de la fenêtre spectrale de l'Hyper-Cam, où la contribution de l'extinction des aérosols peut être considérée comme suivant une droite, si l'on considère que les aérosols du panache de l'Etna sont principalement composés de gouttelettes d'eau, d'acide sulfurique et de cendres, même si la présence de cendres reste peu probable étant donné que l'Etna était en phase de dégazage passif.

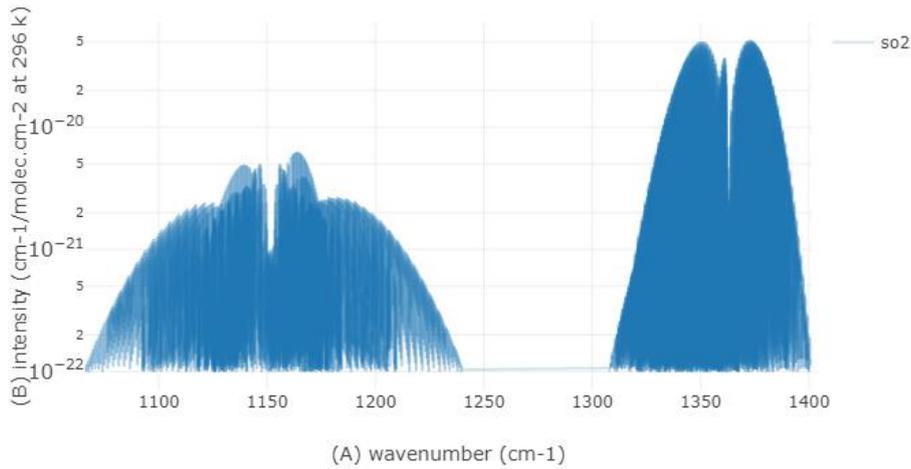


Figure 3.2 – Intensité des raies du SO_2 dans l'infrarouge simulées avec l'outil graphique de la base de données GEISA⁴ dans AERIS.

3.2.2 Espèces chimiques en entrée du modèle LARA

Pour reproduire le transfert radiatif le long de la ligne de visée avec LARA, il est nécessaire de prendre en compte diverses espèces chimiques, présentes dans l'atmosphère traversée, dont l'intensité des raies spectroscopiques est forte dans la gamme spectrale du spectre inversé.

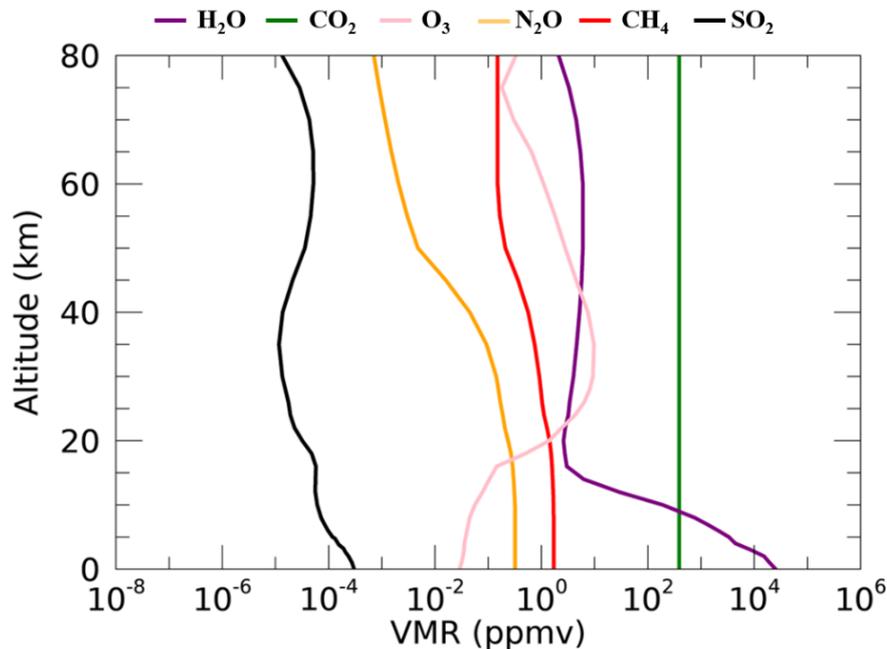


Figure 3.3 – Rapports de mélange a priori des espèces chimiques en entrée du modèle LARA.

⁴ GEISA est une base de données spectroscopiques développée par le LMD (Laboratoire de Météorologie Dynamique) et hébergée sur le pôle de données et de services AERIS <https://geisa.aeris-data.fr/>

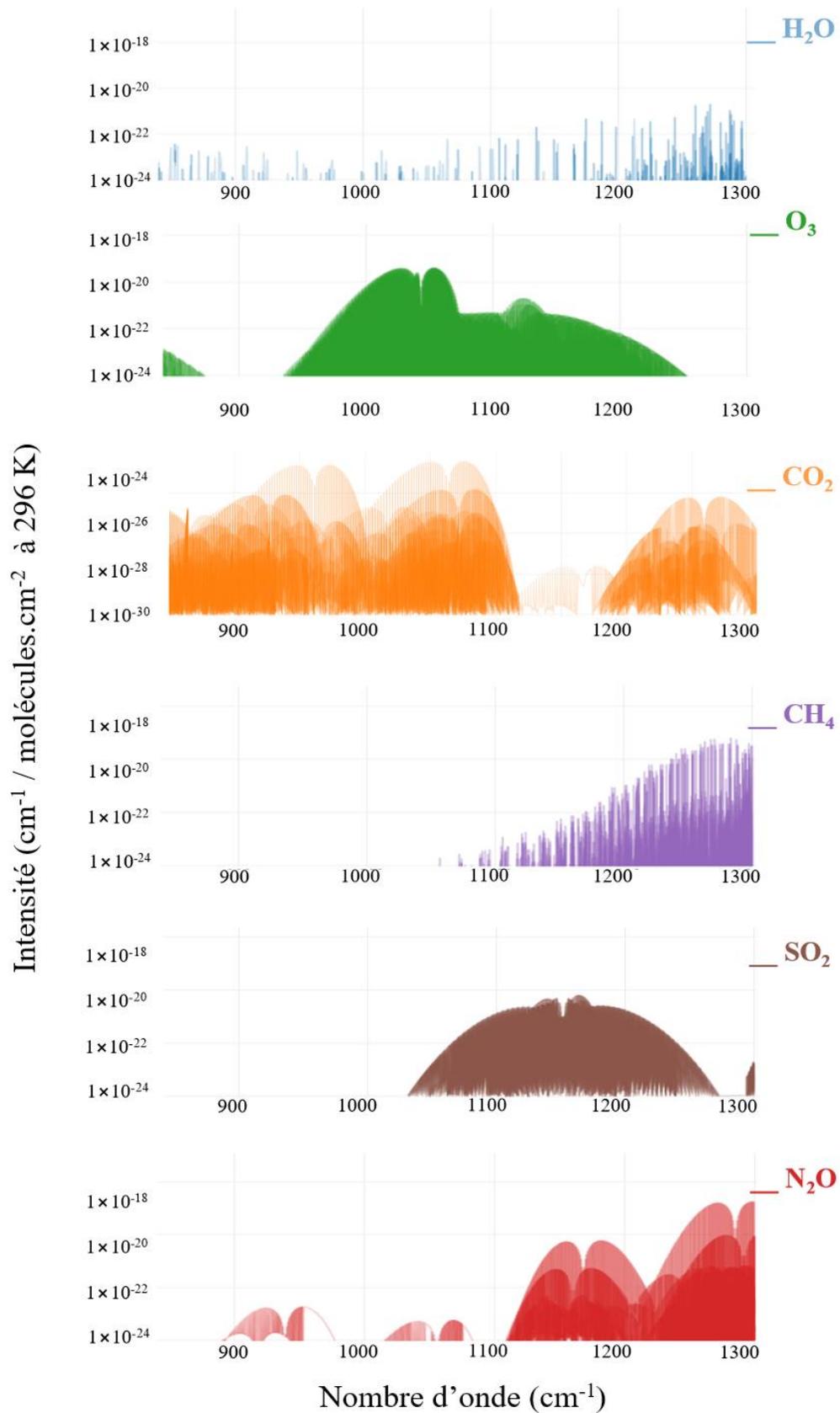


Figure 3.4 – Intensités des raies des espèces prises en compte pour les inversions avec le modèle d'inversion LARA, simulées avec la base de données spectroscopiques GEISA.

Si on considère les espèces chimiques caractéristiques de la composition atmosphérique de fond, ayant une intensité de raies forte dans la gamme spectrale de l'Hyper-Cam, il faut prendre en compte les espèces suivantes : la vapeur d'eau H_2O , le dioxyde de carbone CO_2 , l'ozone O_3 , le protoxyde d'azote N_2O et le méthane CH_4 . En plus de ces cinq espèces, le dioxyde de soufre SO_2 , qui est l'espèce d'intérêt que l'on cherche à caractériser dans le panache volcanique, est également prise en compte. Les profils verticaux de rapports de mélange (US Standard Atmosphere 76) des six espèces utilisées pour reconstituer la composition de l'atmosphère le long de la ligne de visée de l'instrument sont présentés dans la Figure 3.3 pour des altitudes allant jusqu'à 80 km.

Les intensités des raies spectroscopiques de ces espèces, dans la bande spectrale d'intérêt, sont présentées individuellement sur la Figure 3.4. Elles proviennent de la base de données spectroscopiques HITRAN 2012 (Rothman et al., 2013).

3.2.3 Caractéristiques des images du 26 juin 2015

Parmi les différentes séquences de mesures de l'Hyper-Cam de la campagne IMAGETNA (voir Tableau 2.2, page - 67 -), la séquence principalement traitée dans mes travaux de thèse est celle du 26 juin 2015 débutant à 08:25:25 UTC. Elle a été choisie pour plusieurs raisons :

- La taille des images est suffisamment large pour permettre d'avoir dans le champ de vue à la fois une partie du sol, du ciel clair et du panache (voir Figure 2.8) sachant que le panache se propageait horizontalement en direction du sud-est, soit de la droite vers la gauche de l'image.
- Une résolution spectrale élevée, mais permettant un temps d'acquisition suffisamment court pour capturer le dynamisme du panache.
- Une synchronisation avec les mesures de la caméra UV pour pouvoir intercomparer les résultats des deux instruments.

L'image du haut de la Figure 3.5 est une image large bande contenant ces différents éléments du champ de vue. Le graphique en bas de cette même figure reporte les spectres correspondants aux croix de couleurs différentes placées sur l'image large bande. Nous retrouvons les éléments suivants :

- Le **ciel clair** pour la croix bleue, c'est à dire le ciel sans panache.
- Le **sol** pour la croix noire.

- Le **panache dense** pour les croix orange et violette, proches de sol et de la source d'émission.
- Le **panache dilué** pour les croix rouge et verte, à gauche de l'image.

La forme des raies d'émission de l'ozone stratosphérique est bien visible dans les spectres bleu, vert, rouge et orange dans la gamme spectrale 1000-1100 cm⁻¹. La variation de la forme des ailes de l'ozone témoigne de la diversité des états de dilution du panache. Les pics présents dans la gamme spectrale du SO₂ (i.e. 1100-1200 cm⁻¹) sont caractéristiques des raies de la vapeur d'eau et la forme bombée indique quant à elle la présence de SO₂ dans les pixels de ces spectres.

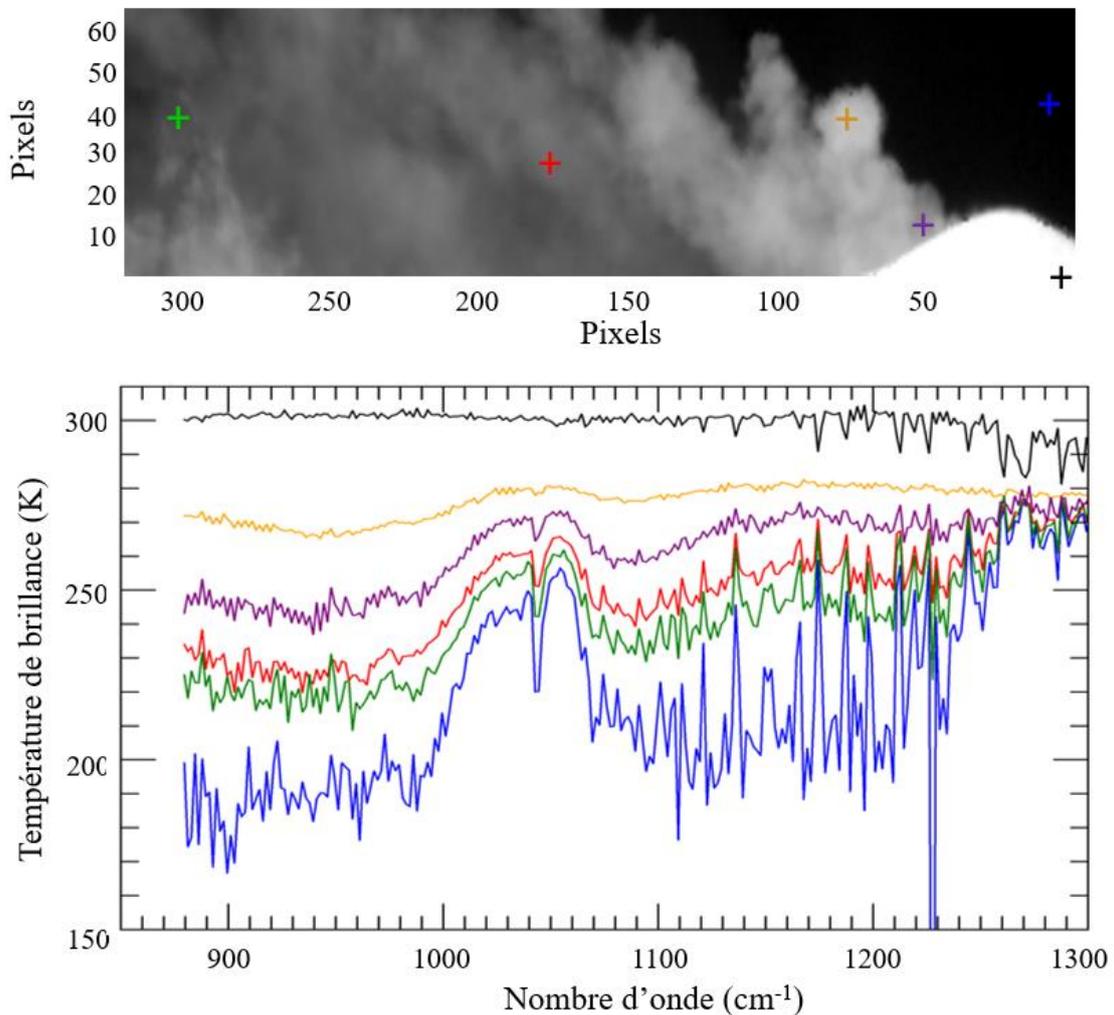


Figure 3.5 – Exemple d'image large bande acquise par l'Hyper-Cam pendant la campagne IMAGETNA (en haut), et les spectres de températures de brillance correspondant aux différentes croix de couleurs (en bas) (26/06/2015 – 08:31:10 UTC).

Quelques caractéristiques de la séquence de mon cas d'étude, pour l'inversion des densités de colonnes de SO₂, sont présentées dans le Tableau 3.1.

Date (jj/mm/aaaa)	Heure (début / fin) (UTC)	Taille image (pixels)	Résolution spectrale (cm^{-1})	Points dans fenêtre SO_2	Nombre d'images
26/06/2015	08 :25 :25 / 08 :44 :38	320 × 64	2	60	288

Tableau 3.1 – Caractéristiques de la séquence de mesures de l'Hyper-Cam étudiée.

3.2.4 Qualité des inversions

Avant de présenter les résultats de l'inversion des densités de colonnes obliques de SO_2 d'une image, je vais revenir plus en détail sur l'évaluation de la qualité des inversions de LARA. Une fois les différents éléments d'entrée du modèle définis, l'inversion de l'image du 26 juin 2015 à 08:31:10 UTC avec LARA peut être lancée et se fait pixel par pixel. L'inversion est faite à partir des paramètres de géométrie et de température du panache dont les valeurs sont issues des hypothèses faites précédemment. Le nombre d'itérations de l'algorithme de minimisation varie d'un pixel à l'autre. Les calculs ont été faits sur la plateforme de calcul Ciclad de l'IPSL (*Institut Pierre et Simon Laplace*). Le temps de calcul nécessaire pour inverser les 20 480 pixels de l'image est d'environ 7 jours.

Evaluer la qualité de l'inversion revient à évaluer la capacité qu'a le modèle à obtenir une convergence entre le spectre simulé et le spectre mesuré, avec des valeurs de paramètres physiquement correctes. LARA calcule pour cela le χ^2 réduit à chaque itération. La valeur à partir de laquelle la qualité de l'inversion est jugée insuffisante est fixée à 10.

La Figure 3.6 présente (en haut) une image des valeurs du χ^2 réduit pour l'inversion de la fenêtre spectrale du SO_2 (i.e. 1100-1200 cm^{-1}) de l'image acquise le 26/06/2015 à 08:31:10 UTC. En moyenne les valeurs du χ^2 réduit se trouvent ici autour de 5. Seuls les pixels correspondant au sol ainsi que quelques pixels correspondant à un panache proche du cratère et donc un peu plus dense ont des valeurs du χ^2 réduit supérieures à 10. La qualité de l'inversion est donc très satisfaisante pour cet exemple. Les exemples de spectres inversés et mesurés présentés sur la Figure 3.6 (b), correspondent en partant du haut à un pixel du panache dense (100 – 25), puis du panache dilué (200 – 20) et enfin du ciel clair (10 – 50). Les résidus associés, présentés en (c) sur cette même figure, sont dans les trois cas dans l'intervalle de plus ou moins la valeur du bruit de l'instrument égale à $1 \times 10^{-7} \text{ W}/(\text{cm}^2.\text{sr}.\text{cm}^{-1})$ représenté par des lignes hachurées.

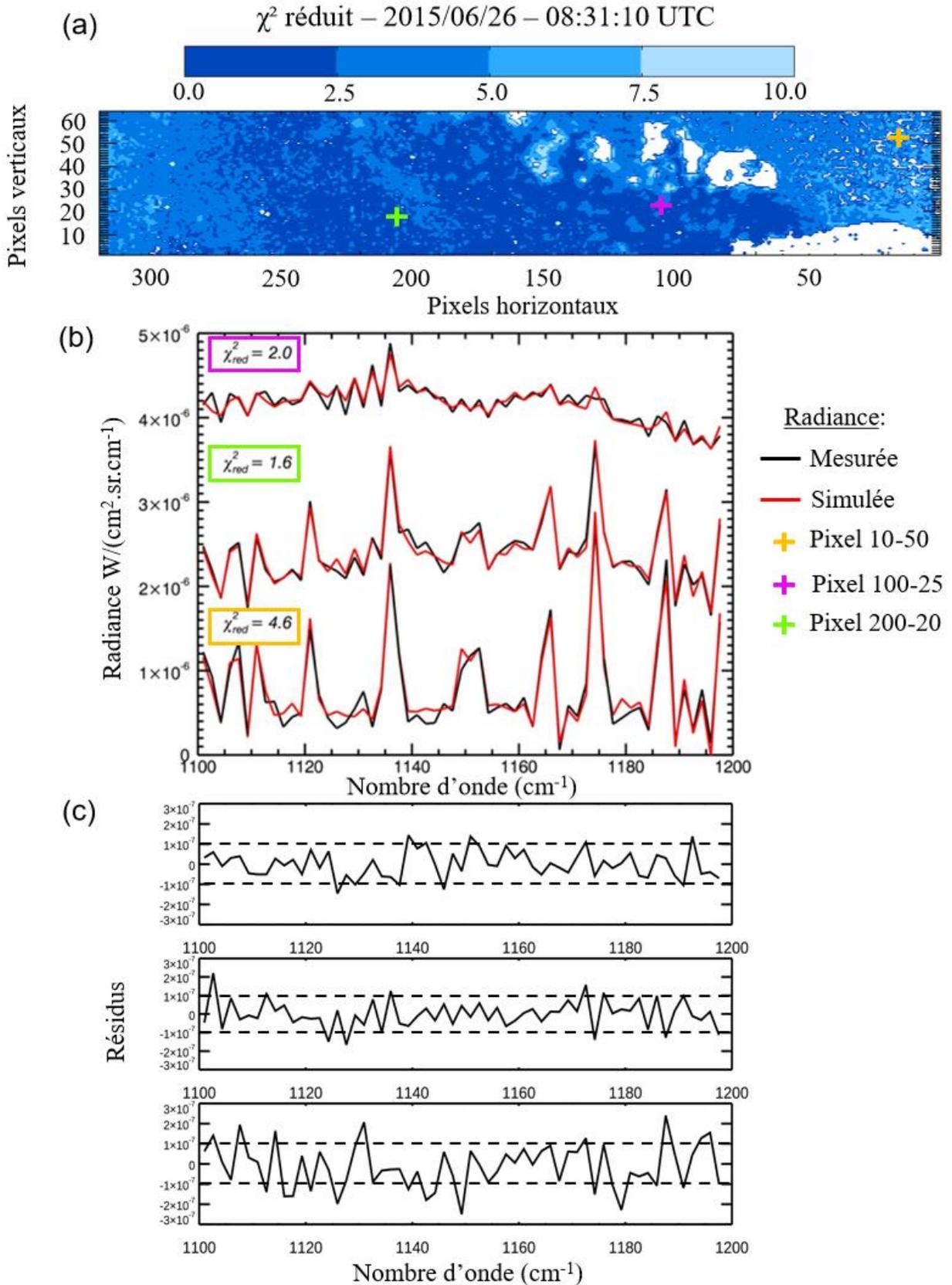


Figure 3.6 – (a) χ^2 réduits pour l'inversion de l'image du 26/06/2015 à 08:31:10 UTC. Exemples de spectres mesurés et simulés par LARA avec la valeur de χ^2 réduit associée (b) et les résidus entre les deux spectres avec \pm le bruit instrumental en hachuré (c).

3.2.5 Tests de sensibilité sur les inversions des paramètres caractéristiques du panache dans le modèle LARA

Paramétriser la géométrie du panache volcanique de l'Etna est un élément essentiel pour la simulation du transfert radiatif et l'inversion des densités de colonnes de SO₂ des spectres de l'Hyper-Cam. Cette paramétrisation se base sur différentes estimations visuelles. L'ordre de grandeur de l'altitude et de la demi-épaisseur a d'abord été estimé en se basant sur le relief du Mont Etna ainsi que sur la forme du panache les jours de mesures. Pour ce qui est de la température additionnelle dans le panache par rapport à l'air ambiant, aucune mesure *in situ* n'était disponible. Il a alors fallu se baser sur la distance estimée à plusieurs centaines de mètres entre le panache mesuré dans le champ de vue de l'instrument et le cratère nord-est, à partir duquel les émissions gazeuses étaient majoritairement émises. A une telle distance, nous pouvons faire l'hypothèse que cette différence de température est faible.

Cependant, ces estimations peuvent induire des erreurs dans les calculs d'inversion. Alors pour estimer l'influence d'une erreur sur ces hypothèses, et donc la sensibilité de ces paramètres sur l'inversion des colonnes de SO₂, différentes valeurs ont été testées pour chacun des trois paramètres.

3.2.5.1. Méthodologie

Inverser une image complète pixel-par-pixel étant très chronophage (1 image \approx 1 semaine de calcul), et dans le but d'optimiser le temps de calcul nécessaire pour ce travail de test de l'influence des paramètres du panache sur les résultats des inversions, le nombre de pixel a été réduit. Les tests ont été effectués sur une image acquise le 26 juin 2015 à 08:27:45 UTC composée de 320 pixels sur l'horizontale et 64 pixels sur la verticale soit 20 480 pixels. Seul un pixel sur dix est inversé sur l'horizontale et un pixel sur cinq sur la verticale ce qui correspond à seulement 384 pixels à inverser.

La Figure 3.7 montre, en haut, les pixels concernés par des points rouges superposés à une image large bande de la scène. En bas de la figure se trouve un exemple d'image de la colonne oblique de dioxyde de soufre (SO₂ SCD) obtenue pour une inversion test. On peut voir que malgré le nombre réduit des pixels, les différents structures et états de dilution du panache restent identifiables avec de fortes densités de colonnes de SO₂ sur la droite de l'image correspondant à un panache plus dense et des valeurs plus faibles sur la gauche de l'image où le panache est plus dilué.

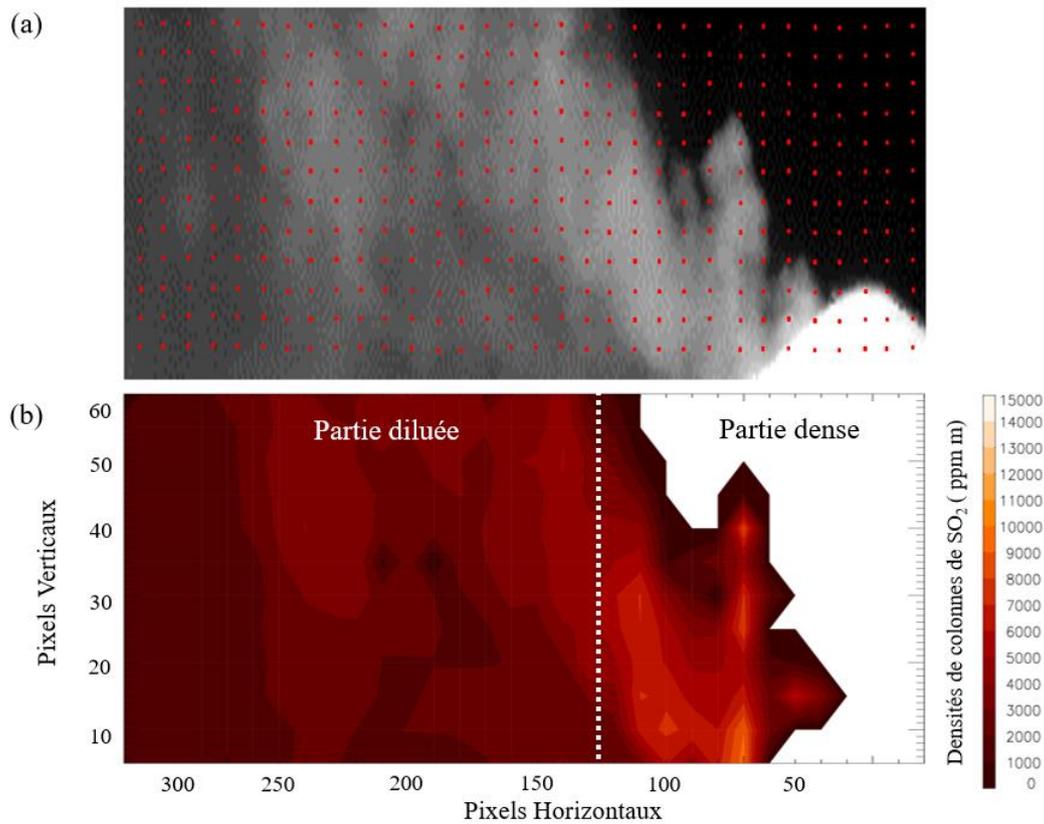


Figure 3.7 – Représentation de la répartition des pixels inversés pour les tests de sensibilité symbolisés par des points rouges superposés à une image large bande⁵ (en haut), indication de la ligne verticale de séparation du panache dilué et du panache dense en blanc sur une image des SO₂ SCD du nombre réduit de pixels du 26 juin 2015 à 08:27:45 UTC (en bas).

Afin de faciliter l'interprétation des résultats des tests de sensibilité des inversions aux valeurs des paramètres, il a été décidé de séparer l'image en deux parties. L'objectif de cette séparation est d'isoler la partie la plus dense du panache de la partie la plus diluée. Pour l'image utilisée pour ces tests (26/06/2015 – 08:27:45 UTC), la séparation se situe au 125^{ème} pixel horizontal identifié par une ligne verticale blanche hachurée sur la Figure 3.7. La partie gauche de l'image correspond au panache dilué et comprend 225 pixels, tandis que la partie droite de l'image correspond au panache dense et contient 65 pixels. Les pixels considérés sont ceux avec un critère de qualité d'inversion satisfaisant, c'est à dire un χ^2 réduit < 10, mais aussi où l'erreur sur l'inversion du profil de SO₂ est inférieure à 10%. Dans cet exemple, 94 pixels ont été exclus

⁵ Les images ont été volontairement élargies sans respecter la proportion Hauteur × Largeur pour permettre une meilleure identification des pixels sélectionnés.

de l'interprétation des inversions, ces pixels se trouvant principalement situés dans la partie de l'image correspondant au ciel clair et au sol.

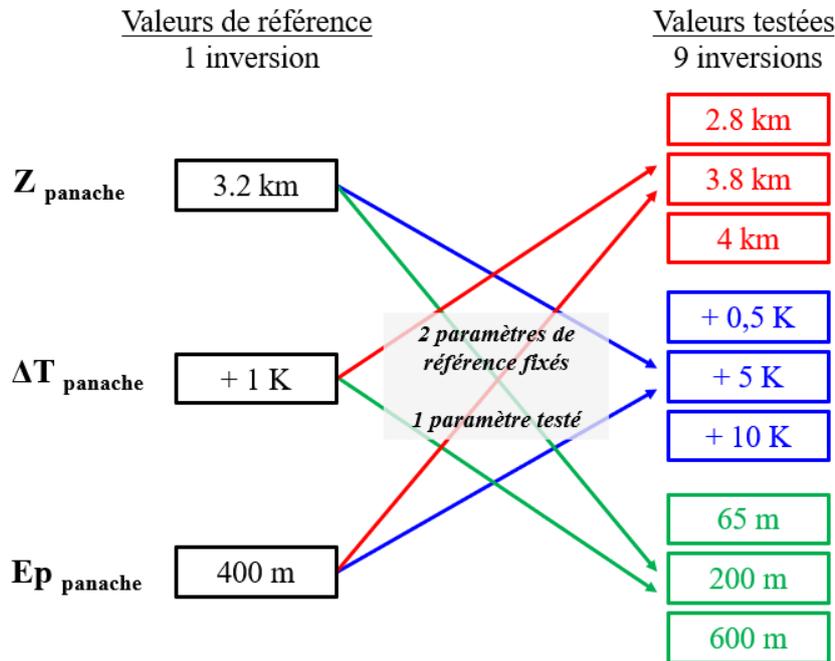


Figure 3.8 – Illustration des différentes combinaisons des valeurs des paramètres du panache pour les tests de sensibilité.

Suivant les hypothèses faites, une valeur a été fixée pour chacun des trois paramètres, que nous appellerons par la suite valeurs de référence (partie gauche Figure 3.8), et trois autres valeurs ont été testées pour chaque paramètre (partie droite Figure 3.8). La Figure 3.8 illustre les différentes combinaisons des valeurs des paramètres du panache des tests de sensibilité. Il faut au total 10 inversions de l'image réduite, une pour les valeurs de références et une inversion par valeur de paramètre à tester soit 9 autres inversions. Concrètement, nous avons fixé deux paramètres à la valeur de référence puis nous avons testé différentes valeurs pour le troisième paramètre.

3.2.5.2. Influence de l'altitude du panache

Pour rappel, l'altitude du panache, notée Z_{panache} , correspond à l'altitude du centre du panache. Elle est considérée comme étant l'endroit où les concentrations de gaz et de particules de l'Etna sont à leur maximum dans le panache. L'altitude du centre du panache fait varier la valeur de température des conditions de fond et donc du contraste entre la température de l'atmosphère de fond et la température du panache volcanique.

Pour la partie diluée du panache, les corrélations (voir Figure 3.9, à gauche) sont très bonnes avec des coefficients de détermination supérieurs ou égaux à 0.92 :

Valeurs de $Z_{panache}$ testées	Coefficients directeurs	Coefficients de détermination R^2
2.8 km	0.93	0.99
3.8 km	1.5	0.92
4 km	1.8	0.92

Tableau 3.2 – Résultats dans la partie diluée des tests sur l'altitude du panache $Z_{panache}$.

Ces résultats indiquent que si le centre du panache se situe 600 ou 800 m au-dessus de l'altitude de référence, l'inversion donne des valeurs de SO₂ SCD plus importantes, jusqu'à 1.8 fois plus grandes que l'inversion de référence.

Pour la partie dense du panache (voir Figure 3.9, à droite), les résultats des corrélations sont :

Valeurs de $Z_{panache}$ testées	Coefficients directeurs	Coefficients de détermination R^2
2.8 km	0.8	0.98
3.8 km	2.1	0.86
4 km	2.1	0.84

Tableau 3.3 – Résultats dans la partie dense des tests sur l'altitude du panache $Z_{panache}$.

Les coefficients de détermination restent relativement bons pour les corrélations correspondantes aux altitudes supérieures à l'altitude de référence. Les valeurs de SO₂ SCD obtenues sont deux fois plus importantes que celles du cas de référence.

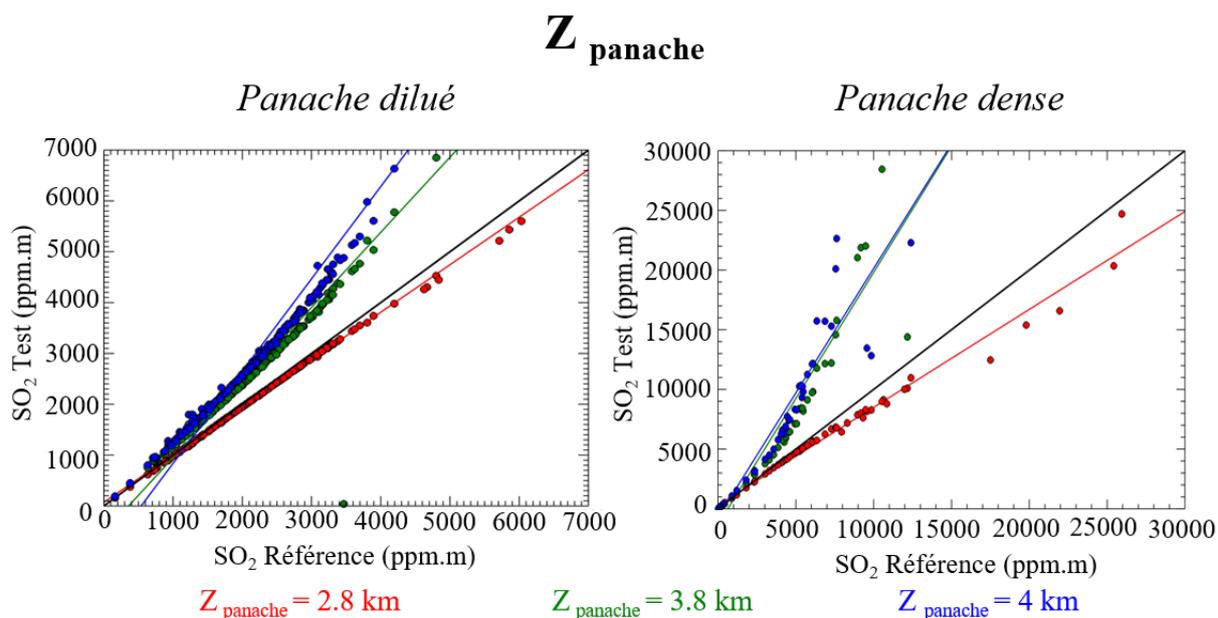


Figure 3.9 – Corrélations entre les SO₂ SCD des tests et de la valeur de référence de l'altitude du panache.

3.2.5.3. Influence de l'épaisseur du panache

Comme nous l'avons expliqué précédemment, la valeur d'épaisseur du panache correspond à la demi-largeur à mi-hauteur de la gaussienne centrée sur l'altitude du panache.

Pour la partie diluée du panache (voir Figure 3.10, à gauche), les corrélations sont très bonnes avec :

Valeurs de $E_{p_{\text{panache}}}$ testées	Coefficients directeurs	Coefficients de détermination R ²
65 m	1.1	0.95
200 m	1	0.99
600 m	1	0.99

Tableau 3.4 – Résultats dans la partie diluée des tests sur l'épaisseur du panache $E_{p_{\text{panache}}}$.

Quelle que soit la valeur de l'épaisseur du panache testée, le coefficient directeur est égal ou très proche de 1 soit d'une corrélation idéale entre les deux séries de valeurs. Ainsi l'influence de ce paramètre dans le panache dilué est négligeable.

Pour la partie dense du panache (voir Figure 3.10, à droite), les résultats des corrélations sont regroupés dans le Tableau 3.5.

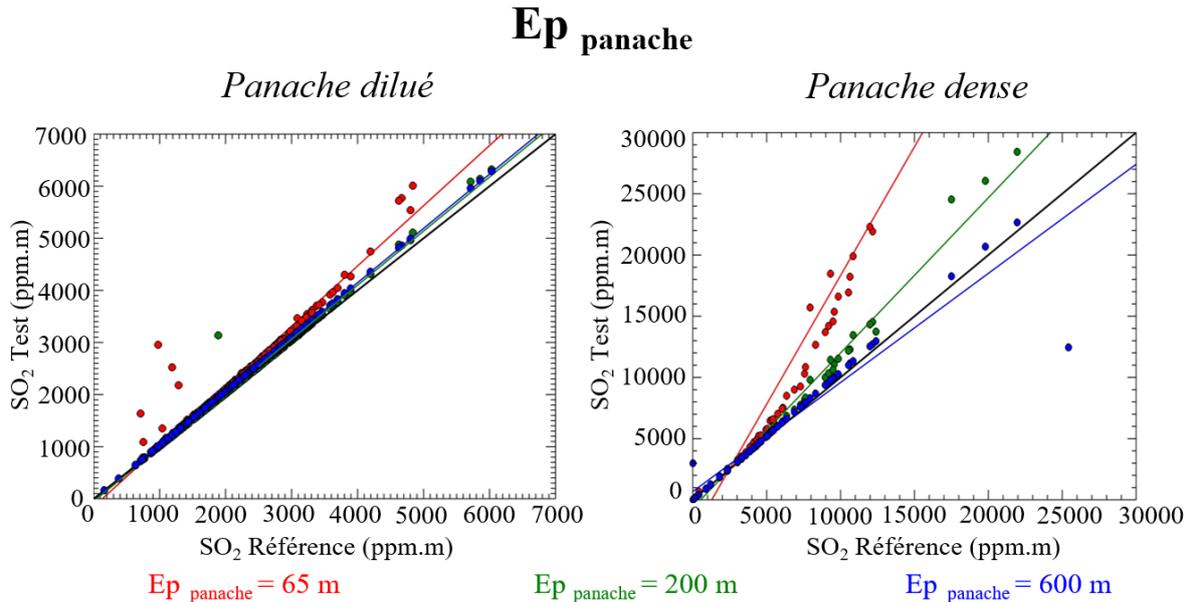


Figure 3.10 – Corrélations entre les SO₂ SCD des tests et de la valeur de référence de l'épaisseur du panache.

Contrairement à la partie diluée du panache, l'influence de l'épaisseur du panache pour la partie dense n'est pas négligeable dans le cas d'un panache plus fin. Les SO₂ SCD pour un panache de 65 m d'épaisseur seraient multipliées par deux.

Valeurs de Ep _{panache} testées	Coefficients directeurs	Coefficients de détermination R ²
65 m	2.1	0.92
200 m	1.3	0.98
600 m	0.9	0.9

Tableau 3.5 – Résultats dans la partie dense des tests sur l'épaisseur du panache Ep_{panache}.

3.2.5.4. Influence de la température additionnelle dans le panache

La valeur de référence choisie comme température additionnelle dans le panache par rapport à la température ambiante est de +1K. Les trois valeurs testées sont +0.5K, +5K et +10K. La Figure 3.11 présente les corrélations entre les valeurs de SO₂ SCD de la configuration de référence et celles des valeurs de ΔT_{panache} testées. Les corrélations de chaque partie de l'image suivent une régression de degré 1 dont les caractéristiques sont regroupées dans le Tableau 3.6, pour la partie diluée, et dans le Tableau 3.7, pour la partie dense.

Valeurs de $\Delta T_{panache}$ testées	Coefficients directeurs	Coefficients de détermination R^2
+ 0.5 K	1	0.99
+ 5K	0.7	0.96
+ 10 K	0.6	0.95

Tableau 3.6 – Résultats dans la partie diluée des tests sur la température additionnelle dans le panache $\Delta T_{panache}$.

Les droites de corrélation indiquent qu'une température additionnelle de + 5K ou + 10K dans le panache, par rapport à la température ambiante, diminuerait les valeurs des SO₂ SCD de 30 à 40%. Cependant, la distance du panache mesuré par l'Hyper-Cam par rapport au cratère nord-est (i.e. principale source d'émission pendant la campagne) de même que l'activité du volcan rendent peu probable le fait que la température additionnelle dans le panache puisse atteindre ces valeurs.

Pour la partie dense de l'image (voir Figure 3.11, à droite), les droites de régression de degré 1 ont les caractéristiques suivantes :

Valeurs de $\Delta T_{panache}$ testées	Coefficients directeurs	Coefficients de détermination R^2
+ 0.5 K	1.1	0.99
+ 5K	0.4	0.86
+ 10 K	0.2	0.67

Tableau 3.7 – Résultats dans la partie dense des tests sur la température additionnelle dans le panache $\Delta T_{panache}$.

Ici, les températures de + 5K et + 10K ont un impact plus conséquent sur les SO₂ SCD puisqu'elles sont respectivement réduites par un facteur 2 à 6. Cependant, ceci est à nuancer avec le fait que les valeurs des coefficients de détermination des régressions linéaires de ces deux cas testés sont moins bonnes que pour le cas de la partie diluée.

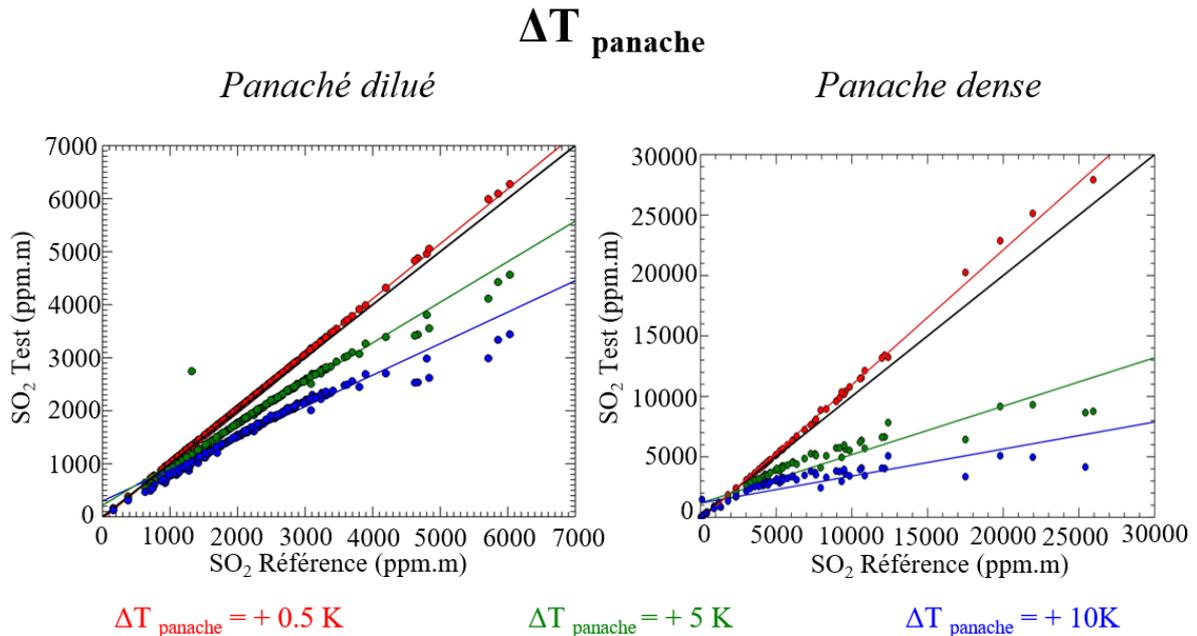


Figure 3.11 – Corrélations entre les SO₂ SCD des tests sur la température additionnelle dans le panache par rapport à la température ambiante et celles de référence.

3.2.6 Résultats des inversions des densités de colonnes de SO₂

Les résultats de l'inversion de l'image sont présentés dans la Figure 3.12 avec, en haut, l'image des densités de colonnes obliques de SO₂, et en bas, l'image des χ^2 réduits, témoins de la qualité des inversions de l'image de l'Hyper-Cam par LARA. Dans les deux images, les pixels correspondant à un χ^2 réduit supérieur à 10 et une erreur sur le coefficient correspondant au SO₂ supérieure à 10% sont en blanc.

Les densités de colonnes de SO₂ sont comprises entre 1000 et 6000 ppm.m dans la partie diluée du panache et si l'on se rapproche de la source d'émission les valeurs montent jusqu'à 13000 ppm.m. Le tri effectué sur les pixels ayant une qualité d'inversion jugée non satisfaisante se situent principalement dans le ciel clair, le sol, le panache proche de la source d'émission ainsi qu'une partie du panache dilué en bas à gauche de l'image.

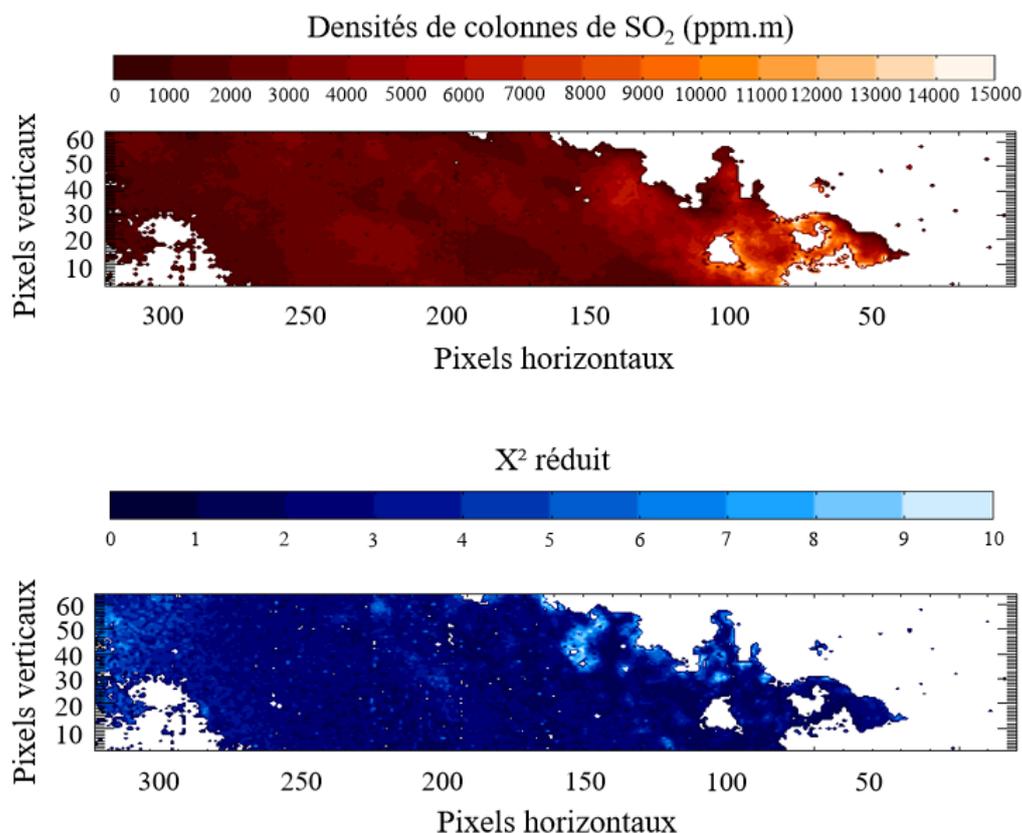


Figure 3.12 – Image des densités de colonnes obliques de SO₂ inversées avec LARA avec une bonne qualité d'inversion (en haut) et image des valeurs de χ^2 réduits de l'inversion (en bas) de la mesure du 26 juin 2015 à 08:31:10 UTC.

3.3 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons confronté les mesures de l'Hyper-Cam à un exercice de validation de ses spectres à l'aide de mesures simultanées faites avec un FTIR. Ce travail de validation des spectres de l'Hyper-Cam avec le FTIR a donné des résultats très satisfaisants avec un très bon accord des mesures des deux instruments. Cela permet de confirmer la bonne calibration de l'imageur hyperspectral ainsi qu'une sensibilité suffisamment forte de l'imageur pour ce type de mesures à distance. Le nombre élevé de pixels compris dans la surface couverte par le mono-pixel du FTIR, met en avant un atout important de cet imageur hyperspectral infrarouge, qui est sa haute résolution spatiale permettant d'acquérir une information plus fine dans le panache de l'Etna.

Nous avons ensuite décrit les tests de sensibilité sur l'inversion des densités de colonnes obliques de SO₂, effectués sur les trois paramètres caractérisant le panache volcanique le long

de la ligne de visée. Ces tests ont montré que les paramètres du panache peuvent avoir une influence significative pour les pixels les plus proches du cratère et une influence de moindre importance pour les pixels les plus éloignés et donc correspondants à un panache dilué.

La configuration du modèle aux mesures au sol d'un panache volcanique ainsi que la paramétrisation de la géométrie du panache conduisent à un modèle robuste avec des valeurs de χ^2 réduits égales en moyenne à 5 dans la partie diluée du panache, tandis que les valeurs de χ^2 réduits peuvent être plus élevées dans la partie dense. L'influence des hypothèses faites sur les paramètres du panache se ressent donc bien dans cette zone plus dense et démontrent la complexité de l'inversion de cette partie du panache. Néanmoins, la partie diluée du panache présente moins de difficultés d'inversion et les résultats obtenus sont très satisfaisants.

Ce travail que j'ai mené sur la validation des spectres de l'Hyper-Cam avec les données FTIR ainsi que les tests de sensibilité des paramètres clés du panache, font partie de ma contribution à l'article « Infrared hyperspectral and ultraviolet remote measurements of volcanic gas plume at Mt Etna » (Huret et al., 2019).

Ce chapitre permet de répondre positivement à la première question adressée dans le Chapitre 1 sur l'évaluation de la sensibilité de l'instrument Hyper-Cam pour la mesure de panache volcanique. L'analyse des résultats obtenus va être approfondie, et donne lieu au chapitre suivant portant sur les travaux d'inter-comparaison que j'ai effectués.



CHAPITRE

4

Inter-comparaisons des résultats de
quantification des densités de colonnes
de SO₂ du panache de l'Etna

Sommaire

4.1. Partie 1 : Inter-comparaison des résultats d'inversion des modèles LARA et KOPRA.....	120 -
4.1.1. Le modèle KOPRA	120 -
4.1.2. Les résultats de l'inversion avec KOPRA	121 -
4.1.3. Inter-comparaison des résultats d'inversion des mesures de l'Hyper-Cam par KOPRA et par LARA.....	124 -
4.1.3.1. Analyse des écarts entre les radiances mesurées et simulées	124 -
4.1.3.2. Analyse par corrélation des densités de colonnes de SO ₂	126 -
4.1.3.3. Analyse de la contribution des aérosols sur les résultats d'inversion.....	128 -
4.2. Partie 2 : Inter-comparaison des résultats des inversions des mesures de deux instruments : Caméra UV et imageur hyperspectral IR.	133 -
4.2.1. Contexte de l'étude d'inter-comparaison.....	133 -
4.2.2. Inter-comparaison UV et IR.....	133 -
4.2.2.1. Méthodologie.....	134 -
4.2.2.2. Analyse des densités de colonnes de SO ₂	135 -
4.2.3. Discussion	136 -
4.3. Conclusion.....	137 -

Ma contribution dans ce chapitre a été de mener, à l'aveugle, les intercomparaisons des résultats d'inversion des deux modèles d'inversion KOPRA et LARA et des résultats d'inversions issus de méthodes associés à deux instruments Hyper-Cam et la caméra UV.

Dans le chapitre précédent, les spectres acquis par l'imageur hyperspectral infrarouge Hyper-Cam ont été validés, grâce aux spectres infrarouges issus d'un instrument connu et répandu pour des mesures de panache volcanique, le FTIR OPAG 33. Pour évaluer la capacité de l'Hyper-Cam à la caractérisation des densités de colonnes obliques de SO₂ d'un panache volcanique, il faut également comparer les résultats d'inversion obtenus avec LARA, avec ceux obtenus avec d'autres méthodes. Par autres méthodes, j'entends aussi bien un modèle de transfert radiatif et d'inversion différent, déjà utilisé pour de l'inversion de spectres hyperspectraux infrarouges, que d'une méthode de traitement d'images d'un instrument déjà bien implanté dans le domaine de la mesure par télédétection des SO₂ SCD d'un panache volcanique et fonctionnant dans une gamme spectrale différente.

Ainsi, ce chapitre s'articule autour de deux parties :

- Dans **une première partie**, je présente le travail d'inter-comparaison que j'ai mené pour comparer les résultats d'inversion des SO₂ SCD que j'ai obtenus avec LARA, avec ceux obtenus avec le modèle KOPRA (*Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm*). Les inversions avec le modèle KOPRA sont des travaux qui ont été menés dans le cadre de l'infrastructure européenne HEMERA⁶, à l'aveugle, en interaction avec une équipe du KIT (*Karlsruhe Institute of Technology*) en Allemagne. L'inter-comparaison des résultats est précédée par une description du modèle KOPRA.
- Dans **une deuxième partie**, je compare mes résultats d'inversion avec LARA avec ceux obtenus après le traitement des images d'une caméra UV de l'INGV de Catane grâce à une interaction avec Giuseppe Salerno, co-auteur d'une publication⁷ dans laquelle je présente entre autres les résultats de ce travail d'inter-comparaison (Huret et al., 2019). Il s'agit de la caméra qui a été déployée, en simultané avec l'Hyper-Cam, lors de la campagne IMAGETNA. Cette caméra est couramment utilisée pour les mesures par télédétection des panaches volcaniques ce qui en fait un instrument idéal pour ce type de travail de comparaison.

⁶ HEMERA est une infrastructure européenne financée par le programme de recherche et d'innovation de l'Union Européenne Horizon H2020 sous le numéro 730970. Elle regroupe les scientifiques européens de la communauté des mesures ballon.

⁷ Article : Huret et al., "Infrared Hyperspectral and Ultraviolet Remote Measurements of Volcanic Gas Plume at MT Etna during IMAGETNA Campaign", *Remote Sens.* 2019, 11, 1175; <https://doi.org/10.3390/rs11101175>

4.1. Partie 1 : Inter-comparaison des résultats d'inversion des modèles LARA et KOPRA

4.1.1. Le modèle KOPRA

L'utilisation de l'imagerie hyperspectrale infrarouge pour les mesures par télédétection des panaches volcaniques est relativement récente. Les modèles de transfert radiatif et d'inversion de données dans l'IR, permettant de traiter des spectres IR atmosphériques sont eux plus anciens. C'est le cas du modèle KOPRA, pour *Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm*, qui a été développé par le KIT (Stiller et al., 2002) en vue du traitement des données MIPAS/ENVISAT⁸. Il permet de dériver des mesures spectrales de MIPAS les distributions de gaz traces, les aérosols, les nuages ou encore la température. Il utilise les paramètres spectroscopiques de la base de données à haute résolution d'absorption moléculaire par transmission nommée HITRAN (Rothman et al., 2009), ainsi que les listes dédiées de MIPAS.

KOPRA calcule les dérivées de la radiance spectrale en relation avec l'état atmosphérique, et les paramètres de l'instrument (Jacobiens) utilisés par une procédure d'inversion de KOPRA. Les instabilités d'inversion sont évitées à l'aide d'une approche de régularisation de Tikhonov-Phillips (Phillips, 1962; Tikhonov, 1962) appliquée en prenant une contrainte sur la dérivée première du profil *a priori* des espèces cibles.

Les profils verticaux des rapports de mélanges volumiques, des différentes espèces chimiques prisent en compte, sont tirés d'une climatologie de l'atmosphère de Remedios (Remedios et al., 2007), pour lesquels les données de concentration de surface ont été mises à jour à l'aide des données de la NOAA ESRL GMD (*National Oceanic and Atmospheric Administration, Earth System Research Laboratory, Global Monitoring Division*; (Montzka et al., 1999)).

Un vaste exercice de validation du modèle a été effectué en utilisant les résultats du renommé et robuste modèle de transfert radiatif RFM (*Reference Forward Model*), précédemment cité dans la section 1.4.6 du premier chapitre (page - 50 -) (Glatthor et al., 1999).

Le modèle a été amélioré de façon à rendre son algorithme autonome, incluant les processus physiques, de la troposphère à la thermosphère, en tenant compte de la fonction

⁸ MIPAS est un spectromètre de Michelson à visée au limbe déployé sur le satellite ENVISAT lancé par l'Agence Spatiale Européenne en 2002

d'appareil spécifique de l'instrument MIPAS. Cela n'empêche pas le modèle de prendre en compte d'autres fonctions d'appareil plus standards pour l'inversion de données d'autres instruments.

Le modèle KOPRA sert également au traitement des données de l'instrument aéroporté GLORIA (*Gimballed Limb Observer for Radiance Imaging of the Atmosphere*) (Johansson et al., 2018) et permet d'inverser plus de 10 espèces traces mesurées par cet instrument le long de sa ligne de visée au limbe. L'instrument GLORIA permet d'étudier la structure et la composition des couches constituant la tropopause.

4.1.2. Les résultats de l'inversion avec KOPRA

L'inversion par KOPRA a été effectuée sur une image de la séquence d'intérêt du 26 juin 2015 de la campagne IMAGETNA. Les caractéristiques de cette séquence ont déjà été présentées précédemment dans la section 3.2.3 du chapitre 3 (page - 100 -). L'image choisie est celle acquise à 08:25:44 UTC. Elle fait partie des images inversées pixel-par-pixel par LARA. Cette inversion a été effectuée à l'aveugle par Gerald Wetzel, ingénieur au *Karlsruhe Institute of Technology*, uniquement à partir du fichier contenant les mesures de radiances ainsi que la configuration géométrique de l'instrument pour cette image et les données des conditions météorologiques de fond.

Le Tableau 4.1 regroupe les caractéristiques des paramètres d'inversion des SO₂ SCD de l'image par LARA et KOPRA :

	LARA	KOPRA
Fenêtre spectrale	1100.97 – 1199.24 cm ⁻¹	1117.63 – 1190.92 cm ⁻¹
Espèces inversées	SO ₂ , H ₂ O, O ₃ , N ₂ O, CH ₄ , CO ₂	SO ₂ , H ₂ O, O ₃ , N ₂ O, CH ₄
Intervalle d'altitudes	2.8 – 80 km	2.8 – 4 km
Conditions météorologiques de fond	Radiosondage Trapani + données ECMWF ERA- Interim	Radiosondage Trapani + données ECMWF ERA- Interim
Dépendance spectrale (contribution aérosols)	Oui	Non
Continuum H₂O	Oui	Oui

Tableau 4.1 – Caractéristiques des paramètres d'inversion des SO₂ SCD de l'image hyperspectrale IR avec LARA et KOPRA.

La ligne de visée prise en compte avec KOPRA, entre les altitudes 2.8 et 4 km, est telle que le panache volcanique est considéré comme étant présent sur la totalité de la ligne de visée. Le SO₂ est donc inversé sur toute la ligne de visée au même titre que les espèces H₂O, O₃, N₂O et CH₄. Avec LARA, l'inversion du spectre est effectuée sur une longueur plus importante, de 2.8 à 80 km, pour les espèces H₂O, O₃, N₂O, CH₄ et CO₂, tout en contraignant l'inversion du SO₂ aux couches contenant le panache volcanique de l'Etna (voir Section 2.4.3 du Chapitre 2 page - 88 -).

Comme on peut le voir sur la Figure 4.1 (a), l'image large bande, correspondant à cette mesure de l'Hyper-Cam, laisse deviner les trois zones différentes contenues dans la scène du champ de vue, que sont : le ciel clair en haut à droite, en noir, le sol en bas à droite, en blanc, et le panache en nuances de gris.

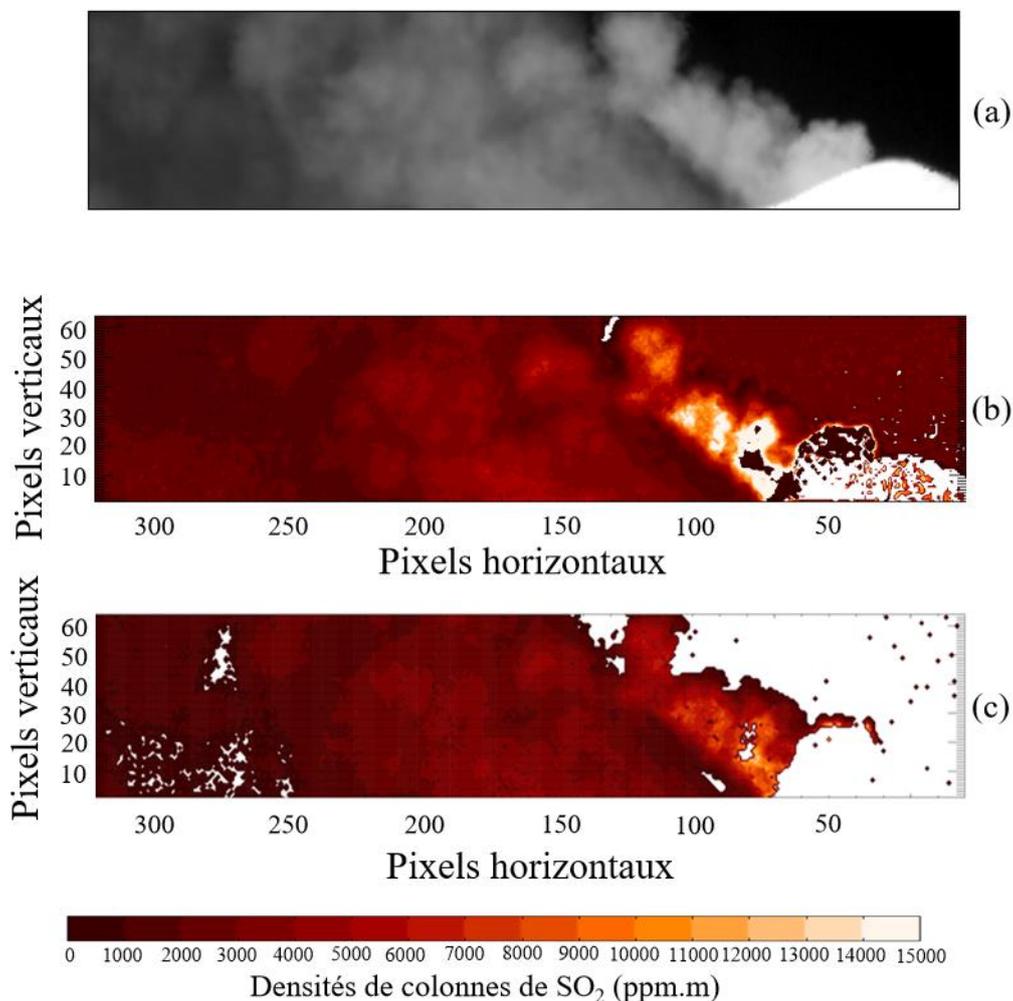


Figure 4.1 – Image large bande de la scène acquise le 26 juin 2015 – 08:25:44 UTC (a), densités de colonnes de SO₂ inversées par KOPRA (b) et par LARA (c).

Les deux autres images de la Figure 4.1 sont les résultats d'inversion des densités de colonnes de SO₂ de KOPRA (Figure 4.1 (b)), et de LARA (Figure 4.1 (c)). L'image des SO₂ SCD de KOPRA ne présente aucun tri des pixels selon un paramètre d'évaluation de la qualité des inversions, contrairement à celle de LARA, où il reste 15 517 pixels sur les 20 480 que compte l'image complète.

Les structures du panache, illustrant la variabilité des SO₂ SCD, sont similaires sur les deux images. L'image de LARA, met en évidence une zone du panache, pour les pixels horizontaux avec un indice supérieur à 250, où l'inversion donne des valeurs de $\chi^2_{réduit}$ plus élevées que sur le reste du panache. L'échelle de couleur montre des valeurs de SO₂ SCD plus fortes dans la partie dense⁹ du panache pour KOPRA.

En plus des résultats de inversions des SO₂ SCD, deux autres séries de données, issues de l'inversion de l'image par KOPRA, font partie des résultats disponibles pour ce travail d'inter-comparaison :

- Les coefficients d'extinction des aérosols, exprimés en km⁻¹.
- Les valeurs des « *Root Mean Square* » (RMS), ou moyenne quadratique, des résidus de l'inversion des spectres de radiance, exprimées en nW/(cm².sr.cm⁻¹).

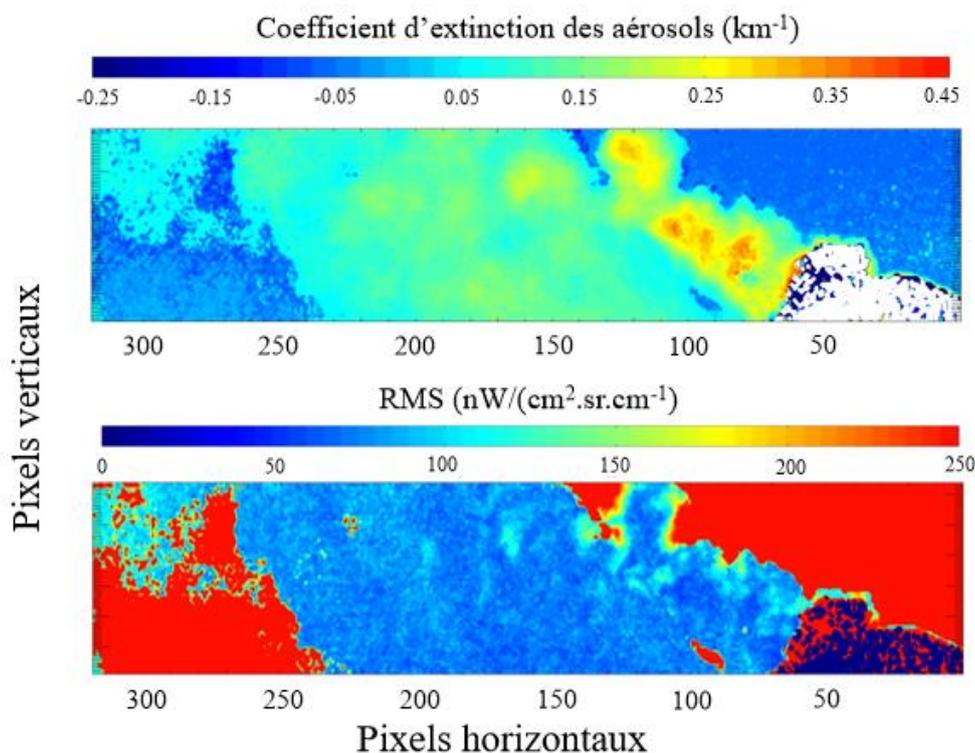


Figure 4.2 – Les coefficients d'extinction des aérosols (en haut) et les valeurs de RMS (en bas), calculés par KOPRA.

⁹ La zone dense du panache est comprise sur la partie de l'image entre les indices 50 à 125 des pixels horizontaux.

La Figure 4.2 présente l'image des coefficients d'extinction des aérosols (en haut) et celles des valeurs de RMS (en bas), caractéristiques de la qualité de la simulation des spectres de radiance, obtenus lors de l'inversion des mesures de l'Hyper-Cam par KOPRA. Le ciel clair et une partie du panache, au-delà du pixel horizontal 240, correspondent à des valeurs de RMS fortes allant au-delà de $250 \text{ nW}/(\text{cm}^2.\text{sr}.\text{cm}^{-1})$. En parallèle de cette constatation, on peut remarquer que ces mêmes zones semblent correspondre également à des coefficients d'extinction des aérosols faibles et souvent négatifs. Le reste de l'image correspond au panache et les valeurs des coefficients d'extinction sont globalement comprises entre 0.05 et 0.35 km^{-1} . Les structures que l'on peut voir sur l'image des coefficients d'extinction des aérosols reflètent l'opacité du panache et sont en accord avec les structures en nuances de gris de l'image large bande de la Figure 4.1. Tout comme les valeurs de SO_2 SCD, les valeurs des coefficients d'extinction des aérosols permettent de facilement différencier la zone dense du panache de la zone diluée avec des valeurs dépassant les 0.25 km^{-1} uniquement dans la partie la plus dense.

4.1.3. Inter-comparaison des résultats d'inversion des mesures de l'Hyper-Cam par KOPRA et par LARA.

Tout comme l'inversion des données de l'Hyper-Cam s'est faite à l'aveugle par l'équipe du KIT, j'ai également mené l'ensemble des travaux d'inter-comparaison, présentés dans cette section, à l'aveugle.

4.1.3.1. Analyse des écarts entre les radiances mesurées et simulées

La valeur de RMS illustre les résidus entre le spectre de radiance observé et le spectre calculé. Si on ramène les valeurs de RMS obtenues dans l'inversion faite par KOPRA aux valeurs de radiances moyennes mesurées dans la fenêtre spectrale de l'inversion, on obtient les écarts relatifs présentés dans la Figure 4.3. Les parties blanches de l'image, correspondent au ciel clair, au sol et à une partie du panache très dense. Elles renvoient à des écarts supérieurs à 100%. Pour le reste de l'image on retrouve des structures proches de celles observées dans l'image des RMS (Figure 4.2, en bas). La grande majorité du panache correspond à des écarts relatifs d'environ 3 à 5%, mais une large partie se détache avec des écarts supérieurs à 10%. Cette partie, située à gauche de l'image, avait déjà été identifiée, sur les deux images de la Figure 4.2., comme ayant des valeurs qui dénotent par rapport au reste du panache.

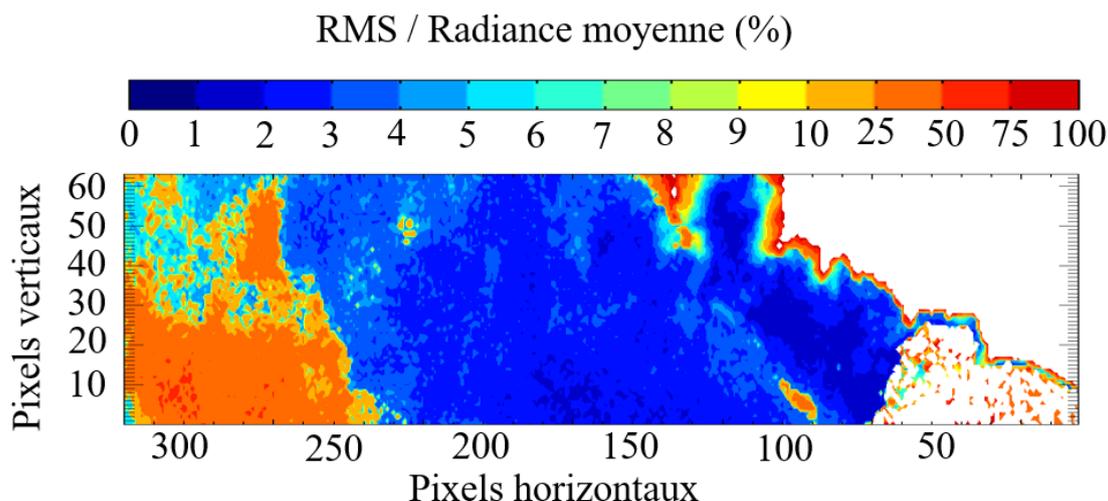


Figure 4.3 – Image des écarts relatifs (%) correspondant aux valeurs de RMS par rapport à la valeur moyenne de radiance mesurée, dans la fenêtre spectrale de l'inversion du SO_2 .

Pour la suite de l'analyse des résultats des inversions par KOPRA, nous allons nous placer dans la même configuration que celle déjà présentée dans la section 3.2.5.1 (page - 104 -), qui consiste à séparer verticalement l'image en deux parties, une partie contenant le panache dilué et une autre partie contenant le panache dense. En effet, comme la partie dense (i.e. partie droite de l'image à partir du pixel horizontal 125) des images de la séquence traitée est sujette à quelques difficultés d'inversion liées à la sensibilité de certains paramètres de géométrie du panache, cette partie est écartée. Nous nous concentrons sur la partie diluée de l'image (i.e. partie gauche de l'image à partir du pixel horizontal 125).

La Figure 4.4 présente la corrélation, pour la partie diluée de l'image, des valeurs de RMS et des coefficients d'extinction des aérosols avec, en noir, les pixels où l'écart relatif est inférieur à 5%, en bleu, les écarts relatifs compris entre 5 et 10%, et en rouge, les écarts supérieurs à 10%. L'ensemble des points correspondant à des écarts relatifs supérieur à 10% englobe les fortes valeurs de RMS et les valeurs des coefficients d'extinction des aérosols négatives. Les points de la corrélation en bleu, correspondant à des écarts relatifs compris entre 5 et 10%, englobent à la fois une partie dispersée de la corrélation et une partie de la structure compacte en noir. La partie dispersée des points de la corrélation correspond à des pixels situés en bordure à droite de la partie diluée de l'image appartenant à la structure plus dense du panache. Les points en noir, pour des écarts inférieurs à 5% forme une structure compacte.

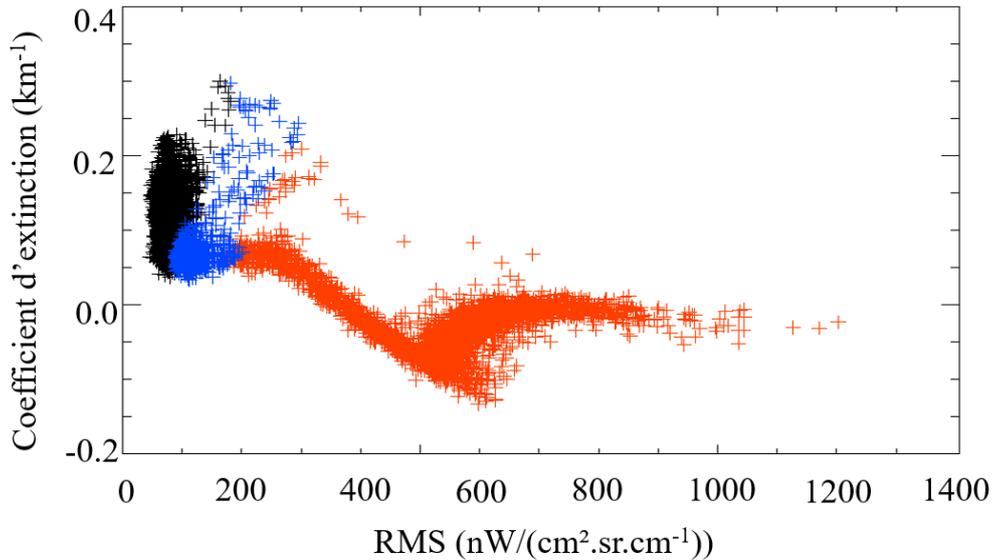


Figure 4.4 – Corrélation entre les valeurs de RMS et les coefficients d’extinction des aérosols de la partie diluée de l’image, pour les inversions des mesures de l’Hyper-Cam par KOPRA, avec en noir les pixels avec des écarts relatifs < 5%, entre le RMS et la radiance moyenne observée, en bleu les écarts relatifs compris entre 5 et 10% et en rouge les écarts relatifs supérieurs à 10%.

4.1.3.2. Analyse par corrélation des densités de colonnes de SO₂

Pour analyser les corrélations entre les résultats des inversions des SO₂ SCD de la partie diluée obtenus avec les deux modèles KOPRA et LARA, on commence par écarter les pixels de l’image de KOPRA où la qualité des inversions de SO₂ SCD avec LARA n’est pas suffisante (i.e. $\chi^2_{réduit} > 10$ et une erreur sur le coefficient du profil vertical de SO₂ > 10%).

La corrélation de ces résultats se trouve sur la Figure 4.5. Pour rester cohérent avec l’analyse faite dans le paragraphe précédent, la corrélation est séparée en trois parties avec, en noir, les pixels correspondant à des écarts relatifs entre le RMS et la radiance moyenne inférieur à 5%, en bleu, les pixels où ces écarts sont entre 5 et 10%, et en rouge, les pixels où les écarts sont supérieurs à 10%.

Si l’on considère uniquement les résultats avec des écarts relatifs inférieurs à 5%, entre le RMS et la valeur moyenne de radiance mesurée sur la fenêtre spectrale de l’inversion (i.e. 1100-1200 cm⁻¹), la droite de régression de la corrélation des SO₂ SCD, suit la relation :

$$SO_2\ SCD_{(KOPRA)} = 1.34 \times SO_2\ SCD_{(LARA)} - 402.8 \quad (4.1)$$

Le coefficient de détermination a une valeur de $R^2 = 0.95$.

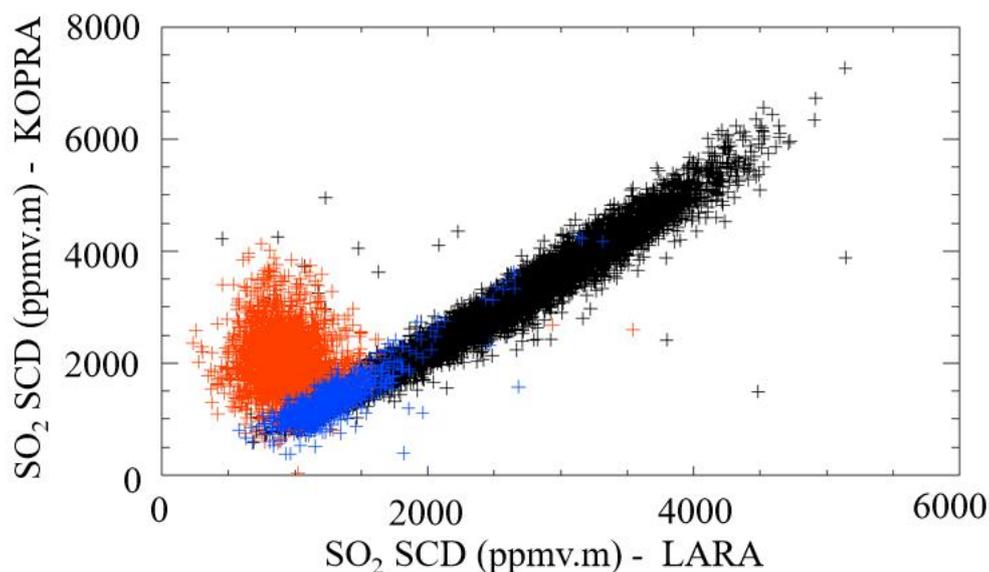


Figure 4.5 – Corrélation de la partie diluée de l'image, entre les SO₂ SCD inversées par les deux modèles KOPRA et LARA, avec en noir les pixels avec des écarts relatifs entre le RMS et la radiance moyenne observée < 5%, en bleu ceux avec des écarts relatifs compris entre 5 et 10% et en rouge ceux avec des écarts relatifs supérieurs à 10%.

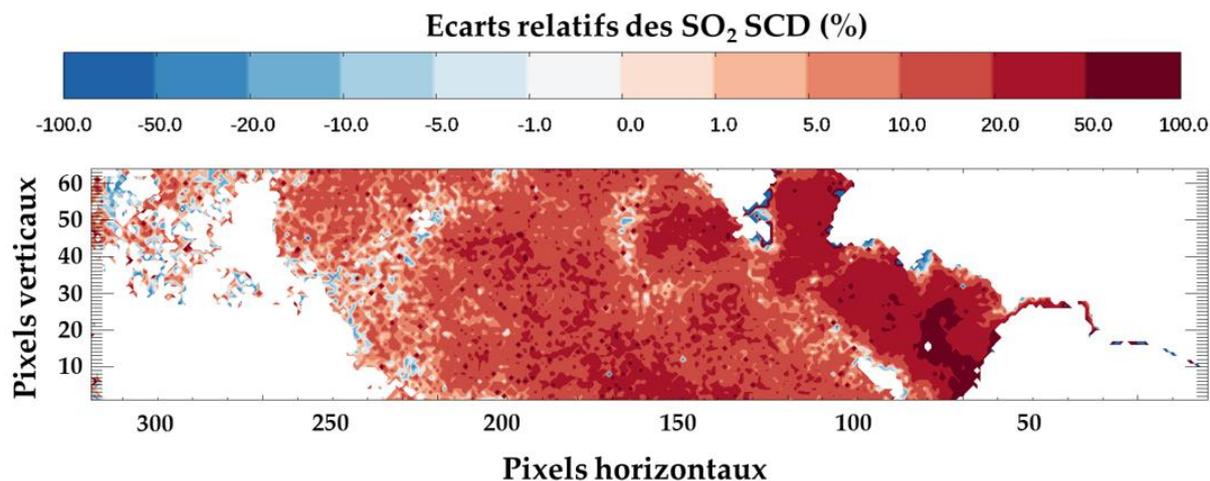


Figure 4.6 – Ecart relatif entre les résultats d'inversion des SO₂ SCD de KOPRA par rapport à LARA.

Le coefficient directeur de la droite de régression indique que, dans le panache dilué, les valeurs de SO₂ SCD issues du modèle KOPRA sont environ 1.34 fois plus élevées que celles obtenues avec le modèle LARA. La Figure 4.6 présente les écarts relatifs entre les deux images de SO₂ SCD de KOPRA et de LARA. On peut voir que certains pixels de l'image donnent des

SO₂ SCD de LARA supérieures à celle de KOPRA (en bleu), mais ils sont peu nombreux. Même si la partie dense de l'image n'a pas été étudiée en détail ici, on peut noter que les écarts relatifs y sont élevés (> 20%) partout. On peut tout de même remarquer qu'une part non négligeable du panache correspond à des SO₂ SCD de KOPRA avec des écarts de seulement +5 à +20% par rapport à celles de LARA.

Pour tenter d'expliquer et mieux comprendre cette variation entre les valeurs obtenues par les deux modèles, d'autres investigations sont menées dans les paragraphes suivants.

4.1.3.3. Analyse de la contribution des aérosols sur les résultats d'inversion

Comme indiqué dans le Tableau 4.1, les inversions de KOPRA, dans ce cas d'étude, ne prennent pas en compte la dépendance spectrale de l'extinction des aérosols. La suite de l'analyse des résultats de KOPRA porte sur la manière dont les deux modèles, LARA et KOPRA, prennent en compte la contribution de l'extinction des aérosols dans leurs inversions.

Le modèle LARA utilise deux paramètres pour déterminer la contribution de l'extinction des aérosols (Voir Section 2.3.1.6, page - 73 -) :

- La dépendance de l'extinction des aérosols selon la valeur de nombre d'ondes.
- L'extinction maximale des aérosols au centre de la gamme spectrale.

Le modèle KOPRA possède deux méthodes d'implémentation du continuum (ou extinction du signal par les aérosols). Les modes « *forward* » et « *derivative* »¹⁰. Le mode « *forward* » va utiliser, au choix, les sections efficaces d'absorption et d'extinction, ou les sections efficaces de réfraction. Ces sections efficaces ont besoin du profil vertical de densité des aérosols ainsi que les profils verticaux d'absorption et d'extinction. Ces dernières ont une dépendance spectrale. Quant au mode « *derivative* », il n'utilise que les sections efficaces de la densité en aérosols et donc ne prend pas en compte la dépendance spectrale. Le mode de simulation utilisé dans KOPRA pour les résultats présentés précédemment est le mode « *derivative* ». Or pour passer au mode « *forward* » avec KOPRA, il faudrait connaître les caractéristiques des aérosols présents dans le panache de l'Etna, ce qui ne fait pas partie des données mesurées pendant la campagne.

Alors, les tests sur l'influence de la prise en compte ou non de la dépendance spectrale de l'extinction des aérosols ont été effectués avec LARA. Pour cela, deux pixels de l'image ont

¹⁰ Voir document « Part IX » <https://www.imk-asf.kit.edu/english/312.php>

été sélectionnés en respectant quelques critères sur les valeurs de RMS et de coefficient d'extinction des aérosols. Chacun des deux pixels correspond à un état de dilution différent du panache (Tableau 4.2). Le **cas #1** correspond à une inversion avec LARA avec la prise en compte de la dépendance spectrale de l'extinction des aérosols alors que le **cas #2** correspond lui à une inversion sans prise en compte de la dépendance spectrale.

	Coordonnées	RMS (nW/(cm ² .sr.cm ⁻¹))	Coefficient extinction (km ⁻¹)	Partie du panache
Pixel #1	310 – 40	99.09	0.05415	Très diluée
Pixel #2	160 – 10	75.07	0.1517	Peu diluée

Tableau 4.2 – Caractéristiques des deux pixels choisis dans l'image pour tester la prise en compte de la contribution de l'extinction des aérosols.

Les résultats d'inversion des SO₂ SCD de KOPRA en mode « *derivative* » ainsi que les résultats d'inversion de LARA avec ou sans dépendance spectrale sont reportés dans le Tableau 4.3. Le **pixel #1**, aux coordonnées (310 – 40), correspond à une partie très diluée du panache où KOPRA obtient des valeurs de SO₂ SCD 26% plus élevées par rapport à celle du cas #1 avec LARA, tandis que le **pixel #2**, aux coordonnées (160 – 10), fait partie d'une portion plus dense du panache où KOPRA obtient des SO₂ SCD 23% plus élevées. Les valeurs obtenues montrent que lorsque la dépendance spectrale des aérosols n'est pas prise en compte dans LARA, une augmentation des valeurs des SO₂ SCD des deux pixels est observée. Les écarts relatifs sont réduits à une valeur d'à peine 15% pour le pixel #1 et 0.8% pour le pixel #2, par rapport aux valeurs de LARA.

SO ₂ SCD inversées (ppmv.m)			
	KOPRA	LARA	
		Cas 1 : AVEC dépendance spectrale	Cas 2 : SANS dépendance spectrale
Pixel #1	1570	1270.3	1359.6
Pixel #2	4436	3504	4399

Tableau 4.3 – Valeurs des densités de colonnes de SO₂ calculées par les deux modèles selon la paramétrisation de la contribution des aérosols considérée.

La Figure 4.7 pour le pixel #2 (160-10), et la Figure 4.8 pour le pixel #1 (310-40) présentent, (en haut) les spectres mesurés en noir, les spectres simulés avec KOPRA en bleu, et simulés avec LARA avec ou sans dépendance spectrale des aérosols, respectivement tracés en rouge (cas #1) et vert (cas #2) et les résidus associés (en bas). On observe que pour le pixel #2 (Figure 4.7), qui pour rappel fait partie d'une partie plus dense du panache, la prise en compte ou non de la dépendance spectrale de la contribution des aérosols aura un effet principalement sur les extrémités de la bande spectrale. En effet, entre 1100-1120 cm^{-1} et 1185 et 1200 cm^{-1} , le spectre inversé sans la prise en compte de la dépendance spectrale a des résidus plus importants et donc un ajustement moins bon.

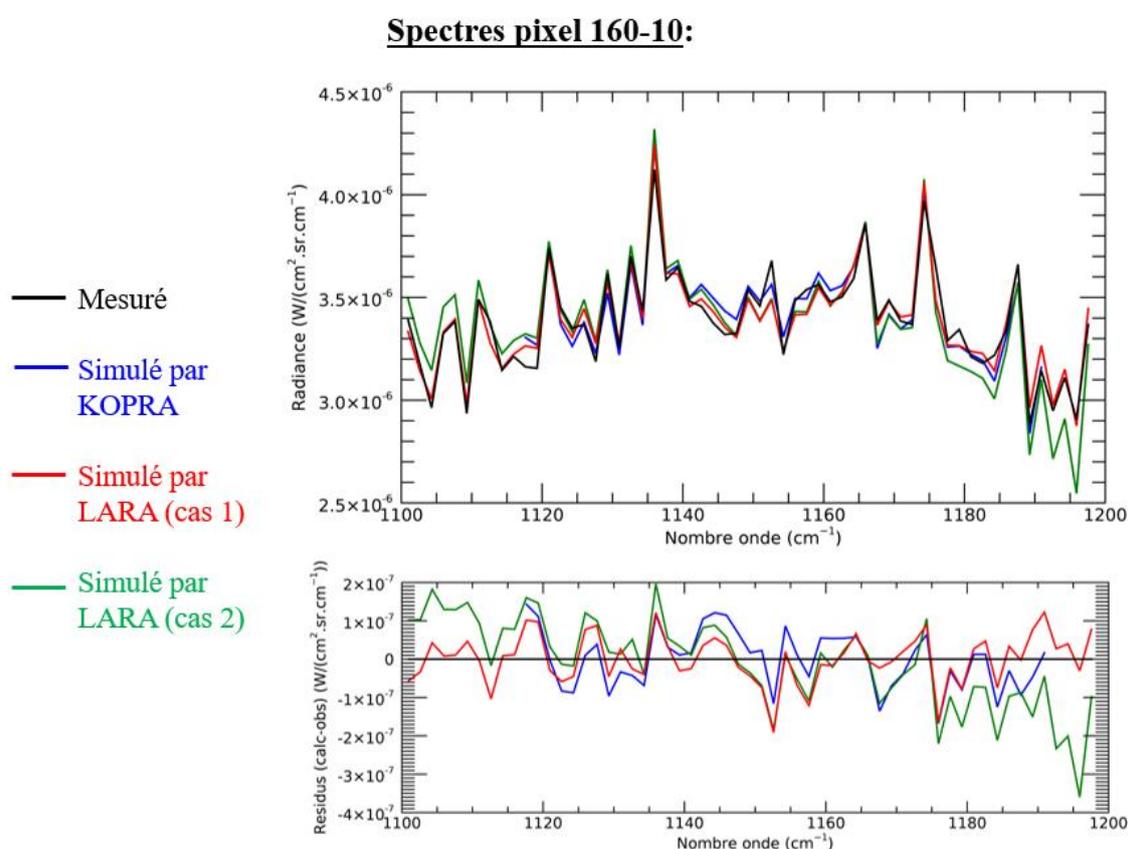


Figure 4.7 – Superposition des spectres de radiance (en haut) et des résidus (en bas) pour le pixel #2 (160-10) avec : le spectre mesuré en noir, le spectre inversé par KOPRA en bleu, le spectre inversé par LARA avec prise en compte de la dépendance spectrale des aérosols en rouge (cas #1) et le spectre inversé par LARA sans prise en compte de la dépendance spectrale des aérosols en vert (cas #2).

Ces différences d'ajustements sur les extrémités de la fenêtre spectrale sont beaucoup moins marquées pour le pixel #1 (Figure 4.8) qui lui, appartient à une partie très diluée du

panache. On observe même un meilleur ajustement avec les inversions de KOPRA qu'avec celles de LARA.

Cette évaluation de l'influence de la prise en compte de la dépendance spectrale de l'extinction des aérosols montre toute l'importance d'une caractérisation précise de cette extinction, particulièrement dans le cas de spectres avec une large fenêtre spectrale. Comme il a été montré dans la section 2.3.1.6 (page - 73 -), les principaux aérosols potentiellement présents dans le panache de l'Etna (i.e. H₂O, H₂SO₄ et cendre) ont une extinction qui varie selon le nombre d'onde. Considérer une extinction constante sur une fenêtre spectrale de 1100 à 1200 cm⁻¹, contenant environ 60 points spectraux, apporte de l'incertitude sur les résultats d'inversion et dans notre cas précis une augmentation des valeurs de SO₂ SCD.

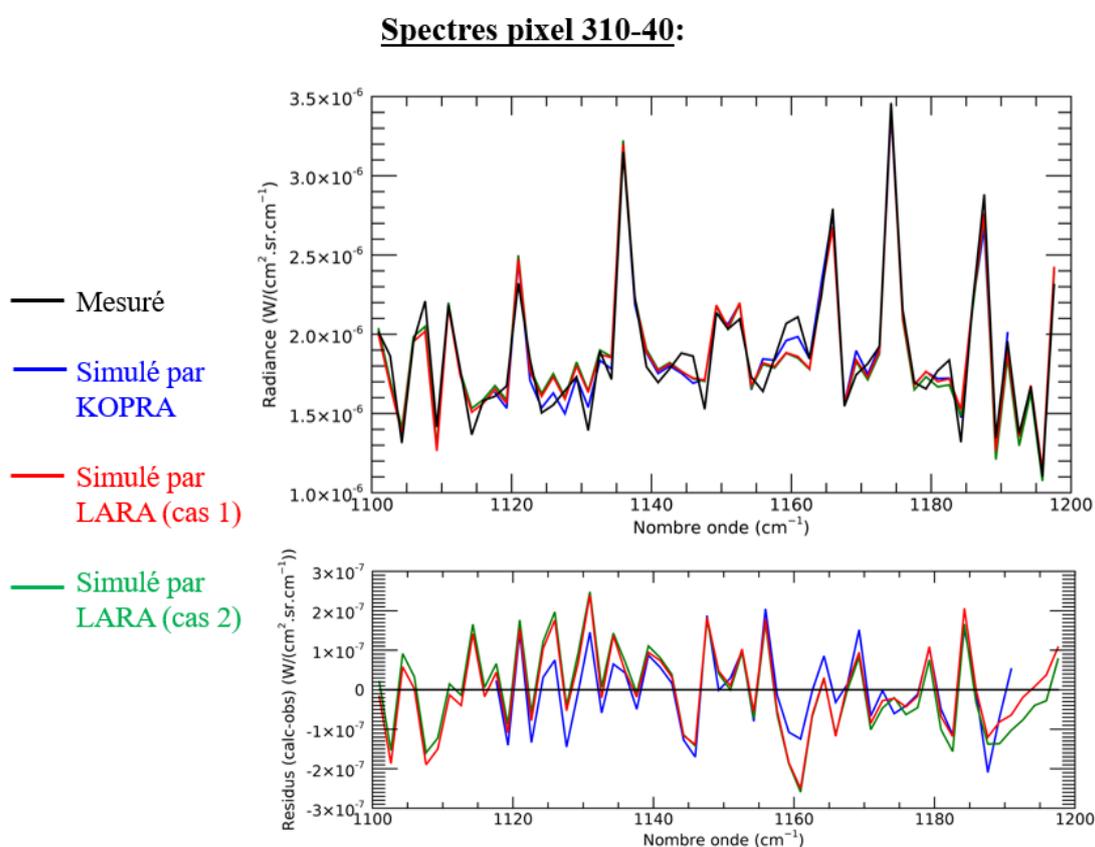


Figure 4.8 – Superposition des spectres de radiancia (en haut) et des résidus (en bas) pour le pixel #1 (310-40) avec : le spectre mesuré en noir, le spectre inversé par KOPRA en bleu, le spectre inversé par LARA avec prise en compte de la dépendance spectrale des aérosols en rouge (cas #1) et le spectre inversé par LARA sans prise en compte de la dépendance spectrale des aérosols en vert (cas #2).

Les profils des valeurs de l'épaisseur optique calculée lors de l'inversion des deux pixels, sur la fenêtre spectrale 1100-1200 cm⁻¹, avec ou sans dépendance spectrale de

l'extinction des aérosols, sont présentés dans la Figure 4.9. Dans un premier temps on peut constater que les valeurs d'épaisseur optique les plus faibles, comprises entre ~ 0.28 et 0.32 , correspondent bien au pixel du panache dilué (310-40) et les plus fortes, comprises entre ~ 0.74 et 1.09 , au panache dense (160-10). Les écarts de valeurs de l'épaisseur optique selon que l'on prenne en compte ou non la dépendance spectrale de l'extinction des aérosols sont importants et particulièrement sur la deuxième moitié de la fenêtre spectrale. Cela va dans le sens des observations faites précédemment sur l'augmentation des résidus des spectres calculés avec LARA principalement pour le pixel de la partie dense du panache. Même si la concentration des aérosols n'est pas connue, on peut tout de même noter qu'avec l'hypothèse faite d'une épaisseur de panache d'environ 1000 m, les valeurs obtenues ont un ordre de grandeur qui est proche des simulations d'extinctions des trois principaux aérosols d'un panache volcaniques présentés précédemment dans la Section 2.3.1.6 (page - 73 -).

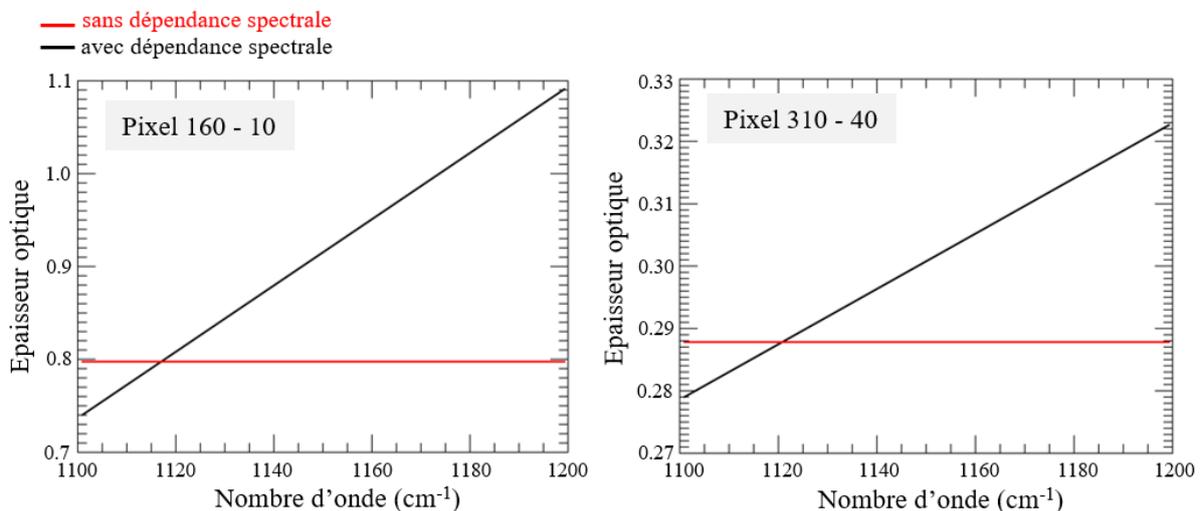


Figure 4.9 – Epaisseurs optiques des pixels 160-10 (panache dense) et 310-40 (panache dilué) calculée avec LARA avec la dépendance spectrale de l'extinction des aérosols, en noir, et sans la dépendance spectrale de l'extinction des aérosols, en rouge.

Les droites croissantes obtenues pour les deux pixels peuvent laisser penser à la présence d'un mélange de gouttelettes d'eau et d'acide sulfurique dans le panache. En effet l'extinction de ces deux types d'aérosols est croissante dans cette fenêtre spectrale (voir Figure 2.10, page - 74 -). De plus la présence de cendre est peu probable dans le cas d'un panache de l'Etna en phase de dégazage passif. Les valeurs obtenues ne permettent pas de déterminer le diamètre des particules rencontrées dans le panache, car ces valeurs sont dépendantes de la concentration de chaque aérosol, information que nous ne possédons pas.

4.2. Partie 2 : Inter-comparaison des résultats des inversions des mesures de deux instruments : Caméra UV et imageur hyperspectral IR.

Les instruments les plus répandus pour la mesure de la composition chimique des panaches volcaniques depuis le sol capturent le rayonnement dans l'UV. Ces instruments ont l'avantage d'être la plupart du temps peu dispendieux, relativement légers et donc faciles à déployer sur des terrains accidentés. Mais la récente émergence d'instruments hyperspectraux infrarouges permet de confronter ces mesures bien établies avec des mesures dans une autre gamme spectrale, où les interactions avec les autres composés des panaches volcaniques ne seront pas les mêmes. Les imageurs hyperspectraux infrarouges présentent également l'avantage majeur de pouvoir effectuer des mesures de nuit.

4.2.1. Contexte de l'étude d'inter-comparaison

Comme cela a été décrit dans la section 2.2.2 (page - 61 -), divers instruments ont été déployés lors de la campagne IMAGETNA. En effet, en plus de l'imageur hyperspectral infrarouge Hyper-Cam, un autre instrument associant une caméra et un spectromètre UV effectuait des mesures en simultané sur plusieurs séquences de mesures de la campagne. Cet instrument UV équipe plusieurs réseaux de surveillance des émissions gazeuses des volcans comme le réseau FLAME à l'Etna ou le réseau déployé par le *Hawaiian Volcano Observatory* sur le volcan Kīlauea¹¹. La description de la caméra ainsi qu'une rapide présentation de la méthode d'inversion des colonnes de SO₂ à partir des mesures de l'instrument UV ont été présentées dans la section 2.2.2.2 (page - 63 -).

4.2.2. Inter-comparaison UV et IR

Les résultats d'inversion des densités de colonnes de SO₂ de la caméra UV nous ont été fournis par l'équipe de l'INGV de Catane (courtoisie de Giuseppe Salerno) pour plusieurs images acquises simultanément. Je présente ici les travaux d'inter-comparaison, que j'ai menés à l'aveugle, à partir des résultats d'inversion de l'image acquise à 08:27:45 UTC le 26 juin

¹¹ <https://www.usgs.gov/observatories/hawaiian-volcano-observatory/monitoring-volcanic-gas-hawaii>

2015. Néanmoins, d'autres exemples d'images de SO₂ SCD de cette caméra peuvent être trouvés en annexes de ce manuscrit (page 221).

4.2.2.1. Méthodologie

Les deux instruments n'ayant pas la même résolution spatiale, il est nécessaire au préalable d'effectuer une mise à l'échelle. Le champ de vue de la caméra UV est plus large que celui de l'Hyper-Cam et cela a demandé un travail d'ajustement des images UV, pour isoler la partie du champ de vue commune aux deux images. La Figure 4.10 présente une représentation de la mise à l'échelle. De plus, la taille des pixels diffère entre les deux images ajustées. La largeur d'un pixel de l'image IR correspond à 3.5 fois la largeur d'un pixel de l'image UV tandis que la hauteur d'un pixel de l'image IR correspond à ~3.8 fois la hauteur d'un pixel de l'image UV. Les valeurs des images de densités de colonnes de SO₂ de l'UV ont donc été redistribuées aux dimensions des pixels de l'image IR. Aucune indication de la qualité des inversions des pixels de l'image UV n'est connue, le travail de comparaison des images se base donc sur les pixels des inversions de l'image IR.

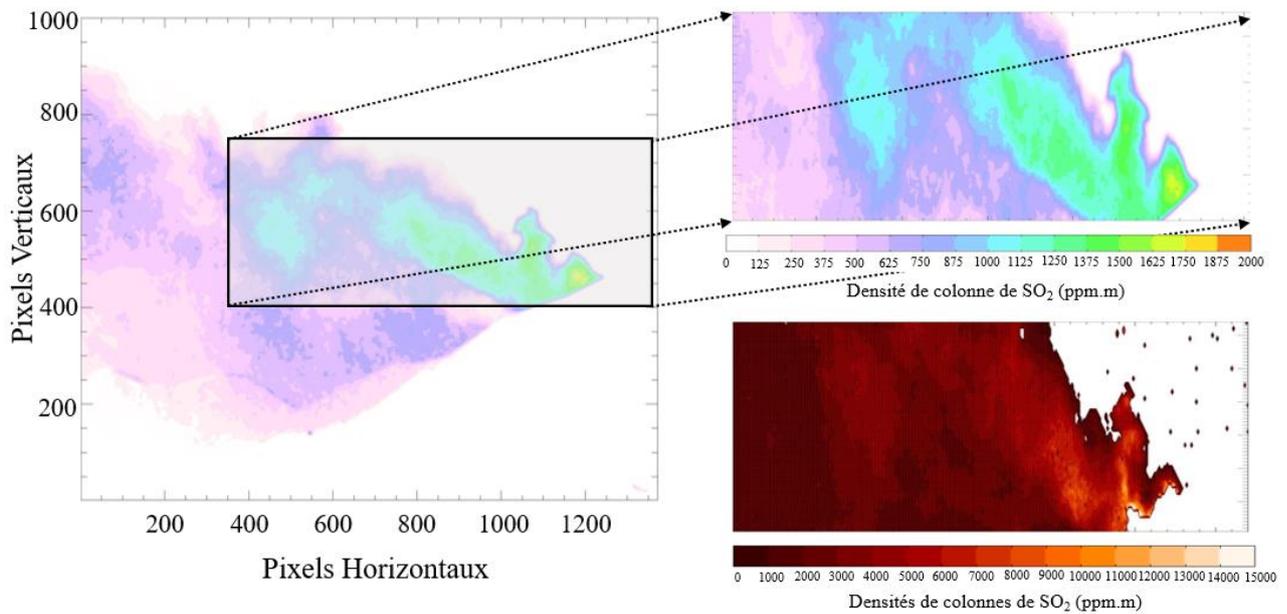


Figure 4.10 – Représentation de la mise à l'échelle de l'image des SO₂ SCD de la caméra UV à la taille de l'image de l'Hyper-Cam (en bas à droite) acquises le 26/06/2015 à 08:27:45 UTC.

Comme nous pouvons le voir sur l'image des SO₂ SCD de la caméra UV, en haut à droite de la Figure 4.10, adaptée à l'échelle de l'image IR, le panache a une forme et des

structures similaires à celle des SO₂ SCD de l'IR, en bas à droite de la Figure 4.10. Cela signifie que les deux instruments capturent bien le même type d'information.

4.2.2.2. Analyse des densités de colonnes de SO₂

Comme indiqué dans la section 3.2 du chapitre précédent (page - 97 -), la partie où se situe le panache le plus dense donnent des valeurs de $\chi^2_{réduit}$ supérieures à 10, notamment à cause de l'influence de la paramétrisation du panache. Ainsi, la même méthode consistant à séparer l'image en deux parties a été appliquée ici (i.e. coupée verticalement au 125^{ème} pixel horizontal). Comme le montre la corrélation des deux séries de valeurs de SO₂ SCD de la Figure 4.11, les pixels correspondant aux deux parties sont identifiés par des puces de couleurs différentes.

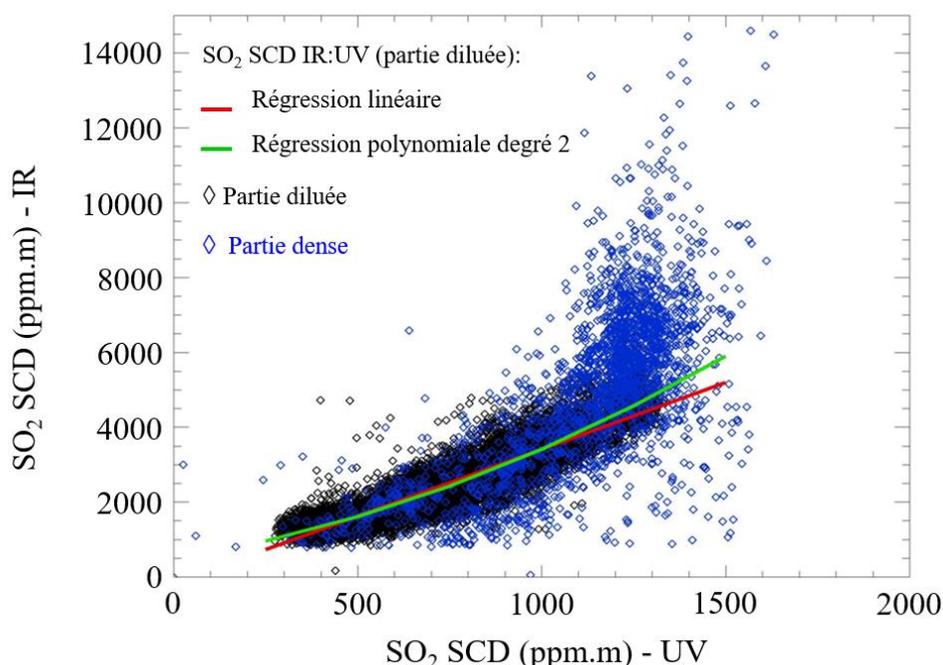


Figure 4.11 – Corrélation entre les SO₂ SCD obtenues à partir des mesures UV et des mesures IR avec la partie diluée en noir et la partie dense en bleu. La régression de degré 1 en rouge et de degré 2 en vert (image du 26 Juin 2015 – 08:27:45 UTC).

- Partie diluée

Les pixels de la partie diluée de l'image sont représentés par les puces noires. La corrélation des deux parties diluées des images est compacte et confirme que les deux instruments capturent le même type d'information dans le panache comme indiqué

précédemment. Si l'on regarde maintenant les valeurs de SO₂ SCD obtenues, elles évoluent jusqu'à ~1500 ppm.m pour l'UV contre ~ 7000 ppm.m pour l'IR. La corrélation suit globalement une régression polynomiale de degré 2 :

$$y = 1.36 \times 10^{-3}x^2 + 1.55x + 501.27 \quad (4.2)$$

où y est la SO₂ SCD de l'image IR et x la SO₂ SCD de l'image UV. La régression de degré 1 suit globalement la régression de degré 2 pour les valeurs de SO₂ SCD allant jusqu'à 1200 ppm.m pour l'UV et 4000 ppm.m pour l'IR comme on peut le voir sur la Figure 4.11.

La régression de degré 1 a donc aussi été calculée, cela permet d'obtenir une estimation du facteur existant entre les deux séries de valeurs de SO₂ SCD des deux images. On obtient un coefficient directeur de la régression de degré 1 de 3.6, avec un coefficient de détermination R² égal à 0.84. Ce résultat indique que bien que visuellement les deux instruments semblent capturer le même type d'information, avec des structures du panache similaires, une sous-estimation des densités de colonnes de SO₂ par un facteur 3.6 est constaté dans les résultats de l'UV par rapport à ceux de l'IR.

- *Partie dense*

La corrélation de la partie dense, quant à elle, représentée par les puces bleues, est plus éclatée. En effet, lorsque les résultats d'inversion des SO₂ SCD de l'IR varient entre 5000 et 10 000 ppm.m, ceux des SO₂ SCD de l'UV se situent entre 1000 et 1400 ppm.m. En faisant abstraction de la complexité de l'inversion d'une partie du panache dense des données IR, cela laisse penser que l'imageur hyperspectral IR parvient à mieux capturer la variabilité de la composition du panache en SO₂ dans cette région plus dense du panache.

4.2.3. Discussion

Différents éléments peuvent expliquer les fortes différences entre les densités de colonnes de SO₂ obtenues par la méthode UV et la méthode IR. Une hypothèse majeure porte sur la méthode d'inversion. En effet, plusieurs études ont montré que la spectroscopie UV pour la mesure à distance de panaches volcaniques est affectée par l'absorption de la lumière, c'est à dire que tous les photons traversant le panache ne sont pas mesurés par le spectromètre UV (Mori et al., 2006). Le rayonnement UV est très impacté par deux phénomènes : la diffusion multiple et l'absorption de la lumière. La diffusion multiple et l'absorption de la lumière du

soleil entre le panache et la caméra UV dans l'ultraviolet provoquent une atténuation de l'absorbance du SO₂. Ces phénomènes sont bien connus mais ne sont pas toujours corrigés pour la quantification des densités de colonnes de SO₂ ou les flux d'émission de SO₂ des panaches. Plusieurs études montrent la sous-estimation des densités de colonnes de SO₂ obtenues induite par cette absence de correction (Kern et al., 2010). Une étude de Varnam et al. (Varnam et al., 2020), montre d'ailleurs que la sous-estimation causée par la dilution lumineuse peut atteindre un facteur 5 pour les densités de colonnes de SO₂. La quantité de SO₂ inversée à partir des spectres UV se retrouve alors plafonnée par une valeur maximale qui diminuera d'autant que la dilution de la lumière augmentera. Cette dilution est directement liée à la présence d'aérosols le long de la ligne de visée et notamment d'aérosols sulfatés. Les molécules de SO₂ ou de H₂SO₄ vont augmenter les réactions chimiques de formation d'aérosols qui eux provoqueront une réduction de la radiation solaire directe.

L'effet de la diffusion sur l'atténuation de l'intensité du rayonnement augmente avec la distance entre l'instrument et le panache selon la bande spectrale utilisée pour quantifier le SO₂. Mori et al. (2006) (Mori et al., 2006) rapportent une atténuation de 35-50% pour des mesures avec un caméra UV située à 2.6 km du panache lorsque l'on utilise la bande de faibles longueurs d'ondes (i.e. ~310 nm). La distance au panache peut alors également être une hypothèse expliquant la sous-estimation des SO₂ SCD obtenues par la méthode d'inversion des données UV. Bobrowski et al. (2010) (Bobrowski et al., 2010) ont mené une étude sur l'utilisation d'une autre gamme spectrale de l'UV, également sensible au SO₂, pour la détermination de la concentration en SO₂ avec la méthode DOAS et ainsi s'affranchir de ces problèmes d'atténuation du rayonnement liés à la présence d'aérosols et à la distance entre l'instrument et le panache. En attendant qu'une méthode robuste soit trouvée et appliquée au traitement des mesures des caméras UV déployées sur certains volcans, les mesures de SO₂ SCD sont la plupart du temps sous-estimées.

4.3. Conclusion

Dans ce chapitre, les résultats des inversions des SO₂ SCD avec le modèle de transfert radiatif et d'inversion LARA, à partir des mesures de l'imageur hyperspectral Hyper-Cam, ont été comparés aux résultats d'inversion provenant d'un autre modèle, nommé KOPRA. Ils ont ensuite également été comparés aux valeurs de SO₂ SCD obtenues avec la méthode associée à l'imageur UV de l'INGV, dont les mesures étaient faites en simultané avec l'Hyper-Cam lors de la campagne de mesures IMAGETNA.

Malgré les différences observées dans les résultats de l'inversion avec le modèle KOPRA, par rapport à LARA, ces résultats restent très satisfaisants, avec en moyenne, des écarts de densités de colonnes de SO₂ de 17%. Ces écarts tombent à 13%, en moyenne, dans le panache dilué.

La comparaison des résultats, obtenus avec KOPRA et LARA, montre qu'il est possible d'adapter un modèle existant au traitement de mesures atmosphériques pour lesquelles il n'a pas été créé à l'origine. Néanmoins, cette adaptation demande de faire quelques approximations qui sont sources d'incertitudes sur les résultats. Les modèles de transfert radiatif étant les outils clés pour la valorisation des mesures hyperspectrales infrarouges, ces incertitudes doivent rester limitées, pour tirer le meilleur de la haute résolution des mesures de ces instruments. Les résultats de cette étude devraient donner lieu à une publication en collaboration avec l'équipe du KIT impliquée dans cette étude.

L'inter-comparaison des résultats d'inversion des SO₂ SCD des mesures IR de l'Hyper-Cam avec les résultats issus des mesures dans l'UV, effectuées simultanément, a permis de mettre en évidence une sous-estimation des densités de colonnes obliques de SO₂ par l'UV d'un facteur pouvant aller jusqu'à 3.6 dans la partie diluée du panache. Cette différence s'explique en partie par le problème de diffusion multiple et d'absorption de la lumière impactant les mesures dans l'UV. Une autre explication peut venir de la bande spectrale, centrée autour de 310 nm, utilisée pour la caractérisation de la composition en SO₂, qui peut provoquer une atténuation plus importante du rayonnement, plus particulièrement avec l'augmentation de la distance entre l'instrument et le panache. Ces résultats ont été publiés dans un article de la revue *Remote Sensing*, pour lequel je suis la seconde autrice (Huret et al., 2019).

Si l'on devait retenir deux conclusions majeures de ces travaux, elles seraient les suivantes :

- Les deux études que j'ai menées montrent qu'il faut incontestablement prendre en compte la contribution des aérosols, présents dans le panache volcanique, dans la paramétrisation de la méthode de traitement des spectres acquis, et notamment la dépendance spectrale de leur extinction.
- Quel que soit le code d'inversion utilisé, les deux modèles KOPRA et LARA mettent en évidence une sous-estimation d'un facteur d'environ 4 des densités de colonnes de SO₂ par rapport aux résultats issus des mesures UV.

Ces résultats de comparaison confirment à la fois le potentiel d'amélioration de la quantification des émissions de SO₂ des volcans grâce aux mesures hyperspectrales infrarouges,

mais aussi l'enjeu majeur, pour une inversion robuste et précise, de la simulation de l'ensemble des phénomènes physiques se produisant le long de la ligne de visée de l'instrument.



CHAPITRE

5

Méthodologie de classification des
spectres des images hyperspectrales
infrarouges et estimation des flux
d'émission de SO₂

Sommaire

5.1.	Introduction	- 145 -
5.2.	Résumé en français.....	- 146 -
5.3.	Article: “A spectra classification methodology of hyperspectral infrared images for near real-time estimation of the SO ₂ emission flux from Mount Etna with LARA radiative transfer retrieval model”	- 148 -
5.3.1.	Introduction.....	- 149 -
5.3.2.	Materials and Methods.....	- 152 -
5.3.2.1.	Overview of the Data.....	- 152 -
5.3.2.2.	Retrieval Model: LARA	- 155 -
5.3.2.3.	Massive Retrieval Methodology.....	- 157 -
5.3.2.3.1.	Hyper-Cam Spectral Band Analysis.....	- 157 -
5.3.2.3.2.	O ₃ Emission Region: Spectral “Band 1”	- 159 -
5.3.2.3.3.	SO ₂ Emission Region: Spectral “Band 2”	- 159 -
5.3.2.4.	SO ₂ Emission Flux Estimation	- 160 -
5.3.2.4.1.	Plume Transport Speed.....	- 160 -
5.3.2.4.2.	Box Method for the Emission Flux Estimation	- 162 -
5.3.3.	Results.....	- 163 -
5.3.3.1.	Training Dataset	- 163 -
5.3.3.1.1.	Interval Width for IO ₃ Index	- 163 -
5.3.3.1.2.	Interval Width for ISO ₂ Index	- 163 -
5.3.3.1.3.	Class Weight Distribution	- 164 -
5.3.3.1.4.	Analysis of the Classification Accuracy.....	- 166 -
5.3.3.2.	Tested Dataset.....	- 167 -

"5.3.3.3. SO ₂ Emission Flux.....	- 169 -
5.3.4. Discussion.....	- 170 -
5.3.5. Conclusion.....	- 172 -
5.4. Conclusion.....	- 174 -

Ma contribution dans ce chapitre concerne l'ensemble des travaux scientifiques de développement de la méthode de classification et de calcul des flux d'émission, ainsi que la rédaction de l'article : « A spectra classification methodology of hyperspectral infrared images for near real-time estimation of the SO₂ emission flux from Mount Etna with LARA radiative transfer retrieval mode » Remote Sens. 2020, 12, 4107; <https://www.mdpi.com/2072-4292/12/24/4107>

5.1. Introduction

Pour les mesures à distance des émissions gazeuses des volcans, l'infrarouge thermique a un avantage considérable par rapport à l'ultraviolet. En effet il offre la possibilité d'effectuer des mesures aussi bien de jour que de nuit. Les imageurs hyperspectraux infrarouges trouveraient tout leur intérêt dans les régions les plus septentrionales et méridionales où certains volcans actifs se retrouvent en partie ou totalement dans la nuit polaire durant l'hiver. La surveillance des volcans par des mesures de télédétection au sol garantit un suivi de l'évolution des émissions en continue, avec une haute résolution temporelle et spatiale. L'imagerie hyperspectrale est un outil puissant utilisé dans divers domaines tels que l'agriculture, l'exploitation minière, la défense mais aussi pour la surveillance à distance des émissions gazeuses volcaniques. La puissance de ce type d'instrumentation vient de la haute résolution spectrale, spatiale et temporelle de ses mesures. L'importante quantité de données produites par ces imageurs impose l'emploi d'outils de traitement et d'analyse des mesures adaptés, pour une valorisation en quasi-temps réel.

Les méthodes d'apprentissage profond (aussi nommé « *deep-learning* » en anglais) associées à ce type de données sont nombreuses. Quelle que soit la méthode employée, elle se basera sur plusieurs étapes. Dans un premier temps, il faut identifier une méthode de classification adaptée aux données et à ce que l'on souhaite en retirer. Il faut ensuite sélectionner un jeu de données d'entraînement, pré-traiter les images pour enfin en extraire les éléments d'intérêt, que l'on souhaite identifier par la suite sur les données à traiter. La dernière étape consiste à faire un post traitement des données classifiées et une vérification de la précision des résultats obtenus.

Dans le cadre d'images hyperspectrales infrarouges d'un panache volcanique, la paramétrisation de la classification va se baser sur des fenêtres spectrales caractéristiques des gaz du panache et des gaz atmosphériques de fond. Ainsi les profils des spectres du panache pourront être classés à la fois selon la concentration en certain gaz qu'ils contiennent ou encore selon l'état d'opacité du panache.

Ce chapitre décrit une méthodologie de classification des spectres par un réseau de neurones, appliquée à un lot de données de la campagne de mesures IMAGETNA. Cette méthode utilise deux fenêtres spectrales des spectres de l'Hyper-Cam et un jeu de données d'entraînement qui est inversé pixel-par-pixel. Cela permet de constituer une bibliothèque associant un paramètre par fenêtre spectrale et une valeur moyenne de densité de colonnes de SO₂. La méthodologie vise également à drastiquement réduire le temps de calcul nécessaire à

l'obtention d'une carte de densités de colonnes de SO₂ à partir d'une image 3D acquise par l'imageur hyperspectral. Après un résumé en français, le cinquième chapitre de mon manuscrit se présente sous la forme d'un article dont je suis la première autrice : « *A spectra classification methodology of hyperspectral infrared images for near real-time estimation of the SO₂ emission flux from Mount Etna with LARA radiative transfer retrieval model* », publié dans la Special Issue « EO for Mapping Natural Resources and Geohazards » de la revue Remote Sensing – MDPI (Segonne et al., 2020), <https://doi.org/10.3390/rs12244107>.

5.2. Résumé en français

Une quantification robuste et rapide des flux d'émission des gaz des volcans est primordiale pour l'évaluation des risques d'éruptions explosives, mais aussi pour la compréhension fondamentale des processus éruptifs peu profonds. Le SO₂, en particulier, est un indicateur fiable pour la prédiction d'une éruption à venir et sa caractérisation systématique permet une évaluation rapide de changements soudains dans la dynamique éruptive. C'est pour cela, que l'imagerie hyperspectrale infrarouge est une technologie récente très prometteuse pour mesurer avec précision les flux de SO₂ de jour et de nuit à une fréquence pouvant aller jusqu'à une image par seconde. La bande de l'infrarouge thermique n'est pas très sensible à la diffusion particulaire, ce qui représente un avantage pour l'étude des panaches volcaniques. Un imageur hyperspectral infrarouge a été déployé durant la campagne IMAGETNA en 2015 et a fourni des images à haute résolution spectrale du panache de l'Etna provenant principalement du cratère nord-est.

Dans le chapitre précédent, il a été montré que bien que la méthode d'inversion pixel-par-pixel des images hyperspectrales infrarouges par le modèle LARA soit robuste, elle demeure très coûteuse en temps de calcul. Pour qu'un instrument de télédétection soit compatible avec une collecte et une restitution de mesures en opérationnel, les outils associés doivent permettre de traiter et inverser les images collectées et estimer les flux d'émissions de SO₂ en quasi-temps réel.

Pour ce faire, une classification en deux couches a été mise en place pour classer les spectres des images obtenues par l'Hyper-Cam. Cette méthode extrait les caractéristiques spectrales dans la bande d'émission spectrale de l'ozone, 1000-1100 cm⁻¹ d'une part, et la bande d'émission spectrale du SO₂, 1100-1200 cm⁻¹ d'autre part. A partir de la classification d'images déjà inversées pixel-par-pixel, une bibliothèque a pu être créée.

Plusieurs tests ont été effectués pour valider la paramétrisation de la méthode de classification. De l'acquisition des données à la production d'images de SO₂ SCD, cette méthode nécessite environ 40 secondes par image, ce qui ouvre la possibilité d'une estimation en quasi-temps réel des flux d'émissions de SO₂ à partir de mesures d'un imageur hyperspectral infrarouge.

5.3. Article: “A spectra classification methodology of hyperspectral infrared images for near real-time estimation of the SO₂ emission flux from Mount Etna with LARA radiative transfer retrieval model”

Abstract: Fast and accurate quantification of gas fluxes emitted by volcanoes is essential for the risk mitigation of explosive eruption, and for the fundamental understanding of shallow eruptive processes. Sulphur dioxide (SO₂), in particular, is a reliable indicator to predict upcoming eruptions, and its systemic characterization allows the rapid assessment of sudden changes in eruptive dynamics. In this regard, infrared (IR) hyperspectral imaging is a promising new technology for accurately measure SO₂ fluxes day and night at a frame rate down to 1 image per second. The thermal infrared region is not very sensitive to particle scattering, which is an asset for the study of volcanic plume. A ground based infrared hyperspectral imager was deployed during the IMAGETNA campaign in 2015 and provided high spectral resolution images of the Mount Etna (Sicily, Italy) plume from the North East Crater (NEC), mainly. The LongWave InfraRed (LWIR) hyperspectral imager, hereafter name Hyper-Cam, ranges between 850–1300 cm⁻¹ (7.7–11.8 μm). The LATMOS (Laboratoire Atmosphères Milieux Observations Spatiales) Atmospheric Retrieval Algorithm (LARA), which is used to retrieve the slant column densities (SCD) of SO₂, is a robust and a complete radiative transfer model, well adapted to the inversion of ground-based remote measurements. However, the calculation time to process the raw data and retrieve the infrared spectra, which is about seven days for the retrieval of one image of SO₂ SCD, remains too high to infer near real-time (NRT) SO₂ emission fluxes. A spectral image classification methodology based on two parameters extracting spectral features in the O₃ and SO₂ emission bands was developed to create a library. The relevance is evaluated in detail through tests. From data acquisition to the generation of SO₂ SCD images, this method requires only ~40 s per image, which opens the possibility to infer NRT estimation of SO₂ emission fluxes from IR hyperspectral imager measurements.

Keywords: volcanic plume; SO₂ emission flux; passive degassing; remote sensing; spectra image classification; hyperspectral; infrared

5.3.1. Introduction

More than 500 million people live within the potential exposure range of a volcano (Doocy et al., 2013). Monitoring volcanoes is then essential and involves different types of measurements, such as volcanic degassing, seismicity, and ground deformation detection (Allard et al., 2006). Volatiles, in particular, are a crucial component of volcanic systems. The explosivity of an eruption depends, in large part, on the amount and composition of gas contained in the erupted magma. For that reason, measurements of volcanic degassing have been one of the most widely used methods in volcanic monitoring networks for more than 40 years. The shallow exsolution depth of SO₂, compared to carbon dioxide (CO₂), makes it a good indicator of the presence of a magmatic body near the surface, and, therefore, provides a tool to forecast eruptions. Fluctuations in degassing levels may reflect changes in the magma supply rate and help inform a short-term forecast of on-going eruptions (Caltabiano et al., 1994; Oppenheimer et al., 2003; Aiuppa et al., 2007; Sparks, 2003; D'aleo et al., 2019; Delle Donne et al., 2019). Moreover, the composition of volcanic gases offers insight into physical processes occurring at depth (Burton et al., 2007; Vergnolle and Jaupart, 1990). In addition to the risks induced by volcanic eruptions, monitoring the volcanoes degassing emissions in the atmosphere is important for an environmental impact and a hazardous effect on human health. After H₂O and CO₂, sulfur dioxide is the main volcanic gas emitted by volcanoes. It is widely monitored due to its low background atmospheric abundance. The impact of SO₂ emission on atmospheric chemistry and the estimation of the global budget of SO₂ in the atmosphere induced by volcanoes are part of climate and environmental monitoring as well as public health prevention (Robock, 2000). The oxidation of SO₂ leads to the formation of sulfur aerosols responsible for acid rain (Hansell and Oppenheimer, 2004), problems on vegetation growth close to volcanoes, and cause asthma or respiratory problems to humans (Dean and Dehn, 2015; Williams-Jones and Rymer, 2015).

Mount Etna mean SO₂ flux is equivalent, for example, to the total anthropogenic SO₂ emissions from France (Hansell and Oppenheimer, 2004). It is the largest active volcano in Europe and the world's strongest permanent contributor of volcanic volatiles to the atmosphere (Allard, 1997), which makes it one of the most monitored volcanoes of the planet (Allard et al., 2006). The accurate characterization of its gas emission fluxes is, hence, the purpose of many studies.

Volcanic gas emissions are mostly monitored by satellites as well as by ground-based instruments. The satellite-based instruments remotely measuring SO₂ use different channels

and absorption bands such as OMI (Ozone Monitoring Instrument) (Carn et al., 2008, 2016) and TROPOMI (Tropospheric Monitoring Instrument) (Gouhier and Paris, 2019; Theys et al., 2019) in the ultraviolet (UV), MODIS (*Moderate-Resolution Imaging Spectroradiometer*), SEVIRI (*Spinning Enhanced Visible and Infrared Imager*) (Watson et al., 2004; Prata and Kerkmann, 2007), IASI (*Infrared Atmospheric Sounding Interferometer*), and AIRS (*Atmospheric InfraRed Sounder*) (Karagulian et al., 2010; Carn et al., 2005) in the infrared (IR). Ground-based monitoring is performed remotely using ultraviolet (UV) cameras (Mori and Burton, 2006), mini-DOAS (Differential Optical Absorption Spectroscopy) instruments (Galle et al., 2003; Edmonds et al., 2003), and IR cameras (Prata and Bernardo, 2014). The NOVAC (Network for Observation of Volcanic and Atmospheric Change) project with the deployment of fully automated mini-DOAS systems used in a scanning mode has permit to get the first real-time determinations of SO₂ flux in a monitoring system (Merucci et al., 2011). This system allows the monitoring of nearly 20 volcanoes around the world (Galle et al., 2010). In 2004, the FLAME (*FLux Automatic MEasurements*) network was developed and installed by the Istituto Nazionale Geofisica e Vulcanologia (INGV) (Catania, Sicily) on Mount Etna flanks with nine UV scanning spectrometers to automatically get SO₂ fluxes in real-time and with a high frequency (Salerno et al., 2009b). The network collects data daily during the daytime with a complete scan every ~5 min (Queißer et al., 2019). The SO₂ flux emissions of the different vents of Mount Etna from the FLAME network reveals shifts in the activity of each vent approaching an eruptive episode (D'Aleo et al., 2016; Aiuppa et al., 2007).

Ground-based hyperspectral infrared imaging systems of volcanic degassing offer high spatial, spectral, and temporal resolution measurements (Smekens and Gouhier, 2018; Huret et al., 2019). Such imagers can provide continuous day and night measurements, which is likely the most important advantage over UV imagers, but also essential to monitor volcanoes located in high latitude regions during the wintertime. Commercial hyperspectral IR imagers are still an expensive technology, which may be more attractive in the near future with the increase of possible applications and the development of studies and algorithms aiming at exploiting all the capacities of such instruments. Nevertheless, some recent advances on the development of uncooled detector technology allow the use of cheap thermal infrared imagers to quantify hazardous gases. Wright et al. (2013) presented the characteristics of a thermal hyperspectral imager with ~30 spectral bands in the 8–14 μm wavelength region (Wright et al., 2013).

Hyperspectral imaging is an interesting and powerful tool in a wide range of applications such as agriculture, forestry, and environmental management (Clark et al., 2005), geological exploitation and mineralogy, urban planning, and disaster prediction, military and defense

(Briottet et al., 2006), but also remote sensing of volcanic plume for gas emissions monitoring. The vast amount of data comprised in the spectra of the images obtained with this kind of instrument makes it heavy to process and induce to set up a methodology for classifying the pixels of an image to get the most information of the spectral signature in near real-time. Different deep-learning methods exist, including supervised or unsupervised, parametric or non-parametric ones. Paoletti et al. (2019) reviewed the different popular models and architectures used for the classification of remotely sensed hyperspectral spectral images (Paoletti et al., 2019). To achieve a successful classification of the image pixels, many factors and steps are involved, starting with the determination of a suitable classification system, selection of training samples, image preprocessing, feature extraction, selection of suitable classification approaches, post-classification processing, and accuracy assessment (Lu and Weng, 2007).

When pixels of images are spectra like in this study, the goal of image pixels classification is to identify different patterns in spectra with an automated methodology in order to extract information from data and create a set of reference spectra. Many classification approaches have been developed depending on the domain of application. For example, Van Damme et al. (2017) present a version of a neural-network-based algorithm developed to retrieve in near real-time the ammonia columns from the satellite observations from the hyperspectral imager IASI (Damme et al., 2017).

A methodology to analyze the large amount of data produced by such technology is necessary to respond to the need of NRT knowledge of volcanic gas emission fluxes.

In this paper, we present a spectral image classification methodology for infrared hyperspectral images from Mount Etna volcanic plume. The objective is to achieve a fast and accurate retrieval of volcanic plume in order to get the SO₂ emission flux in NRT, which is essential for early warning and mitigation of volcanic risk.

In the next section, we describe the dataset from the IMAGETNA field campaign and the LARA model (LATMOS (Laboratoire Atmosphères Milieux Observations Spatiales) Atmospheric Retrieval Algorithm) used to retrieve the data, and we present the method. More detailed information about the IMAGETNA and LARA model are presented in Huret et al. 2019 (Huret et al., 2019). Then, we bring step-by-step the pixels classification methodology that we applied to our dataset. The results of the classification and the flux estimations are presented in Section 5.3.3 and discussed in Section 5.3.4. The last section is dedicated to the conclusions and perspective of this study.

5.3.2. Materials and Methods

5.3.2.1. Overview of the Data

The IMAGETNA campaign was held from 21–26 June 2015 from the Pizzi De Neri Volcano observatory on the North side of Mount Etna at 2850 m altitude and at ~2 km from the plume. One of the purposes of the field campaign was to make remote observations of the plume of Mount Etna using the infrared imager Hyper-Cam developed by Telops company, during a quiescent stage of its activity. The first days of the campaign were dedicated to instrumentation deployment and basic tests. The weather during the campaign was very good, with mainly cloudless skies, allowing us to carry out a large number of measurements in good conditions.

The Hyper-Cam is a passive infrared hyperspectral imaging system with a spectral range of 840–1300 cm^{-1} (7.7–11 μm). This camera combines a high spatial resolution with images containing up to 320×256 pixels, a maximum field of view of $6.4^\circ \times 5.1^\circ$, and spectral resolutions from 0.25 to 150 cm^{-1} . Considering the geographical arrangement of the campaign and the parameterization of the hyperspectral imager in relation to the Etna plume, the surface of each pixel is 7.84 m^2 (i.e., 2.8×2.8 m). The Hyper-Cam is radiometrically calibrated using two blackbodies with different temperatures with a spectral radiometric accuracy of 0.5 K at a blackbody temperature of 30 $^\circ\text{C}$ (Lagueux et al., 2012). Each measured image has three dimensions: two spatial dimensions and one spectral dimension.

As shown in Figure 5.1(a), Mount Etna has several active craters pointed out with red arrows: the two central craters (Bocca Nuova (BN) and Voragine (V)), the North East crater (NEC), and the South East craters (SEC), which is the one created most recently (Calvari et al., 1994). To get the maximum thermal contrast between the plume and the background, the measurements were done early in the morning starting at around 8:00 UTC. Considering the direction of the plume propagation and the location of the observatory where the measurements have been done, the plume captured by the Hyper-Cam imager during the field campaign is mainly related to the North East Crater (NEC) of Mount Etna. An example of projection of the contours of the acquired images is superimposed on Figure 5.1(b). This projected image corresponds to an image of $[320 \times 64]$ pixels.

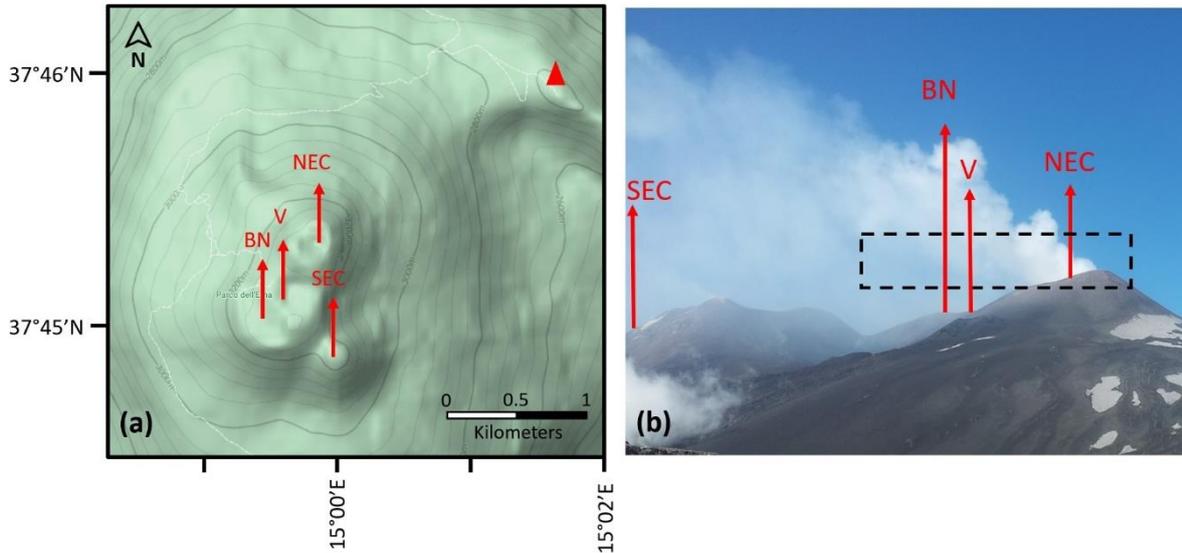


Figure 5.1 – (a) Map of Mount Etna area (© Google Maps) showing the location of the four different craters with red arrows: Bocca Nuova (BN), Voragine (V), North East crater (NEC), South East crater (SEC), and the location of the Pizzi De Neri observatory with a red triangle. (b) Picture taken from the measurement platform of the Pizzi De Neri observatory during the IMAGETNA campaign with an example of the Hyper-Cam projected image, represented by a black dashed rectangle, and the hand estimated location of the four craters (SEC, NEC, BN, and V) pointed out with red arrows.

A trade-off is necessary between the high spectral and spatial resolutions and the temporal resolution to capture the dynamism of the measured scene. Table 5.1 presents the main characteristics of the three sequences reported in this study such as spectral resolution, from 2 to 4 cm⁻¹, and the acquisition time, from ~1.3 to ~4.6 s, resulting from the trade-off made for each sequence. All the images have 20,480 pixels (i.e., 320 × 64 pixels). The field of view includes part of the ground, the plume, and the clear sky. The dataset is composed of ~900 images representing over 18 million of pixels and ~35 min of measurements.

Table 5.1 – Characteristics of the selected measurement sequences from the IMAGETNA Campaign.

#	Date Time	Spectral Resolution (cm^{-1})	Image Acquisition Time	Number of Images	Total Number of Pixels	Sequence Duration	Broadband IR image
A	23-06-2015 08:12:45	2	4.595 s	120	2.46×10^6	9'37"	
	– 08:22:22 (UTC*)						
B	26-06-2015 08:25:25	2	2.547 s	288	5.90×10^6	13'25"	
	– 08:38:50 (UTC)						
C	26-06-2015 07:17:59	4	1.274 s	470	9.63×10^6	11'03"	
	– 07:29:02 (UTC)						

*UTC: Universal Time Coordinated

The three sequences, to investigate SO₂ emissions fluxes, have been selected among the other sequences because of their cloud-free conditions but also because they have a common measurement geometry with an unchanged location and distance of the camera with respect to the plume. Moreover, the meteorological conditions are close in term of temperature and wind direction, which is roughly horizontal southeasterly. With such similarities, we can extract information from the data by developing data processing to the three cases. The acquisition times are of the order of a few seconds, allowing us to finely capture the dynamics of the plume and, hence, the SO₂ emission flux.

5.3.2.2. Retrieval Model: LARA

The data retrieval of SO₂ slant column densities has been performed with the LATMOS Atmospheric Retrieval Algorithm (LARA). LARA is a radiative transfer model associated with a minimization algorithm of the Levenberg-Marquardt type (Rodgers, 2000), which has been developed and adapted, in the last decade (Payan et al., 1998, 2017), to both nadir and limb geometries, and to balloon, satellite, or ground-based experiments (Butz et al., 2007; Payan et al., 2009; Keim et al., 2009). It takes into account the geometry of the plume, the thickness and the altitude, and different chemical species, H₂O, CO₂, O₃, CH₄, NO₂, and SO₂. The radiative transfer is calculated in each pixel with a profile along the line of sight divided in more than 40 layers from the instrument altitude of 2.85 km up to the top of the atmosphere at 100 km. The model also considers the contribution of particles in the IR spectra as well as the water vapor continuum (Clough et al., 2005). Huret et al. 2019 (Huret et al., 2019) present the different tests to configure the model and results of the SO₂ slant column densities (SCD) retrievals. The sensitivity of the retrieval to the parameters of the geometry of the plume, such as the plume altitude, its thickness, and the additional temperature with respect to ambient temperature, highlighted a low influence of those parameters on the SO₂ SCD in the dilute part of the plume. That study demonstrated that LARA is a robust and well adapted model to ground-based remote sensing of volcanic plume measurements.

The main downside of LARA is the calculation time to retrieve each image pixel-by-pixel. For example, the retrieval of an image of [320 × 64] pixels with 60 spectral points in the SO₂ spectral band requires one week of calculation on the computers of AERIS data center (www.aeris-data.fr) to be able to image the SO₂ slant column densities. This method is very expensive in term of calculation time and cannot be applied to process all other sequences from

the IMAGETNA campaign. To make the most of the capabilities of this kind of IR hyperspectral imager and to reach quasi real-time estimation of the SO₂ flux, developing a methodology to significantly reduce the calculation time of SO₂ SCD retrieval is crucial.

Five images of one of the sequences measured on 26 June 2015 have been previously processed pixel-by-pixel using the LARA model for the study presented in Huret et al. (2019) (Huret et al., 2019). Already retrieved images of SO₂ SCD (ppm m) can easily be converted into mass of SO₂ per surface unit (g m⁻²) using Equation (5.1).

$$SO_2 (g.m^{-2}) = \frac{SO_2 (ppm.m) \times M_{SO_2}}{V_{M_{air}}} \times 10^{-3} \quad (5.1)$$

with the molar mass of SO₂ $M_{SO_2} = 64.06 \text{ g mol}^{-1}$ and the molar volume of air $V_{M_{air}} = 33.2 \text{ L mol}^{-1}$ with a pressure of 692 hPa and a temperature of 276 K at Mount Etna altitude of 3300 m from Trapani meteorological sounding data performed on the days of the campaign. Figure 5.2 presents an example of the SO₂ mass per surface unit obtained in g m⁻² in the range of 0.02 to 30 g m⁻² for the image of 26 June 2015 at 08:25:44 UTC. As previously mentioned in Section 5.3.2.1, each pixel has a surface of 7.84 m². Hence, the image used as an example contains a total mass of SO₂ of ~560 kg.

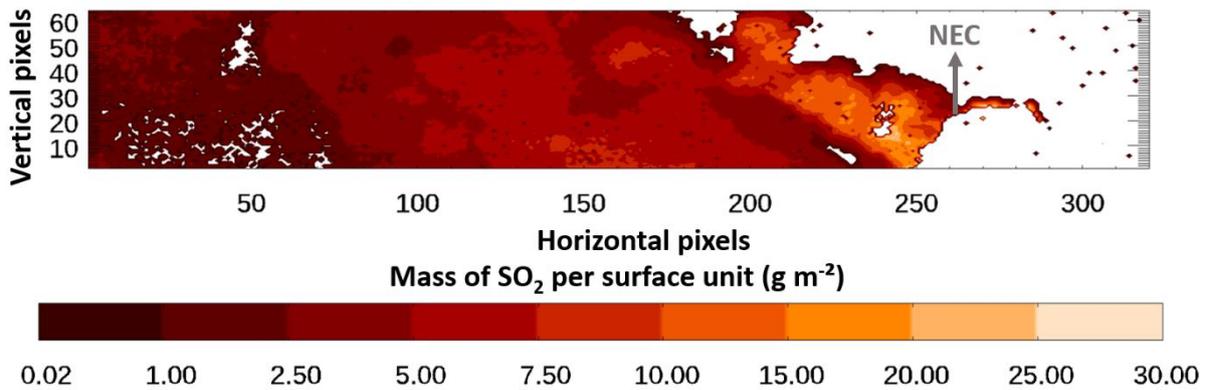


Figure 5.2 – Example of the mass of SO₂ per surface unit in g.m⁻² for 26 June 2015—08:25:44 UTC image retrieved pixel-by-pixel with the LARA model. The grey arrow indicates the NEC location.

5.3.2.3. Massive Retrieval Methodology

The objective here is to define the architecture of a network, based on characteristic features in the brightness temperature (BT) spectra, from which information leading to fast and accurate determination of the SO₂ SCD in each pixel can be extracted.

5.3.2.3.1. Hyper-Cam Spectral Band Analysis

The spectral range of the Hyper-Cam encompasses in particular the O₃ and the SO₂ emission bands at (1000–1100) cm⁻¹ and (1100–1200) cm⁻¹, respectively, as shown in Figure 5.3(a). The emission line intensities of O₃, SO₂, and H₂O extracted from the GEISA (Gestion et Etude des Informations Spectroscopiques Atmosphériques) spectroscopic database and simulated with a GEISA graphical tool (<https://geisa.aeris-data.fr/>), with an average spectral resolution greater than 0.2 cm⁻¹, are presented in Figure 5.3(a,b). Figure 5.3(a) shows well-defined spectral emission regions for O₃ and SO₂, which are independent from each other and can, therefore, provide specific information from either spectral window. The signal due to O₃ emission lines can be considered as two continuous well identified branches. The SO₂ emission line intensities are less intense, with two flattened wings. H₂O has several emission lines in the SO₂ spectral range [1100–1200] cm⁻¹ (see Figure 5.3(b)), which contribute to the signal. Since the water vapor column is retrieved simultaneously to SO₂, H₂O emission lines are then well fitted. Aerosols and droplets are parameterized and considered as a first-order modelling with a spectral dependency of the plume optical thickness (see Huret et al. 2019 for more details) (Huret et al., 2019). Figure 5.3(c) presents different examples of BT spectra extracted from the images of the third sequence of 26 June 2015 (sequence B in Table 5.1). The presence of O₃, SO₂, and H₂O is recognizable with more or less intensity in those example spectra depending on the part of the image they are related to. The spectral signatures in those images denote the ground in green, the sky without plume in red, the plume with different levels of dilution (in orange and blue), with more or less water vapor, droplets, and aerosols. The brightness temperature is the temperature a black body would have if it has the same radiance as the one measured by Hyper-Cam.

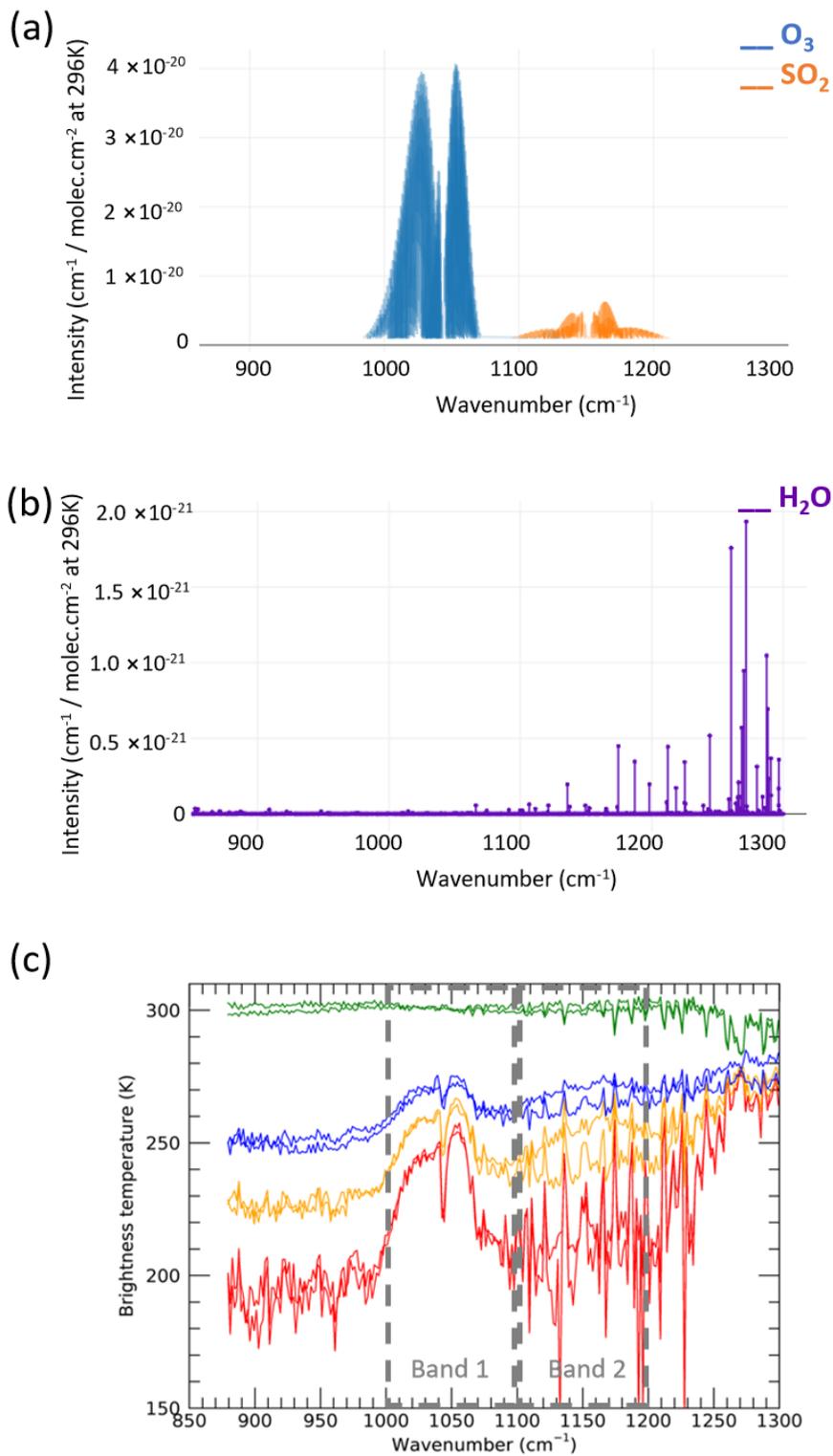


Figure 5.3 – Emission line intensities of (a) O_3 in blue, SO_2 in orange, and (b) of H_2O in purple simulated with the GEISA graphical tool between 850 and 1300 cm^{-1} . (c) Examples of spectra from 26 June 2015 dataset with: ground spectra in green, dense plume spectra in blue, diluted plume spectra in orange, and clear sky spectra in red. The grey dashed boxes identify the spectral bands 1 and 2 chosen for the image classification.

5.3.2.3.2. O₃ Emission Region: Spectral "Band 1"

The first spectral band considered here is situated in the range of 1000–1100 cm⁻¹ characteristic of O₃. Different examples of BT spectra from the measurements on 26 June 2015 with a spectral resolution of 2 cm⁻¹ are given on Figure 5.3(c). We can easily identify the ozone emission region, defined as Band 1, thanks to its typical rovibrational branches in the clear sky, the diluted plume, and the less diluted plume pixels, corresponding respectively to red, orange, and blue spectra. The ozone band in the clear sky is strong and characteristic of stratospheric ozone. The less diluted and opaque the plume is, the flatter the ozone branches are. As for the green spectra corresponding to ground pixels, the ozone is not relevant. Hence, the spectra are flat with an average BT value of 300 K. By calculating the integrated BT values in Band 1, we extract a spectral feature, identifying if we have a ground, a clear sky, or a plume pixel spectrum. The lowest values correspond to a clean atmosphere (i.e., plume free atmosphere), ~22,950 K cm⁻¹ for red spectra in Figure 5.3(c), and the highest values to a very opaque plume or even ground pixel, ~26,450 and ~29,950 K cm⁻¹ for blue and green spectra in Figure 5.3(c), respectively.

5.3.2.3.3. SO₂ Emission Region: Spectral "Band 2"

The second spectral band considered here is in the range of 1100–1200 cm⁻¹, which is the SO₂ spectral band. Inside Band 2 in Figure 5.3(c), we can see that the clear sky BT is the lowest with an average value of 200 K. A bump shape of the spectra in the diluted and less diluted pixels (orange and blue spectra, respectively) highlights the presence of SO₂ in the plume and the few more intense peaks are significant of the water vapor emission lines. The BT in the SO₂ spectral region increases along with the increase of SO₂ concentration inside the plume. By calculating the mean BT values in Band 2, we extract another spectral feature from the data, which is characteristic of the SO₂ concentration in the spectra. For the images of the IMAGETNA campaign previously presented in Table 5.1, the plume mean BT varies between 200 and 300 K in the clear sky and ground, respectively. The architecture of the classification network is composed of two layers. The first layer categorizes the pixels with regard to their main characteristic, which is either a ground, plume, or clear sky pixel using Band 1. An index I_{O_3} corresponding to the integrated value of the BT in the O₃ spectral region is attributed to each spectrum. Then, the second layer gives information about the concentration in SO₂. The second index, I_{SO_2} , attributed to each spectrum corresponds to the mean BT in the SO₂ spectral region.

Each spectral feature is extracted and classified following the mapping function $Y = f(I_{O_3}, I_{SO_2})$, which assigns a vector label to each pixel.

5.3.2.4. SO₂ Emission Flux Estimation

In this section, we present the chosen method to determine the Etna plume transport speed by analyzing the images and then the most adapted method used to estimate the SO₂ emission flux with regard to our campaign configuration.

5.3.2.4.1. Plume Transport Speed

A key parameter to estimate the SO₂ emission flux is the plume transport speed. Such data has not been measured during the remote measurement campaign. Each sequence contains a few hundred images, corresponding to a few minutes of measurement. Following the method explained in Aiuppa et al. (2015) (Aiuppa et al., 2015), it is possible to determine an average transport speed after determining its vertical and horizontal components using the reconstructed images of SO₂ SCD (or mass of SO₂ per surface unit). Two cross sections are fixed vertically, separated by a distance d_v and two horizontally separated by a distance d_h , corresponding to the number of pixels between the cross sections multiplied by the length of a pixel. By calculating the mean SO₂ SCD along the cross sections, we obtain two time-series, one vertically and one horizontally tracking the evolution over time of SO₂ SCD in the plume. The cross correlation of both time-series let us determine the time shift t_s , which represents the time necessary for the plume passing through the first vertical (or horizontal) cross section to reach the second cross section. The appropriate time shift is the one giving the best cross-correlation coefficient between the two time-series. A representation of the cross sections is presented in Figure 5.4(a).

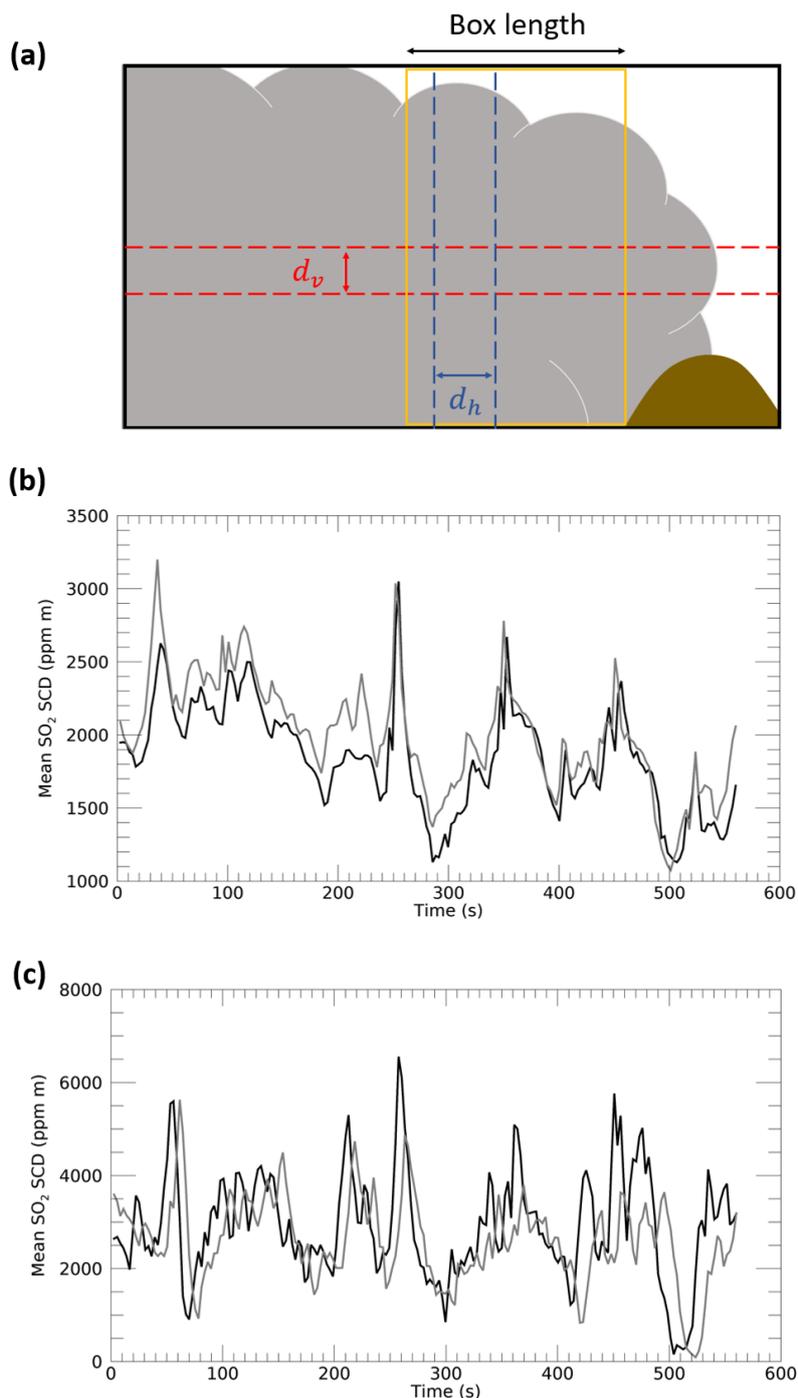


Figure 5.4 – (a) A schematic representation of the scene with two vertical cross sections in blue separated by a distance d_h and two horizontal cross sections in red separated by a distance d_v to determine, respectively, the horizontal and vertical contribution of plume transport speed, and the box fixed close to the emission source for the SO_2 emission flux estimation in yellow, (b) the time-series of the mean SO_2 slant column densities (SCD) of the two horizontal cross sections for the first 200 images of sequence B, and (c) the time-series of the mean SO_2 SCD of the two vertical cross sections for the first 200 images of sequence B.

Figure 5.4(b,c) present the SO₂ mean SCD values evolutions along 200 images of sequence B, for the vertical cross sections separated by a distance d_v corresponding to 5 pixels (i.e., ~14 m) and the horizontal cross sections separated by a distance d_h corresponding to 20 pixels (i.e., ~56 m), to characterize the plume transport speed. The plume transport speed v in m s⁻¹ is then calculated by following Equation (5.2).

$$v = \left(\sqrt{d_h^2 + d_v^2} \right) / t_s \quad (5.2)$$

5.3.2.4.2. Box Method for the Emission Flux Estimation

Different methods to derive the SO₂ emission flux from the SO₂ slant column densities (or mass of SO₂) exist such as a traverse method, delta-M method, box method, or an inverse modelling method (Theys et al., 2013). Most methods are adapted to satellite or airborne measurements of volcanic plumes. Instantaneous SO₂ mass loading measurements from remote instruments represent the budget between emitted and lost SO₂. Therefore, when calculating gas fluxes, the SO₂ loss has to be taken into account. The loss is mainly due to SO₂ oxidation into sulfuric acid droplets and SO₂ volume dilution, making its detection below a given threshold impossible. The rate of gas loss is related to the meteorological conditions and its inclusion may depend on the measurement settings. In our case, measurements were carried very close to the source vent by using high temporal and spatial resolutions, and located to altitudes larger than 3 km above sea level, close to the free troposphere. These conditions of acquisition allow us to neglect the SO₂ loss factor (McGonigle et al., 2004). One of the simplest and most adapted method to derive the first estimation of the emission flux of SO₂ is the box method. It consists in defining a box, as presented with the yellow box in Figure 5.4(a), calculating the total mass of SO₂ in the box and then multiplying it by the plume age. The plume age is the time the plume needs to cross the box. It is obtained by multiplying the box length with the average plume transport speed v . In order to lower the uncertainties of the SO₂ emission flux estimation, the fixed box is placed as close as possible to the emission source.

5.3.3. Results

5.3.3.1. Training Dataset

The spectral image classification methodology was conducted using five images of the third sequence recorded on 26 June 2015. Those images have been retrieved pixel-by-pixel with the LARA model for a previous study presented in Huret et al. (2019) (Huret et al., 2019). They are used here as a training dataset composed of 102,400 spectra. Different ranges of values assigned to the two indexes were tested to determine the best compromise between the number of classes obtained, which means the number of different patterns of spectra, and the range size limit to keep as much information as possible by classifying the images.

5.3.3.1.1. Interval Width for I_{O_3} Index

Four ranges of values for the integrated BT values have been tested: 10, 50, 100, and 500 K cm⁻¹. The main results obtained for each tested value with a fixed value of 1 K for the range of mean BT in the spectral Band 2 is presented in Table 5.2. The only I_{O_3} range value showing a significant difference is 500 K cm⁻¹ with only ~26% of the pixels with less than 10% of relative standard deviation for plume pixels against ~48% for ranges of 10, 50, and 100 K cm⁻¹.

Table 5.2 – Main results for the tested ranges of values of I_{O_3} indexes

Tested Ranges (K cm ⁻¹)	Percent of Plume Pixels/Classes	Number of Classes
	with Relative Standard Deviation on SO ₂ SCD < 10%	with Relative Standard Deviation on SO ₂ SCD < 10%
10	47.7/35.1	629
50	47.1/29.7	133
100	48/30.6	78
500	25.9/20.4	21

5.3.3.1.2. Interval Width for I_{SO_2} Index

Three ranges of values for the mean BT have been tested: 1, 5, and 10 K. The main results obtained for each value with a fixed range value of 100 K cm⁻¹ for the integrated values

in the spectral Band 1 are presented in Table 5.3. The tested range values for the mean BT, attributed to I_{SO_2} , only gives satisfying results for the range value of 1 K. The ranges of 5 and 10 K induce an important loss of pixels in classes with less than 10% of a relative difference in the SO_2 standard deviation in classes.

Table 5.3 – Main results for the tested ranges for values of I_{SO_2} indexes.

Tested Ranges (K)	Percent of Plume Pixels/Classes with Relative Standard Deviation on SO_2 SCD < 10%	Number of Classes with Relative Standard Deviation on SO_2 SCD <10%
1	48/30.6	78
5	14.1/21.7	18
10	6.3/14.5	9

The chosen spectral image classification configuration with the best compromise is a range of 100 K cm^{-1} , between two values of integrated BT for I_{O_3} , and a range of 1 K, between two values of mean BT for I_{SO_2} .

5.3.3.1.3. Class Weight Distribution

Figure 5.5(a,b) represent the weight attributed to each index I_{O_3} and I_{SO_2} , respectively. The different bumps in the distributions highlight three main features from the images, which we can call clusters. The first cluster (1) corresponds to the clear sky pixels with I_{O_3} index < 25 and I_{SO_2} index < 30, which is equivalent to an integrated value of the BT below $23,500 \text{ K cm}^{-1}$ and a mean BT below 230 K. The second cluster (2) encompasses the plume pixels with I_{O_3} indexes in the range of 25 to 75 and I_{SO_2} indexes in the range of 30 to 90, equivalent to integrated BT values in the range of $[23,500:28,500] \text{ K cm}^{-1}$ and mean BT in the range of $[230:290] \text{ K}$. Then, the third cluster (3) collects the ground pixels with I_{O_3} index > 75 and I_{SO_2} index > 90, equivalent to an integrated BT greater than $28,500 \text{ K cm}^{-1}$ and a mean BT above 290 K. The distribution of the number of pixels for each I_{SO_2} is wider in the plume cluster than the distribution of pixels for I_{O_3} . The pixels have a thinner distribution along I_{SO_2} indexes with a total number of pixels around 3000 for the higher peaks while the higher peak of the total number of pixels along I_{O_3} reaches 4000. The diversity of I_{SO_2} values for one I_{O_3} is greater when

considering the plume part of the image. This highlights the added value of the I_{SO_2} indexes to get information about SO₂ SCD from data using the two layers classification methodology.

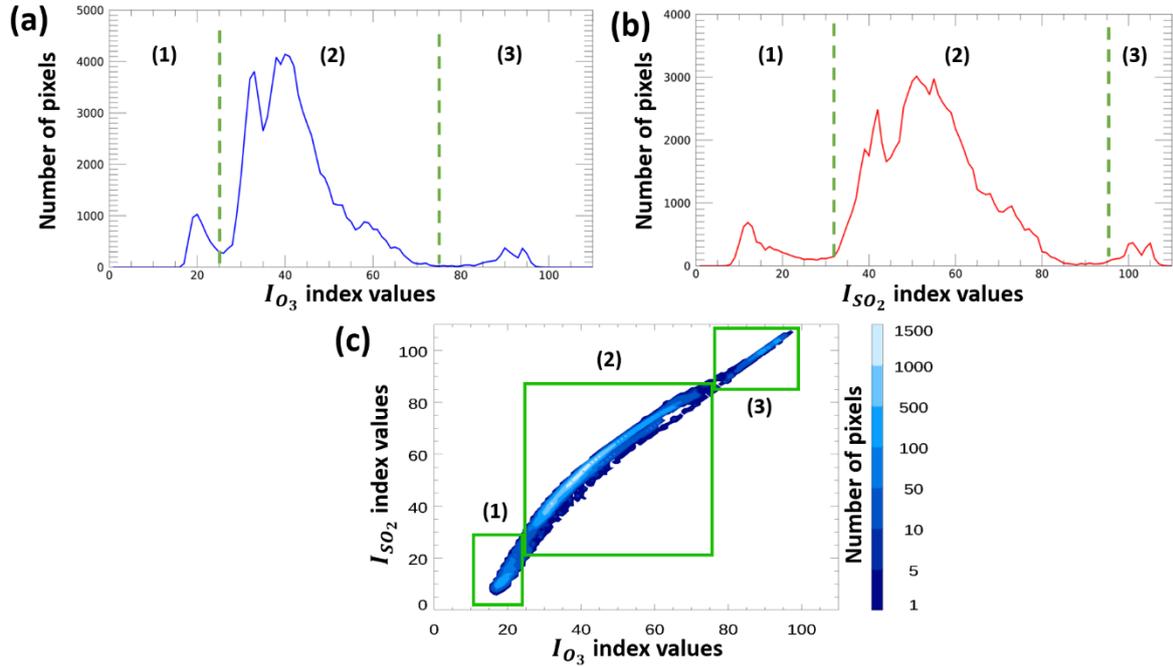


Figure 5.5 – (a) Total number of pixels according to each I_{O_3} index value and (b) total number of pixels according to each I_{SO_2} index value with three parts of each distribution separated by green dashed lines. (c) 3D distribution of the number of pixels in each class with green boxes and dashed lines enlighten three clusters: (1) clear sky, (2) plume, and (3) ground.

The 2D distribution of the number of pixels in each class (see Figure 5.5(c)) has a very linear shape. However, the third dimension corresponding to the weight of each class, let us find the three main features from the images with lighter blue contours. Most of the pixels are situated in the cluster related to the plume.

As presented in Huret et al. (2019) (Huret et al., 2019), the retrieval of SO₂ SCD must respect two threshold values to be considered of good quality: a normalized $\chi^2 < 10$ and an error on the retrieved scaling factor on the SO₂ SCD calculated by the LARA model that must be lower than 10%. Taking into account those threshold values, the SO₂ SCD corresponding to each pair of (I_{O_3} , I_{SO_2}) is calculated by taking the average value in each class of the SO₂ SCD obtained with the pixel-by-pixel method for the training dataset. Around 50% of the classes corresponding to the plume part have a relative standard deviation of $< 10\%$ and $\sim 90\%$ have a relative standard deviation of $< 15\%$. Some classes only contain a couple of pixels from the five images. To ensure that a class corresponds to a sufficiently characteristic spectral pattern of the

plume, we consider that each class must contain at least 0.01% of the total number of plume pixels from the dataset. Hence, the classes from the training dataset must contain at least seven pixels. After applying this criterion, we have 195 remaining classes corresponding to ~68,000 pixels (99.7% of the plume pixels). In the end, 66% of the pixels from the training dataset are used to create a library to reconstruct images of SO₂ SCD (ppm m) or SO₂ mass per surface unit (g m⁻²) for the other sequences of Table 5.1. The other 34% corresponds to clear sky pixels, earth surface pixels, and plume pixels with LARA retrieval parameters above threshold values.

5.3.3.1.4. Analysis of the Classification Accuracy

A way to evaluate the accuracy of the classification using the five images of the training dataset is to see how correlated are the SO₂ SCD values from the pixel-by-pixel retrieval and the SO₂ SCD from the library created thanks to the classification, as shown in Figure 5.6. As presented in Huret et al. 2019 (Huret et al., 2019), the parameters used to define the Etna plume captured with Hyper-Cam (altitude, thickness, and an additional temperature with regard to ambient temperature) can have a significant impact on the SO₂ SCD retrieval close to the crater. Hence, for the interpretation of the results, we applied the same procedure and separated the five images of the training dataset in two parts, “diluted plume part” and “dense plume part”, along the same vertical line. The first order regression of the correlation points of the diluted plume part, in red, gives a slope of 0.97 following Equation (5.3).

$$SO_2SCD_{library} = 0.97 \times SO_2SCD_{pixel\ by\ pixel} + 88.9 \quad (5.3)$$

The correlation of the diluted plume part points is compact. When SO₂ SCD values exceed 7000 ppm m, we observe a wider range of SO₂ SCD values from the pixel-by-pixel retrieval attributed to one class. The correlation points over 7000 ppm m extending over a wider range of values represent only 2.7% of the plume pixels of the training dataset.

The results obtained with the training dataset composed of five images are, thus, very satisfying. The library created with the 195 plume classes was applied to retrieve the images of the other sequences.

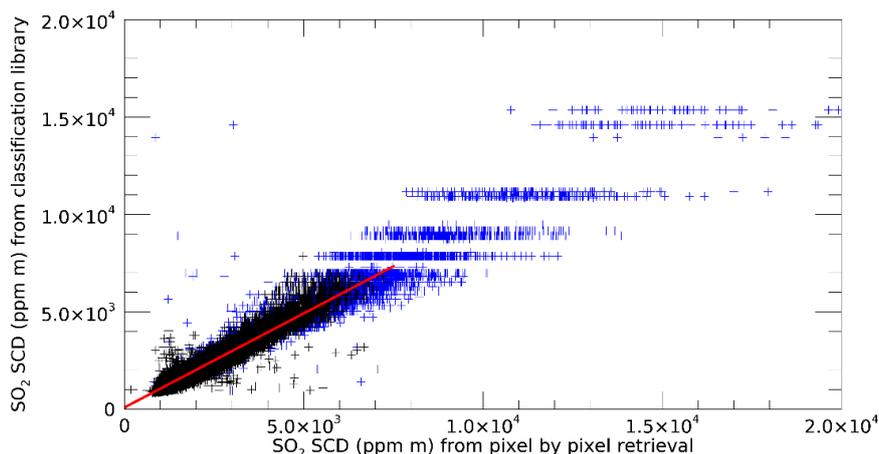


Figure 5.6 – Example of correlation between the SO_2 SCD of the plume pixels of the training dataset of 26 June 2015 from the pixel-by-pixel method with the reconstructed values using the classification library. The black points are from the “diluted part of the plume” and the blue point are from the “dense part of the plume”. The first order regression of the “diluted part of the plume” is in red with a slope of 0.97 and a determination coefficient of 0.94.

5.3.3.2. Tested Dataset

We apply the method to the 900 images of the three sequences previously presented in Table 5.1. Those sequences have been captured with similar instrument orientation as the plume of Mount Etna was transported in the same direction over the days of the campaign. Each image has ground pixels situated at the bottom right part of the images, clear sky pixels at the upper right part of the images, and the rest being plume pixels. All the sequences are classified independently, and each pixel is labeled with its corresponding I_{O_3} and I_{SO_2} indexes. As mentioned in Section 5.3.3.1.3, the classes with less than 0.01% of the total number of plume pixels from the sequences are excluded. Moreover, since our interest is in plume pixels, we only consider classes corresponding to I_{O_3} indexes with BT integral values in the range of [23,500:28,500] $K\text{ cm}^{-1}$.

Table 5.4 sums up the characteristics of the classification of the three tested datasets such as the time to classify an image, the proportion of patterns necessary to reconstruct the SO_2 SCD images, and those who are not listed in the library. The time necessary to classify a sequence depends on three elements: the size of the image (i.e., number of pixels), the number of images in the dataset, and the spectral resolution. The retrieval is in the order of ~ 15 s for an image with a spectral resolution of 4 cm^{-1} and in the order of ~ 35 s for an image with a spectral resolution of 2 cm^{-1} . In comparison with the pixel-by-pixel method, which demands a week of

calculation for an image of sequence B, the classification and retrieval using the library only takes ~34 s to retrieve an image from that same sequence.

Table 5.4 – Main characteristics of the classification of the tested sequences.

Sequence #	Classification Time (s/Image)	Number of Classes: In the Plume/Out of Plume Library	Percent of Pixels from Plume Out of the Library
A	36.7	560/109	22.5
B	33.8	687/156	20.6
C	15.3	754/99	15.0

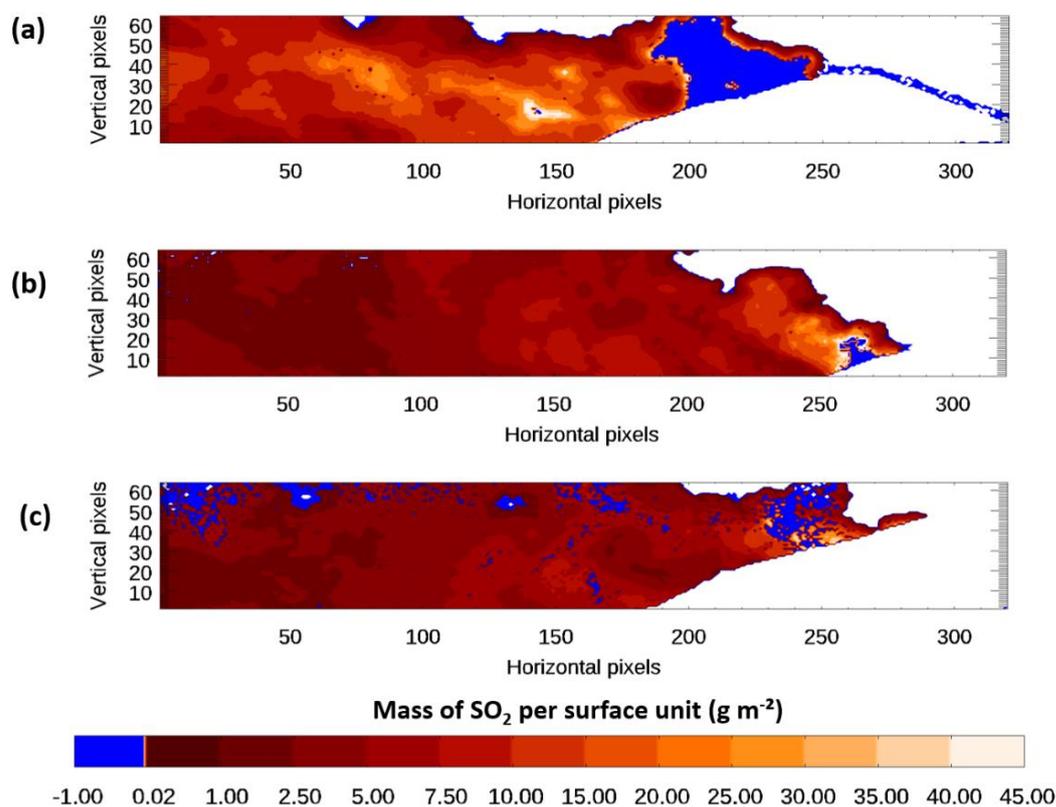


Figure 5.7 – Examples of mass of SO₂ per surface unit (g m⁻²) images retrieved with the training dataset library with the unlisted class pixels colored in blue: (a) Sequence A (23 June 2015—08:13:33 UTC), (b) Sequence B (26 June 2015—08:25:33 UTC), and (c) Sequence C (26 June 2015—07:18:08 UTC).

Even though Mount Etna was in a quiescent stage of activity (i.e., not in eruption) and the plume was transported in the same direction, the training dataset represents only a part of the variety of the SO₂ spectral patterns of the Etna NEC plume. The library created allows the massive retrieval of three sequences with only 15% to ~ 22% of unlisted plume pixels patterns, distributed in the whole sequence. One image example from each of the three datasets is presented in Figure 5.7 with the missing pixels colored in blue. As can be seen in Figure 5.7(a), the sequence A has higher values of mass of SO₂ per surface unit in the range of ~ 2.5–35 g m⁻² in comparison with sequence B and C with values ranging from ~ 1–20 g m⁻². The example images from sequences A and B suggest that most of the missing pixels are close to the emission source. Nevertheless, the unlisted pixels of each sequence are not only limited to the denser part of the plume. If we look at those pixels in more detail, 70% of the missing pixels of sequence A, 92% from the one of sequence B, and 29% from the unlisted ones of sequence C, are in the denser part of the plume (i.e., I_{O_3} indexes > 50).

5.3.3.3. SO₂ Emission Flux

The three tested datasets have more than 80% of their plume pixels included in the library, which is enough to estimate the SO₂ emission flux.

Over the few minutes of measurement, the vertical contribution of the plume transport speed was null or negligible with cross correlation coefficients of determination from 0.83 to 0.89. The vertical cross correlations indicate that the Etna plume propagated horizontally with a plume transport speed going from ~ 5.8 m s⁻¹ (sequence A) to ~ 6.6 m s⁻¹ (sequences B and C). Mount Etna was in a passive degassing period and the sequences recorded lasted a few minutes. Based on the cross-correlation calculation results, the plume transport speed remained uniform and was considered constant.

The boxes are fixed with a horizontal length corresponding to 50 pixels (~140 m) and a vertical length corresponding to the 64 vertical pixels (~179 m) of each of the three sequences and are placed close to the ground part of the image. The time evolution of the SO₂ emission flux of the three sequences is presented in Figure 5.8 and the average results from the three datasets are presented in Table 5.5. The position and the small size of the boxes, ~25.2 km², allow us to capture the heterogeneity of the concentration of SO₂ coming out of the crater. The variability of the SO₂ emission flux is important, with values going from single to double within seconds, especially for the sequences A and B. Short videos showing the dynamism of the

plume for the three sequences are available in the additional material of this paper (externally hosted Supplementary Materials Files 1–3).

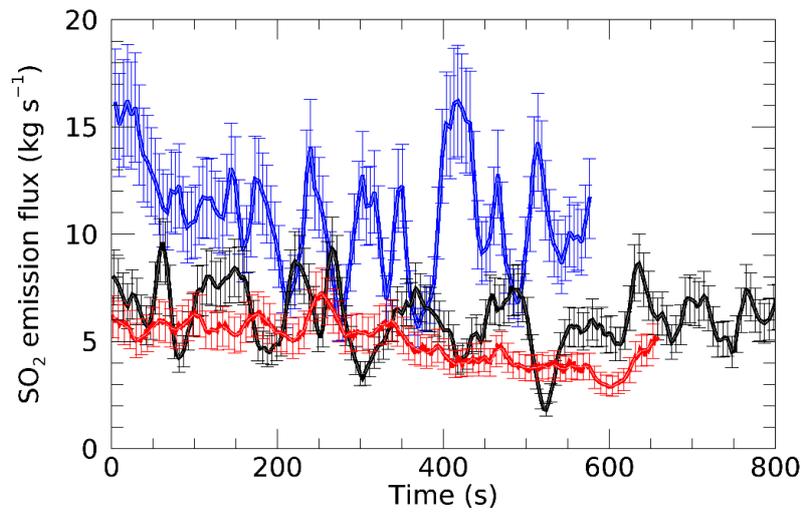


Figure 5.8 – Time evolution of the SO_2 emission flux estimation of the three sequence (A in blue, B in black, and C in red) and corresponding error-bars.

Table 5.5 – Average plume transport speed, average mass of SO_2 per surface unit, and average SO_2 emission flux over the sequences with a corresponding standard deviation (1σ).

#	Plume Transport Speed ($m.s^{-1}$)	Average Mass of SO_2 Per Surface Unit	Average SO_2 Emission Flux	
		($g.m^{-2}$)	($kg.s^{-1}$)	($t.day^{-1}$)
A	5.83	10.54 ± 7.76	10.87 ± 2.61	938.84 ± 225.25
B	6.66	5.34 ± 4.53	6.13 ± 1.41	529.79 ± 122.13
C	6.62	4.56 ± 2.93	4.95 ± 0.98	427.51 ± 85.15

5.3.4. Discussion

The number of patterns of the training dataset is small in comparison to the diversity of Mount Etna behaviors (Allard et al., 2006). Nevertheless, we managed to retrieve the SO_2 SCD of three sequences from the IMAGETNA campaign.

The estimation of the NEC SO_2 emission flux shows how variable the emissions are in the scale of a few seconds. Most of the SO_2 emission fluxes from Mount Etna in the literature

are values averaged over hours or days. Aiuppa et al. (2008) (Aiuppa et al., 2008) estimated the flux of SO₂ from the NEC to be around 352 t day⁻¹ with an error around 20% during a passive degassing state of Mount Etna in July 2007 using routine DOAS traverse measurements. La Spina et al. (2010) (La Spina et al., 2010) obtained SO₂ flux from 270 to 1000 t day⁻¹ with a standard error of 30% using a ground-based lightweight open-path Fourier transform infrared spectrometry in active mode with a portable infrared lamp. Gliß et al. (2018) (Gliß et al., 2018) presented an average estimation, from 15 min of ground-based UV camera measurements on 16 September 2015, of the NEC SO₂ emission flux of ~8 kg s⁻¹ (equivalent to ~ 690 t day⁻¹). In Prata and Bernardo (2014), the obtained SO₂ emission flux is in the range of 10–20 kg s⁻¹ (equivalent to ~ 860–1730 t day⁻¹) along a period of 7 h of measurement in September 2003 with data acquired every 4–6 min using the multifilter thermal infrared camera system Cyclops (Prata and Bernardo, 2014). Our results are in the range of values obtained in the literature. Nevertheless, our estimation of the North-East Crater SO₂ emission flux are only partial estimations since the plume of Mount Etna was trimmed by the field of view of the Hyper-Cam imager, capturing only a part of the total plume of the NEC, which, moreover, would be the gas emission of only one of the four main craters of Mount Etna.

Oppenheimer et al. (2006) presented SO₂ column amounts from ground-based UV spectrometer measurements with a scattered skylight as a UV source, ranging from 0.5 to 3 g m⁻² for measurements within La Voragine summit crater, which was the strongest gas sources at the moment of the measurements, and values up to 2 g m⁻² for measurements of the plume of Etna from a location at ~2 km from the craters (Oppenheimer et al., 2006). The SO₂ emission flux also measured by UV spectroscopy on that day was ~ 11 kg s⁻¹ (equivalent to ~950 t day⁻¹). The SO₂ column amount from our three datasets are a bit higher with average values ranging from 4.5 to 10.5 g m⁻².

One of the main sources of uncertainties is related to the estimation of the plume transport speed. The error on the retrieval of SO₂ SCD also impact the estimation of the SO₂ emission flux. For the training dataset, the average error is ~ 5.8%. The uncertainties of the SO₂ emission flux estimation are mostly related to the plume transport speed determination and the averaging of the SO₂ slant column densities calculated in each class outcoming from the training dataset classification. The error on the plume transport speed is directly linked to the estimation error on the distance from the instrument to the plume that was determined visually with the relief. We consider this error as being ~ 10%, so that the average error on the estimate of the SO₂ emission flux is ~ 16% for the presented datasets. It is in the range or even lower than the uncertainties on SO₂ emission flux of similar studies like the one from Gabrieli et al. on Kilauea

volcano in Hawaii with less than 25% of error mainly induced by the determination of wind velocities (Gabrieli et al., 2019).

5.3.5. Conclusion

In this paper, we have presented a spectral classification methodology of the Hyper-Cam images pixels from the IMAGETNA campaign. The network architecture is composed of two layers corresponding to two features extracted from the spectral bands of O₃ and SO₂. One feature characterizing the opacity of the plume and the second one characterizing the concentration in SO₂. The accuracy of the classification results was evaluated in correlation with the results of the time-consuming pixel-by-pixel retrieval, giving a first order regression slope of 0.97 and a very good determination coefficient of 0.94 in the diluted part of the training dataset. This method allows a fast and accurate reconstruction of SO₂ slant column density images of three sequences from the IMAGETNA campaign. Each image is processed in less than 40 s instead of 7 days with a pixel-by-pixel retrieval methodology.

The plume transport speed was determined by calculating the cross correlation between time series of mean SO₂ slant column densities along two horizontal and two vertical cross sections. The SO₂ emission flux relative of the North-East Crater from Mount Etna was estimated using the “box method” and the results ranged from ~ 5 to 11 kg s⁻¹ (~430–940 t day⁻¹) with an error of ~ 16%.

A way to improve the developed methodology would be to include neighborhood pixels information. The results presented here were performed on sequences of a few minutes with similar weather conditions, plume level of activity, and measurement characteristics. In the future, it would be interesting to test this image pixels classification method on datasets with other characteristics to enrich the training dataset and develop a fast procedure to enlarge the library, and, thus, retrieve the missing features. A wider field of view or a different geometrical configuration of measurement, making it possible to capture the entire Etna plume, would also allow comparisons to be made with other methods of spectra retrieval and estimation of the SO₂ emission flux.

The use of a hyperspectral infrared imager, with an acquisition time of images of a few s, associated with the classification and retrieval time of the spectra of an image lower than a min, would allow the monitoring of the evolution of SO₂ emission flux in near-real-time at a high frequency. All of this would contribute to help prevent any hazards coming from active

volcanoes but also strengthen the attractiveness and interest of this technology for volcanic gas emissions monitoring.

Supplementary Materials: The following are available online at <http://www.mdpi.com/2072-4292/12/24/4107/s1>,

Externally hosted Supplementary File 1: SO₂ Slant column densities from sequence A Link: <https://hal.uca.fr/hal-02988223>. Externally hosted Supplementary File 2: SO₂ Slant column densities from sequence B Link: <https://hal.uca.fr/hal-02988226>. Externally hosted Supplementary File 3: SO₂ Slant column densities from sequence C. Link: <https://hal.uca.fr/hal-02988229>.

Author Contributions: Conceptualization, C.S., N.H., and S.P. Methodology, C.S., N.H., and S.P. Software, C.S. and S.P. Validation, C.S. Formal analysis, C.S., N.H., and S.P. Investigation, C.S. Resources, N.H., S.P., M.G., and V.C. Data curation, C.S. and S.P. Writing—original draft preparation, C.S. Writing—review & editing, N.H., S.P., M.G., and V.C. Visualization, C.S. Supervision, C.S. Funding acquisition, N.H. and V.C. All authors have read and agreed to the published version of the manuscript.

Funding: This project IMAGETNA is funded by the LABEX Voltaire n° ANR-10-LABX-100-01 from the ANR agency and the French national program of chemistry LEFE-CHAT from CNRS-INSU. This research was funded through HEMERA infrastructure (via the European Union's Horizon 2020 research and Innovation program (grant N° 730970)), by Centre National d'Etudes Spatiales and Institut National des Sciences de L'Univers (CNES/INSU APR 2020).

Acknowledgments: We sincerely thank the INGV for providing logistic at Etna and get very good conditions for the campaign. We thank A. Huot (TELOPS Inc.) for fruitful exchanges and her availability during the campaign. We thank the AERIS Data and Service for the Atmosphere infrastructure (www.aeris-data.fr/) which provides us the computer capacity for data processing. This work is a part of C.S. PhD thesis supported by the Doctoral School of Fundamental Sciences of the Université Clermont Auvergne.

Conflicts of Interest: The authors declare no conflict of interest.

5.4. Conclusion

Dans ce chapitre une méthodologie de classification des spectres infrarouges de l'imageur hyperspectral Hyper-Cam a été détaillée. Les tests que j'ai effectués sur la taille des intervalles de valeurs des deux paramètres du réseau de neurones ont permis de déterminer une configuration optimale. Trois séquences de mesures de la campagne IMAGETNA, présentant une configuration de mesures équivalente, ont été traitées à l'aide de cette méthode.

Le jeu de données d'entraînement a permis de créer une bibliothèque de 195 classes permettant d'associer une valeur de densité de colonnes de SO₂ à environ 80-85% des spectres des séquences traitées. Cette classification a permis d'obtenir une carte de SO₂ SCD en ~ 40 secondes contre une semaine de calcul précédemment nécessaire pour la méthode d'inversion pixel par pixel.

Grâce à une méthode de boîte, les flux d'émission de SO₂ de ces trois séquences ont pu être estimés. La haute résolution temporelle des mesures y est clairement visible, avec une variabilité du flux d'émission de SO₂ nette, sur les trois évolutions temporelles présentées dans l'article. Les flux d'émission sont dans la gamme de 5 à 11 kg s⁻¹ avec une erreur d'environ 16%, notamment liée aux incertitudes dans la détermination de la vitesse de déplacement du panache volcanique au cours du temps d'acquisition des images.

Cette méthode est très prometteuse pour un traitement en quasi-temps réel des images d'un imageur hyperspectral infrarouge tel que l'Hyper-Cam. Elle nécessite néanmoins de nourrir la bibliothèque avec d'autres configurations de mesures pour pouvoir répondre à la variété de situations possibles.



C onclusion et perspectives

Les panaches volcaniques sont l'illustration du lien direct qui existe entre ce qu'il se passe sous la croûte terrestre et dans l'air. Ces travaux se veulent être à la jonction de deux communautés, celle des sciences atmosphériques et celle des sciences de la Terre.

Ce travail de thèse a permis de caractériser la composition et les flux d'émission en dioxyde de soufre du panache volcanique de l'Etna, à partir d'images hyperspectrales infrarouges traitées avec le modèle de transfert radiatif et d'inversion LARA (*LATMOS Atmospheric Retrieval Algorithm*). Les données exploitées proviennent de la campagne de mesures IMAGETNA qui a eu lieu en juin 2015 au Mont Etna en Sicile, période à laquelle le volcan était dans une phase d'activité non éruptive. Le déploiement de l'imageur hyperspectral infrarouge Hyper-Cam, de la société Telops, était l'une des toutes premières utilisations de cette technologie émergente, pour des mesures de télédétection d'un panache volcanique. La campagne a permis de collecter près de cinq heures de mesures et ~7000 images du panache.

Mes travaux se sont articulés autour de trois questions :

1) *Est-ce qu'un imageur hyperspectral infrarouge a une sensibilité suffisante pour la mesure des gaz caractéristiques des émissions des volcans, et est donc adapté à la mesure par télédétection des panaches volcaniques ?*

Dans le chapitre 3, les mesures réalisées par l'imageur hyperspectral ont pu être validées à l'aide des mesures d'un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier (FTIR), mesurant un mono-pixel en simultané avec l'Hyper-Cam et dans son champ de vue. Il a ainsi été montré que l'instrument était suffisamment sensible pour ce type de mesures. De plus, les valeurs d'écart types, dans certaines parties de la fenêtre spectrale de l'Hyper-Cam, des spectres compris dans la surface du mono-pixel du FTIR démontrent que la résolution spatiale et temporelle de l'imageur hyperspectral permet, en plus, de capturer finement la dynamique du panache.

2) *Est-ce que les modèles de transfert radiatif et d'inversion raie-par-raie sont suffisamment robustes pour simuler le transfert radiatif à partir d'images 3D à haute résolution*

spectrale pour caractériser finement les densités de colonnes de gaz présents dans les panaches volcaniques ?

Mes travaux de thèse ont aussi consisté à adapter le modèle de transfert radiatif et d'inversion LARA, à la géométrie du panache le long de la ligne de visée de l'imageur. Plusieurs tests de sensibilité ont été effectués, permettant d'estimer l'influence des trois paramètres caractéristiques du panache sur les résultats d'inversion des densités de colonnes obliques de SO₂ (SO₂ SCD) par le modèle. De ces tests, présentés dans le chapitre 3, est ressorti deux choses : une très bonne qualité d'inversion des SO₂ SCD dans la partie des images où le panache de l'Etna était le plus dilué, alors que les résultats dans la partie des images où le panache était plus dense, indiquaient une influence plus marquée des paramètres du panache.

Les études d'inter-comparaison des résultats des inversions des SO₂ SCD par le modèle LARA, avec d'une part un autre modèle d'inversion nommé KOPRA (*Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm*), et d'autre part un autre type d'instrument et donc une autre méthode de traitement, présentés dans le Chapitre 4, ont démontré toute la complexité que représente la simulation de l'ensemble des processus physico-chimiques le long de la ligne de visée d'un instrument de télédétection. La qualité des résultats dépend tout autant de la qualité des mesures que de la robustesse des outils utilisés pour traiter ces données. Les aérosols jouent un rôle important dans ces processus physico-chimiques et les conclusions de ces deux études montrent les limites que peuvent avoir les mesures dans le domaine spectral de l'ultraviolet si la contribution des aérosols n'est pas bien prise en compte. Les résultats mettent en lumière une sous-estimation d'un facteur de ~ 3.6 des SO₂ SCD obtenues à partir des mesures dans l'UV par rapport aux résultats d'inversion des mesures dans l'IR, quel que soit le modèle d'inversion utilisé pour l'IR. De même, dans le cas du traitement de spectres à haute résolution spectrale, il est clairement apparu que la prise en compte de la dépendance spectrale de la contribution des aérosols est primordiale.

3) Est-ce qu'il est possible de mettre en place une méthodologie de traitement massif des données hyperspectrales infrarouges pour permettre un suivi des flux d'émission en quasi-temps réel ?

Pour réussir à valoriser les mesures d'imageurs hyperspectraux infrarouges dans le domaine du suivi des flux d'émission de SO₂ d'un volcan tel que l'Etna, il a fallu mettre au point une méthodologie de classification des spectres du jeu de données de la campagne pour réduire considérablement le temps de calcul dont souffre les méthodes de simulation du

transfert radiatif et d'inversion raie-par-raie. La méthode que j'ai développée permet de traiter une image en quelques dizaines de secondes grâce à la création d'une bibliothèque établie avec un réseau de neurones en deux couches à partir d'un jeu de données d'entraînement de plusieurs centaines d'images.

L'ensemble de ces résultats ouvrent la voie à plusieurs perspectives. La large gamme spectrale de l'imageur hyperspectral infrarouge Hyper-Cam laisse la possibilité d'accéder à d'autres espèces chimiques pertinentes pour le suivi des émissions volcaniques, comme l'oxysulfure de carbone (OCS). Il serait intéressant de tester le modèle LARA et la méthodologie de classification des spectres pour des mesures de panache d'un autre volcan. L'Hyper-Cam avait d'ailleurs été déployé au Stromboli en septembre 2015, par une équipe du Laboratoire Magma Volcan de l'Observatoire de Physique du Globe de Clermont Ferrand, fournissant un jeu de données pouvant être analysé avec ces outils.

La bibliothèque créée par la classification des images inversées pixel-par-pixel ne demande qu'à être enrichie avec d'autres configurations de mesures : différents états de dilution du panache, des mesures de nuit ou encore d'autres géométries de visée. Pour cela il faudrait pouvoir déployer au long cours cet instrument sur un volcan tel que l'Etna.

Les imageurs hyperspectraux représentent une plus-value considérable pour la caractérisation bidimensionnelle de la composition chimique des panaches volcaniques et le suivi des flux d'émission, en quasi-temps réel, pour les volcans se retrouvant une grande partie de l'année dans la nuit comme les volcans islandais ou le Mont Erebus en Antarctique.

Mes travaux sont basés sur des mesures effectuées au sol, mais d'autres imageurs hyperspectraux tels que le THI (*Thermal Hyperspectral Imager*) (Wright et al., 2013), peu coûteux et léger, ou le HyspTI (*Hyperspectral InfraRed Imager*) (Wright et al., 2019), prévu sur une mission spatiale de la NASA, développés en partie par l'institut de géophysique et de planétologie de Hawaii, ouvrent la possibilité d'exporter ce type d'instrumentation sur des campagnes aéroportées, sous ballon, et si la mission de la NASA aboutit, également sur satellite.

Si l'on se projette à plus long terme, il serait aussi envisageable de déployer plusieurs imageurs hyperspectraux infrarouges autour d'un volcan pour effectuer la tomographie du panache et ainsi, en plus de pouvoir caractériser sa composition, de pouvoir observer l'évolution temporelle de la forme du panache en trois dimensions.

Liste des acronymes

AER	Atmospheric and Environmental Research, Incorporated
AFRL	Air Force Research Laboratory
AIRS	Atmospheric InfraRed Sounder
ANR	Agence Nationale de la Recherche
AOPP	Atmospheric Oceanic & Planetary Physics
ARTS	Atmospheric Radiative Transfer Simulator
ASTER	Advanced Spaceborne Thermal Emission and Reflection Radiometer
ATSR	Along Track Scanning Radiometer
BT	Brightness Temperature
CNES	Centre National d'Etudes Spatiales
COSPEC	Correlation Spectrometer
DOAS	Doppler Optical Absorption Spectroscopy
ECMWF	European Centre for Medium-range Weather Forecast
ENVISAT	ENVIronment SATellite
ESA	European Space Agency
ESRL	Earth System Research Laboratory
FLAME	FLux Autmatic MEasurment
FLIR	Forward Looking InfraRed
FTIR	Fourier Transform InfraRed
GARLIC	Generic Atmospheric Radiation Line-by-line Infrared Code
GEISA	Gestion et Etude des Informations Spectroscopiques Atmosphériques
GLORIA	Gimballed Limb Observer for Radiance Imaging of the Atmosphere
GMD	Global Monitoring Division
HIGP	Hawai'i Institute of Geophysics and Planetology
HITRAN	High-resolution TRANsmision molecular absorption database
HypIRI	Hyperspectral InfraRed Imager
HyTI	Hyperspectral Thermal Imager
IASI	Interféromètre atmosphérique de sondage dans l'infrarouge

INGV	Institut national de géophysique et de volcanologie
INSU	Institut National des Sciences de l'Univers
IPSL	Institut Pierre et Simon Laplace
IR	Infrarouge
KIT	Karlsruhe Institute of Technology
KNMI	Institut royal météorologique des Pays-Bas
KOPRA	Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm
LARA	LATMOS Atmospheric Retrieval Algorithm
LATMOS	Laboratoire Atmosphère, Milieux, Observations Spatiales
LBLRTM	Line-By-Line Radiative Transfer Model
LPC2E	Laboratoire de Physique et Chimie de l'Atmosphère de l'Environnement et de l'Espace
LPMA	Limb Profile Monitor of the Atmosphere
LPMAA	Laboratoire de Physique Moléculaire pour l'Atmosphère et l'Astrophysique
LWIR	Long Wavelength InfraRed
METOP	Meteorological Operational Satellite
MIPAS	Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding
MIVIS	Multispectral Infrared and Visible Imaging Spectrometer
MODIS	Moderate-Resolution Imaging Spectroradiometer
MODTRAN	MODerate resolution atmospheric TRANsmission
MSG	Météosat seconde génération
NASA	National Aeronautics and Space Administration
NCEO	National Centre for Earth Observation
NESR	Noise Equivalent Spectral Radiance
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration
NOVAC	Network for Observation of Volcanic and Atmospheric Change
OMI	Ozone Monitoring Instrument
ONERA	Office National d'Etudes et de Recherches Aérospatiales
OPAG	Open-Path Gas Analyzer
RFM	Reference Forward Model
RMS	Root Mean Square
SCD	Slant Column Densities
SEVIRI	Spinning Enhanced Visible and InfraRed Imager

SLSTR	Sea and Land Surface Temperature Radiometer
SSI	Spectral Sciences Inc.
THI	Thermal Hyperspectral Imager
TOMS	Total Ozone Mapping Spectrometer
UTC	Universal Central Time
UV	Ultraviolet
VIIRS	Visible Infrared Imaging Radiometer Suite

Liste des figures

Chapitre 1

Figure 1.1 – Evolution de la température selon les couches verticales de l’atmosphère en fonction de l’altitude et de la pression (D’après (Seinfeld, J.H. and Pandis, S.N., 2006)). - 20 -

Figure 1.2 – Schématisation de l’impact du volcanisme passif et explosif sur le bilan radiatif de l’atmosphère terrestre ((Fischer, 2005) d’après (Robock, 2000))..... - 23 -

Figure 1.3 – Illustration représentant le premier observatoire de l’Etna dont la construction fut terminée en 1882 (Nature, 1881 [2])..... - 29 -

Figure 1.4 – Carte de l’Etna avec les différents emplacements des cinq spectromètres UV du réseau FLAME représentés par un point noir. (Figure extraite de (Salerno et al., 2009a))..... - 30 -

Figure 1.5 – Exemples de visées pour les mesures en télédétection dans le cas de panaches volcaniques : au nadir en vert, au limbe en rouge, vers le haut violet et avec une source de rayonnement artificielle en bleu, à partir d’instruments sur différentes plateformes : satellite, avion ou au sol..... - 34 -

Figure 1.6 – Représentation des trois différents profils de raie : Doppler, Lorentz et Voigt (Cours de transfert radiatif, S. Payan). - 36 -

Figure 1.7 – Bandes spectrales du rayonnement électromagnétique..... - 37 -

Figure 1.8 – Formes des raies observées en émission (en haut) ou en absorption (en bas) (Crédit : Emmanuel Marcq, LATMOS)..... - 41 -

Figure 1.9 – Spectre de radiance atmosphérique normalisé, mesuré par l’instrument IASI/MetOp-A au-dessus de l’ouest de l’Australie (20/12/2006) (en haut) et la simulation de la transmittance des principaux gaz absorbant dans cette gamme spectrale (au milieu) et les espèces absorbant moins (en bas) (Clerboux et al., 2009). - 42 -

Chapitre 2

Figure 2.1 – Carte du relief de l’Etna (à gauche) avec différents agrandissements. La zone d’intérêt lors de la campagne reportée dans l’encart noir, une photographie de l’observatoire

Pizzi Deneri dans l'encart rouge et le détail du relief des différents cratères de l'Etna dans l'encart bleu. (Adaptée de figures tirées de (Alparone et al., 2003; Huret et al., 2019)..... - 60 -

Figure 2.2 – Photographies de la disposition des instruments sur la plateforme de l'observatoire Pizzi Deneri de l'Etna pendant la campagne IMAGETNA. - 61 -

Figure 2.3 – Photographie du FTIR OPAG (blanc) et de la caméra FLIR (bleue) lors de la campagne IMAGETNA (à gauche) et photographie commerciale du FTIR (à droite)..... - 63 -

Figure 2.4 – Images issues de la caméra FLIR acquises lors de la campagne IMAGETNA avec la position du mono-pixel du FTIR (cercle blanc). - 63 -

Figure 2.5 – Photographies de la caméra UV durant la campagne IMAGETNA. - 64 -

Figure 2.6 – Schéma représentant le principe de l'interféromètre de Michelson de l'Hyper-Cam (Adapté d'une figure de (Moore et al., 2009))..... - 66 -

Figure 2.7 – L'imageur hyperspectral infrarouge Hyper-Cam de la société Telops (à gauche) et une schématisation des images 3D acquises par l'Hyper-Cam (à droite). - 66 -

Figure 2.8 – Géométrie le long de la ligne de visée d'un imageur hyperspectral infrarouge pour l'équation du transfert radiatif pour la mesure par télédétection d'un panache volcanique depuis le sol. - 69 -

Figure 2.9 – Fonctions d'appareil gaussienne/lorentzienne (à gauche) et sinus cardinal (à droite) avec un demi-intervalle spectrale de 50 cm^{-1} et un pas de calcul de 0.005 cm^{-1} pour une résolution de 2.016 cm^{-1} - 72 -

Figure 2.10 – Coefficients d'extinction des gouttelettes d'eau (bleu), de l'acide sulfurique (gris) et des cendres (orange) pour trois diamètres de particules différents : $0.5 \mu\text{m}$ (haut), $1 \mu\text{m}$ (milieu) et $5 \mu\text{m}$ (bas), calculés par un code de Mie pour une concentration de 10^6 L^{-1} - 74 -

Figure 2.11 – Schématisation du processus d'inversion permettant de remonter aux profils verticaux de la concentration des espèces chimiques à partir de mesures de radiance. - 76 -

Figure 2.12 – Principe de l'algorithme d'inversion de Levenberg-Marquardt. - 85 -

Figure 2.13 – Profils verticaux de pression (à gauche) et de température (à droite) construits à partir du radiosondage effectué depuis la station météorologique de Trapani et des analyses de l'ECMWF du 26 juin 2015. - 87 -

Figure 2.14 – Schématisation de la paramétrisation de la géométrie d'un panache volcanique dans LARA - 89 -

Figure 2.15 – Résumé des processus et des informations en jeu lors de la simulation du transfert radiatif et de l'inversion des spectres infrarouges avec le modèle LARA. - 90 -

Chapitre 3

Figure 3.1 – Superposition du mono-pixel du FTIR OPAG 33 sur une image large bande d'une séquence de l'Hyper-Cam (en haut), et superposition du spectre mesuré par le FTIR OPAG 33 en noir, le spectre moyen des spectres de l'Hyper-Cam contenus dans le mono-pixel en rose et les barres d'erreur correspondant à un écart type de 1σ en rose pâle (en bas)... - 96 -

Figure 3.2 – Intensité des raies du SO₂ dans l'infrarouge simulées avec l'outil graphique de la base de données GEISA dans AERIS..... - 98 -

Figure 3.3 – Rapports de mélange a priori des espèces chimiques en entrée du modèle LARA..... - 98 -

Figure 3.4 – Intensités des raies des espèces prises en compte pour les inversions avec le modèle d'inversion LARA, simulées avec la base de données spectroscopiques GEISA.. - 99 -

Figure 3.5 – Exemple d'image large bande acquise par l'Hyper-Cam pendant la campagne IMAGETNA (en haut), et les spectres de températures de brillance correspondant aux différentes croix de couleurs (en bas) (26/06/2015 – 08:31:10 UTC). - 101 -

Figure 3.6 – (a) χ^2 réduits pour l'inversion de l'image du 26/06/2015 à 08:31:10 UTC. Exemples de spectres mesurés et simulés par LARA avec la valeur de χ^2 réduit associée (b) et les résidus entre les deux spectres avec \pm le bruit instrumental en hachuré (c). - 103 -

Figure 3.7 – Représentation de la répartition des pixels inversés pour les tests de sensibilité symbolisés par des points rouges superposés à une image large bande (en haut), indication de la ligne verticale de séparation du panache dilué et du panache dense en blanc sur une image des SO₂ SCD du nombre réduit de pixels du 26 juin 2015 à 08:27:45 UTC (en bas). - 105 -

Figure 3.8 – Illustration des différentes combinaisons des valeurs des paramètres du panache pour les tests de sensibilité..... - 106 -

Figure 3.9 – Corrélations entre les SO₂ SCD des tests et de la valeur de référence de l'altitude du panache. - 108 -

Figure 3.10 – Corrélations entre les SO₂ SCD des tests et de la valeur de référence de l'épaisseur du panache. - 109 -

Figure 3.11 – Corrélations entre les SO₂ SCD des tests sur la température additionnelle dans le panache par rapport à la température ambiante et celles de référence. - 111 -

Figure 3.12 – Image des densités de colonnes obliques de SO₂ inversées avec LARA avec une bonne qualité d'inversion (en haut) et image des valeurs de χ^2 réduits de l'inversion (en bas) de la mesure du 26 juin 2015 à 08:31:10 UTC..... - 112 -

Chapitre 4

Figure 4.1 – Image large bande de la scène acquise le 26 juin 2015 – 08:25:44 UTC (a), densités de colonnes de SO₂ inversées par KOPRA (b) et par LARA (c). - 122 -

Figure 4.2 – Les coefficients d’extinction des aérosols (en haut) et les valeurs de RMS (en bas), calculés par KOPRA..... - 123 -

Figure 4.3 – Image des écarts relatifs (%) correspondant aux valeurs de RMS par rapport à la valeur moyenne de radiance mesurée, dans la fenêtre spectrale de l’inversion du SO₂..... - 125 -

Figure 4.4 – Corrélation entre les valeurs de RMS et les coefficients d’extinction des aérosols de la partie diluée de l’image, pour les inversions des mesures de l’Hyper-Cam par KOPRA, avec en noir les pixels avec des écarts relatifs < 5%, entre le RMS et la radiance moyenne observée, en bleu les écarts relatifs compris entre 5 et 10% et en rouge les écarts relatifs supérieurs à 10%. - 126 -

Figure 4.5 – Corrélation de la partie diluée de l’image, entre les SO₂ SCD inversées par les deux modèles KOPRA et LARA, avec en noir les pixels avec des écarts relatifs entre le RMS et la radiance moyenne observée < 5%, en bleu ceux avec des écarts relatifs compris entre 5 et 10% et en rouge ceux avec des écarts relatifs supérieurs à 10%. - 127 -

Figure 4.6 – Ecart relatif entre les résultats d’inversion des SO₂ SCD de KOPRA par rapport à LARA..... - 127 -

Figure 4.7 – Superposition des spectres de radiance (en haut) et des résidus (en bas) pour le pixel #2 (160-10) avec : le spectre mesuré en noir, le spectre inversé par KOPRA en bleu, le spectre inversé par LARA avec prise en compte de la dépendance spectrale des aérosols en rouge (cas #1) et le spectre inversé par LARA sans prise en compte de la dépendance spectrale des aérosols en vert (cas #2)..... - 130 -

Figure 4.8 – Superposition des spectres de radiance (en haut) et des résidus (en bas) pour le pixel #1 (310-40) avec : le spectre mesuré en noir, le spectre inversé par KOPRA en bleu, le spectre inversé par LARA avec prise en compte de la dépendance spectrale des aérosols en rouge (cas #1) et le spectre inversé par LARA sans prise en compte de la dépendance spectrale des aérosols en vert (cas #2)..... - 131 -

Figure 4.9 – Epaisseurs optiques des pixels 160-10 (panache dense) et 310-40 (panache dilué) calculée avec LARA avec la dépendance spectrale de l’extinction des aérosols, en noir, et sans la dépendance spectrale de l’extinction des aérosols, en rouge..... - 132 -

Figure 4.10 – Représentation de la mise à l’échelle de l’image des SO₂ SCD de la caméra UV à la taille de l’image de l’Hyper-Cam (en bas à droite) acquises le 26/06/2015 à 08:27:45 UTC..... - 134 -

Figure 4.11 – Corrélation entre les SO₂ SCD obtenues à partir des mesures UV et des mesures IR avec la partie diluée en noir et la partie dense en bleu. La régression de degré 1 en rouge et de degré 2 en vert (image du 26 Juin 2015 – 08:27:45 UTC)..... - 135 -

Chapitre 5

Figure 5.1 – (a) Map of Mount Etna area (© Google Maps) showing the location of the four different craters with red arrows: Bocca Nuova (BN), Voragine (V), North East crater (NEC), South East crater (SEC), and the location of the Pizzi De Neri observatory with a red triangle. (b) Picture taken from the measurement platform of the Pizzi De Neri observatory during the IMAGETNA campaign with an example of the Hyper-Cam projected image, represented by a black dashed rectangle, and the hand estimated location of the four craters (SEC, NEC, BN, and V) pointed out with red arrows. - 153 -

Figure 5.2 – Example of the mass of SO₂ per surface unit in g.m⁻² for 26 June 2015—08:25:44 UTC image retrieved pixel-by-pixel with the LARA model. The grey arrow indicates the NEC location. - 156 -

Figure 5.3 – Emission line intensities of (a) O₃ in blue, SO₂ in orange, and (b) of H₂O in purple simulated with the GEISA graphical tool between 850 and 1300 cm⁻¹. (c) Examples of spectra from 26 June 2015 dataset with: ground spectra in green, dense plume spectra in blue, diluted plume spectra in orange, and clear sky spectra in red. The grey dashed boxes identify the spectral bands 1 and 2 chosen for the image classification. - 158 -

Figure 5.4 – (a) A schematic representation of the scene with two vertical cross sections in blue separated by a distance dh and two horizontal cross sections in red separated by a distance dv to determine, respectively, the horizontal and vertical contribution of plume transport speed, and the box fixed close to the emission source for the SO₂ emission flux estimation in yellow, (b) the time-series of the mean SO₂ slant column densities (SCD) of the two horizontal cross sections for the first 200 images of sequence B, and (c) the time-series of the mean SO₂ SCD of the two vertical cross sections for the first 200 images of sequence B..... - 161 -

Figure 5.5 – (a) Total number of pixels according to each *IO3* index value and (b) total number of pixels according to each *ISO2* index value with three parts of each distribution separated by green dashed lines. (c) 3D distribution of the number of pixels in each class with green boxes and dashed lines enlighten three clusters: (1) clear sky, (2) plume, and (3) ground. - 165 -

Figure 5.6 – Example of correlation between the SO₂ SCD of the plume pixels of the training dataset of 26 June 2015 from the pixel-by-pixel method with the reconstructed values using the classification library. The black points are from the “diluted part of the plume” and the blue point are from the “dense part of the plume”. The first order regression of the “diluted

part of the plume” is in red with a slope of 0.97 and a determination coefficient of 0.94.....
..... - 167 -

Figure 5.7 – Examples of mass of SO₂ per surface unit (g m⁻²) images retrieved with the training dataset library with the unlisted class pixels colored in blue: (a) Sequence A (23 June 2015—08:13:33 UTC), (b) Sequence B (26 June 2015—08:25:33 UTC), and (c) Sequence C (26 June 2015—07:18:08 UTC)..... - 168 -

Figure 5.8 – Time evolution of the SO₂ emission flux estimation of the three sequence (A in blue, B in black, and C in red) and corresponding error-bars. - 170 -

Liste des tableaux

Chapitre 1

- Tableau 1.1** – Composition de l’air sec tirée de Météo France..... - 21 -
- Tableau 1.2** – Sources de soufre dans l’atmosphère (exprimées en téragrammes par an) (Bates et al., 1992)..... - 22 -
- Tableau 1.3** – Estimation actuelle des flux d’émissions des principaux gaz volcaniques dans l’atmosphère. (tiré du Chapitre 6 de « Monitoring volcanoes in the North Pacific” de (Dean and Dehn, 2015))..... - 25 -
- Tableau 1.4** – Les différents réseaux de surveillance de l’Etna..... - 31 -
- Tableau 1.5** – Instruments sur satellite (en UV, en IR et en micro-ondes) et au sol ou aéroportés capables de mesurer les émissions de SO₂ et des autres gaz et particules volcaniques (tiré de (Dean and Dehn, 2015))..... - 47 -
- Tableau 1.6** – Exemples d’imageurs hyperspectraux commerciaux ou de laboratoire mesurant dans l’infrarouge..... - 49 -

Chapitre 2

- Tableau 2.1** – Liste des instruments et laboratoires impliqués dans la campagne IMAGETNA..... - 62 -
- Tableau 2.2** – Quelques informations sur les séquences de mesures acquises par l’Hyper-Cam lors de la campagne IMAGETNA de juin 2015. - 67 -
- Tableau 2.3** – Longueurs des couches le long de la ligne de visée selon l’altitude.... - 88 -

Chapitre 3

- Tableau 3.1** – Caractéristiques de la séquence de mesures de l’Hyper-Cam étudiée.- 102 -
- Tableau 3.2** – Résultats dans la partie diluée des tests sur l’altitude du panache *Zpanache*.
..... - 107 -
- Tableau 3.3** – Résultats dans la partie dense des tests sur l’altitude du panache *Zpanache*.
..... - 107 -

Tableau 3.4 – Résultats dans la partie diluée des tests sur l'épaisseur du panache *Eppanache*..... - 108 -

Tableau 3.5 – Résultats dans la partie dense des tests sur l'épaisseur du panache *Eppanache*..... - 109 -

Tableau 3.6 – Résultats dans la partie diluée des tests sur la température additionnelle dans le panache $\Delta T_{panache}$ - 110 -

Tableau 3.7 – Résultats dans la partie dense des tests sur la température additionnelle dans le panache $\Delta T_{panache}$ - 110 -

Chapitre 4

Tableau 4.1 – Caractéristiques des paramètres d'inversion des SO₂ SCD de l'image hyperspectrale IR avec LARA et KOPRA..... - 121 -

Tableau 4.2 – Caractéristiques des deux pixels choisis dans l'image pour tester la prise en compte de la contribution de l'extinction des aérosols. - 129 -

Tableau 4.3 – Valeurs des densités de colonnes de SO₂ calculées par les deux modèles selon la paramétrisation de la contribution des aérosols considérée..... - 129 -

Chapitre 5

Table 5.1 – Characteristics of the selected measurement sequences from the IMAGETNA Campaign. - 154 -

Table 5.2 – Main results for the tested ranges of values of IO_3 indexes..... - 163 -

Table 5.3 – Main results for the tested ranges for values of ISO_2 indexes. - 164 -

Table 5.4 – Main characteristics of the classification of the tested sequences..... - 168 -

Table 5.5 – Average plume transport speed, average mass of SO₂ per surface unit, and average SO₂ emission flux over the sequences with a corresponding standard deviation (1σ)...
..... - 170 -

Références

- Aiuppa, A., Moretti, R., Federico, C., Giudice, G., Gurrieri, S., Liuzzo, M., Papale, P., Shinohara, H., and Valenza, M.: Forecasting Etna eruptions by real-time observation of volcanic gas composition, *Geology*, 35, 1115–1118, <https://doi.org/10.1130/G24149A.1>, 2007.
- Aiuppa, A., Giudice, G., Gurrieri, S., Liuzzo, M., Burton, M., Caltabiano, T., McGonigle, A. J. S., Salerno, G., Shinohara, H., and Valenza, M.: Total volatile flux from Mount Etna, 35, <https://doi.org/10.1029/2008GL035871>, 2008.
- Aiuppa, A., Fiorani, L., Santoro, S., Parracino, S., Nuvoli, M., Chiodini, G., Minopoli, C., and Tamburello, G.: New ground-based lidar enables volcanic CO₂ flux measurements, 5, 13614, <https://doi.org/10.1038/srep13614>, 2015.
- Allard, P.: Endogenous magma degassing and storage at Mount Etna, 24, 2219–2222, <https://doi.org/10.1029/97GL02101>, 1997.
- Allard, P., Burton, M., and Muré, F.: Spectroscopic evidence for a lava fountain driven by previously accumulated magmatic gas, 433, 407–410, <https://doi.org/10.1038/nature03246>, 2005.
- Allard, P., Behncke, B., D’Amico, S., Neri, M., and Gambino, S.: Mount Etna 1993–2005: Anatomy of an evolving eruptive cycle, *Earth-Science Reviews*, 78, 85–114, <https://doi.org/10.1016/j.earscirev.2006.04.002>, 2006.
- Allen, A. G., Mather, T. A., McGonigle, A. J. S., Aiuppa, A., Delmelle, P., Davison, B., Bobrowski, N., Oppenheimer, C., Pyle, D. M., and Inguaggiato, S.: Sources, size distribution, and downwind grounding of aerosols from Mount Etna, 111, <https://doi.org/10.1029/2005JD006015>, 2006.
- Alparone, S., Andronico, D., Lodato, L., and SgROI, T.: Relationship between tremor and volcanic activity during the Southeast Crater eruption on Mount Etna in early 2000, *Journal of Geophysical Research (Solid Earth)*, 108, 2241, <https://doi.org/10.1029/2002JB001866>, 2003.
- Bates, T. S., Lamb, B. K., Guenther, A., Dignon, J., and Stoiber, R. E.: Sulfur emissions to the atmosphere from natural sources, *J Atmos Chem*, 14, 315–337, <https://doi.org/10.1007/BF00115242>, 1992.
- Berk, A., Conforti, P., Kennett, R., Perkins, T., Hawes, F., and van den Bosch, J.: MODTRAN® 6: A major upgrade of the MODTRAN® radiative transfer code, in: 2014 6th Workshop on Hyperspectral Image and Signal Processing: Evolution in Remote Sensing (WHISPERS), 2014 6th Workshop on Hyperspectral Image and Signal Processing: Evolution in Remote Sensing (WHISPERS), 1–4, <https://doi.org/10.1109/WHISPERS.2014.8077573>, 2014.

- Biermann, U. M., Luo, B. P., and Peter, Th.: Absorption Spectra and Optical Constants of Binary and Ternary Solutions of H₂SO₄, HNO₃, and H₂O in the Mid Infrared at Atmospheric Temperatures, *J. Phys. Chem. A*, 104, 783–793, <https://doi.org/10.1021/jp992349i>, 2000.
- Birkel, S. D., Mayewski, P. A., Maasch, K. A., Kurbatov, A. V., and Lyon, B.: Evidence for a volcanic underpinning of the Atlantic multidecadal oscillation, *npj Clim Atmos Sci*, 1, 1–7, <https://doi.org/10.1038/s41612-018-0036-6>, 2018.
- Bluth, G. J. S., Shannon, J. M., Watson, I. M., Prata, A. J., and Realmuto, V. J.: Development of an ultra-violet digital camera for volcanic SO₂ imaging, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 161, 47–56, <https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2006.11.004>, 2007.
- Bobrowski, N., Kern, C., Platt, U., Hörmann, C., and Wagner, T.: Novel SO₂ spectral evaluation scheme using the 360–390 nm wavelength range, *Atmos. Meas. Tech.*, 3, 879–891, <https://doi.org/10.5194/amt-3-879-2010>, 2010.
- Boichu, M., Oppenheimer, C., Tsanev, V., and Kyle, P. R.: High temporal resolution SO₂ flux measurements at Erebus volcano, Antarctica, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 190, 325–336, <https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2009.11.020>, 2010.
- Breeding, R. J., Lodge, J. P., Pate, J. B., Sheesley, D. C., Klonis, H. B., Fogle, B., Anderson, J. A., Englert, T. R., Haagenson, P. L., McBeth, R. B., Morris, A. L., Pogue, R., and Wartburg, A. F.: Background trace gas concentrations in the central United States, 78, 7057–7064, <https://doi.org/10.1029/JC078i030p07057>, 1973.
- Briottet, X., Boucher, Y., Dimmeler, A., Malaplate, A., Cini, A., Diani, M., Bekman, H., Schwering, P., Skauli, T., Kasen, I., Renhorn, I., Klasén, L., Gilmore, M., and Oxford, D.: Military applications of hyperspectral imagery, in: Targets and Backgrounds XII: Characterization and Representation, Targets and Backgrounds XII: Characterization and Representation, 62390B, <https://doi.org/10.1117/12.672030>, 2006.
- Burton, M., Allard, P., Muré, F., and Spina, A. L.: Magmatic Gas Composition Reveals the Source Depth of Slug-Driven Strombolian Explosive Activity, 317, 227–230, <https://doi.org/10.1126/science.1141900>, 2007.
- Burton, M., Sawyer, G., and Granieri, D.: Deep Carbon Emissions from Volcanoes, *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 75, 323–354, <https://doi.org/10.2138/rmg.2013.75.11>, 2013.
- Burton, M. R., Prata, F., and Platt, U.: Volcanological applications of SO₂ cameras, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 300, 2–6, <https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2014.09.008>, 2015.
- Butz, A., Bösch, H., Camy-Peyret, C., Dorf, M., Engel, A., Payan, S., and Pfeilsticker, K.: Observational constraints on the kinetics of the ClO-BrO and ClO-ClO ozone loss cycles in the Arctic winter stratosphere, 34, <https://doi.org/10.1029/2006GL028718>, 2007.
- Caltabiano, T., Romano, R., and Budetta, G.: SO₂ flux measurements at Mount Etna (Sicily), 99, 12809–12819, <https://doi.org/10.1029/94JD00224>, 1994.

-
- Calvari, S., Coltelli, M., Müller, W., Pompilio, M., and Scribano, V.: Eruptive history of South-Eastern Crater of Mount Etna, from 1971 to 1994, *Acta Vulcanol.*, 5, 11–14, 1994.
- Carn, S. A., Strow, L. L., Souza-Machado, S. de, Edmonds, Y., and Hannon, S.: Quantifying tropospheric volcanic emissions with AIRS: The 2002 eruption of Mt. Etna (Italy), 32, <https://doi.org/10.1029/2004GL021034>, 2005.
- Carn, S. A., Krueger, A. J., Arellano, S., Krotkov, N. A., and Yang, K.: Daily monitoring of Ecuadorian volcanic degassing from space, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 176, 141–150, <https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2008.01.029>, 2008.
- Carn, S. A., Clarisse, L., and Prata, A. J.: Multi-decadal satellite measurements of global volcanic degassing, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 311, 99–134, <https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2016.01.002>, 2016.
- Casadevall, T. J., Reyes, P. J. D., and Schneider, D. J.: The 1991 Pinatubo Eruptions and Their Effects on Aircraft Operations, 21, 1996.
- Clark, M. L., Roberts, D. A., and Clark, D. B.: Hyperspectral discrimination of tropical rain forest tree species at leaf to crown scales, *Remote Sensing of Environment*, 96, 375–398, <https://doi.org/10.1016/j.rse.2005.03.009>, 2005.
- Clerbaux, C., Boynard, A., Clarisse, L., George, M., Hadji-Lazaro, J., Herbin, H., Hurtmans, D., Pommier, M., Razavi, A., Turquety, S., Wespes, C., and Coheur, P.-F.: Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared IASI/MetOp sounder, 9, 6041–6054, <https://doi.org/10.5194/acp-9-6041-2009>, 2009.
- Clough, S. A. and Iacono, M. J.: Line-by-line calculation of atmospheric fluxes and cooling rates: 2. Application to carbon dioxide, ozone, methane, nitrous oxide and the halocarbons, 100, 16519–16535, <https://doi.org/10.1029/95JD01386>, 1995.
- Clough, S. A., Iacono, M. J., and Moncet, J.-L.: Line-by-line calculations of atmospheric fluxes and cooling rates: Application to water vapor, 97, 15761–15785, <https://doi.org/10.1029/92JD01419>, 1992.
- Clough, S. A., Rinsland, C. P., and Brown, P. D.: Retrieval of tropospheric ozone from simulations of nadir spectral radiances as observed from space, 100, 16,579–16,593, <https://doi.org/10.1029/95JD01388>, 1995.
- Clough, S. A., Shephard, M. W., Mlawer, E. J., Delamere, J. S., Iacono, M. J., Cady-Pereira, K., Boukabara, S., and Brown, P. D.: Atmospheric radiative transfer modeling: a summary of the AER codes, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 91, 233–244, <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2004.05.058>, 2005.
- Daag, A. S., Dolan, M. T., Laguerta, E., Meeker, G. P., Newhall, C., Pallister, J., and Solidum, R. U.: Monitoring sulphur dioxide emissions at Mount Pinatubo, Philippines, *Fire and Mud: Eruptions and Lahars of Mount Pinatubo*, 647–664, 1996.
- D'Aleo, R., Bitetto, M., Donne, D. D., Tamburello, G., Battaglia, A., Coltelli, M., Patanè, D., Prestifilippo, M., Sciotto, M., and Aiuppa, A.: Spatially resolved SO₂ flux emissions from Mt Etna, 43, 7511–7519, <https://doi.org/10.1002/2016GL069938>, 2016.
-

- D'aleo, R., Bitetto, M., Delle Donne, D., Coltelli, M., Coppola, D., McCormick, B., Pecora, E., Ripepe, M., Salem, L., Tamburello, G., and Aiuppa, A.: Understanding the SO₂ Degassing Budget of Mt Etna's Paroxysms: First Clues From the December 2015 Sequence, *Frontiers in Earth Science*, 6, 239, <https://doi.org/10.3389/feart.2018.00239>, 2019.
- Damme, M. van, Whitburn, S., Clarisse, L., Clerbaux, C., Hurtmans, D., and Coheur, P.-F.: Version 2 of the IASI NH₃ neural network retrieval algorithm: near-real-time and reanalysed datasets, 10, 4905–4914, <https://doi.org/10.5194/amt-10-4905-2017>, 2017.
- Dean, K. G. and Dehn, J.: *Monitoring Volcanoes in the North Pacific: Observations from Space*, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, <https://doi.org/10.1007/978-3-540-68750-4>, 2015.
- Deguine, A., Petitprez, D., Clarisse, L., Gudmundsson, S., Outes, V., Villarosa, G., and Herbin, H.: Complex refractive index of volcanic ash aerosol in the infrared, visible, and ultraviolet, *Applied Optics*, 59, 884, <https://doi.org/10.1364/AO.59.000884>, 2020.
- Delle Donne, D., Aiuppa, A., Bitetto, M., D'Aleo, R., Coltelli, M., Coppola, D., Pecora, E., Ripepe, M., and Tamburello, G.: Changes in SO₂ Flux Regime at Mt. Etna Captured by Automatically Processed Ultraviolet Camera Data, 11, 1201, <https://doi.org/10.3390/rs11101201>, 2019.
- Delmas, R., Megie, G., and Peuch, V. H.: *Atmosphere physics and chemistry; Physique et chimie de l'atmosphère*, 2005.
- Doocy, S., Daniels, A., Dooling, S., and Gorokhovich, Y.: The Human Impact of Volcanoes: a Historical Review of Events 1900-2009 and Systematic Literature Review, *PLoS Curr*, 5, <https://doi.org/10.1371/currents.dis.841859091a706efebf8a30f4ed7a1901>, 2013.
- Downing, H. D. and Williams, D.: Optical constants of water in the infrared, 80, 1656–1661, <https://doi.org/10.1029/JC080i012p01656>, 1975.
- Dudhia, A.: The Reference Forward Model (RFM), *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 186, 243–253, <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2016.06.018>, 2017.
- Eatough, D. J., Caka, F. M., and Farber, R. J.: The Conversion of SO₂ to Sulfate in the Atmosphere, 34, 301–314, <https://doi.org/10.1002/ijch.199400034>, 1994.
- Edmonds, M., Herd, R. A., Galle, B., and Oppenheimer, C. M.: Automated, high time-resolution measurements of SO₂ flux at Soufrière Hills Volcano, Montserrat, *Bull Volcanol*, 65, 578–586, <https://doi.org/10.1007/s00445-003-0286-x>, 2003.
- Ferreira, V. M.: *Inversion de spectres infrarouges en émission thermique de la basse atmosphère terrestre enregistrés sous ballon par transformée de Fourier en visée au nadir: préparation de la mission spatiale IASI (Thèse de doctorat)*, 2005.
- Fischer, E.: Climate response to major volcanic eruptions, *PAGES news*, 13, 8–10, <https://doi.org/10.22498/pages.13.3.8>, 2005.
- Gabrieli, A., Wright, R., Lucey, P. G., Porter, J. N., Garbeil, H., Pilger, E., and Wood, M.: Characterization and initial field test of an 8–14 μm thermal infrared hyperspectral

- imager for measuring SO₂ in volcanic plumes, *Bull Volcanol*, 78, 73, <https://doi.org/10.1007/s00445-016-1068-6>, 2016.
- Gabrieli, A., Wright, R., Lucey, P. G., and Porter, J. N.: Fast and reliable gas path-concentration inversion for thermal InfraRed (IR) hyperspectral imaging data obtained from downward looking sensors, 2018, GC13F-1077, 2018.
- Gabrieli, A., Wright, R., Porter, J. N., Lucey, P. G., and Honnibal, C.: Applications of quantitative thermal infrared hyperspectral imaging (8–14 µm): measuring volcanic SO₂ mass flux and determining plume transport velocity using a single sensor, *Bull Volcanol*, 81, 47, <https://doi.org/10.1007/s00445-019-1305-x>, 2019.
- Gagnon, M.-A., Tremblay, P., Savary, S., Duval, M., Farley, V., and Chamberland, M.: Airborne midwave and longwave infrared hyperspectral imaging of gases, 91060C pp., <https://doi.org/10.1117/12.2050588>, 2014.
- Galle, B., Oppenheimer, C., Geyer, A., McGonigle, A. J. S., Edmonds, M., and Horrocks, L.: A miniaturised ultraviolet spectrometer for remote sensing of SO₂ fluxes: a new tool for volcano surveillance, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 119, 241–254, [https://doi.org/10.1016/S0377-0273\(02\)00356-6](https://doi.org/10.1016/S0377-0273(02)00356-6), 2003.
- Galle, B., Johansson, M., Rivera, C., Zhang, Y., Kihlman, M., Kern, C., Lehmann, T., Platt, U., Arellano, S., and Hidalgo, S.: Network for Observation of Volcanic and Atmospheric Change (NOVAC)—A global network for volcanic gas monitoring: Network layout and instrument description, 115, <https://doi.org/10.1029/2009JD011823>, 2010.
- Genio, A. D. D., Kovari, W., and Yao, M.-S.: Climatic implications of the seasonal variation of upper troposphere water vapor, 21, 2701–2704, <https://doi.org/10.1029/94GL02658>, 1994.
- Gertisser, R.: Eyjafjallajökull volcano causes widespread disruption to European air traffic, 26, 94–95, <https://doi.org/10.1111/j.1365-2451.2010.00757.x>, 2010.
- Girona, T., Costa, F., Newhall, C., and Taisne, B.: On depressurization of volcanic magma reservoirs by passive degassing, 119, 8667–8687, <https://doi.org/10.1002/2014JB011368>, 2014.
- von Glasow, R., Bobrowski, N., and Kern, C.: The effects of volcanic eruptions on atmospheric chemistry, *Chemical Geology*, 263, 131–142, <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2008.08.020>, 2009.
- Glatthor, N., Hoepfner, M., Stiller, G. P., Clarmann, T. von, Dudhia, A., Echle, G., Funke, B., and Hase, F.: Intercomparison of the KOPRA and the RFM radiative transfer codes, in: *Satellite Remote Sensing of Clouds and the Atmosphere IV*, *Satellite Remote Sensing of Clouds and the Atmosphere IV*, 348–363, <https://doi.org/10.1117/12.373077>, 1999.
- Gliß, J., Stebel, K., Kylling, A., and Sudbø, A.: Improved optical flow velocity analysis in SO₂ camera images of volcanic plumes – implications for emission-rate retrievals investigated at Mt Etna, Italy and Guallatiri, Chile, *Atmospheric Measurement Techniques*, 11, 781–801, <https://doi.org/10.5194/amt-11-781-2018>, 2018.

- Gouhier, M. and Paris, R.: SO₂ and tephra emissions during the December 22, 2018 Anak Krakatau eruption, 2, 91–103, <https://doi.org/10.30909/vol.02.02.91103>, 2019.
- Graf, H.-F., Feichter, J., and Langmann, B.: Volcanic sulfur emissions: Estimates of source strength and its contribution to the global sulfate distribution, 102, 10727–10738, <https://doi.org/10.1029/96JD03265>, 1997.
- Graft, H.-F., Kirchner, I., Robock, A., and Schult, I.: Pinatubo eruption winter climate effects: model versus observations, *Climate Dynamics*, 9, 81–93, <https://doi.org/10.1007/BF00210011>, 1993.
- Halmer, M. M., Schmincke, H.-U., and Graf, H.-F.: The annual volcanic gas input into the atmosphere, in particular into the stratosphere: a global data set for the past 100 years, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 115, 511–528, [https://doi.org/10.1016/S0377-0273\(01\)00318-3](https://doi.org/10.1016/S0377-0273(01)00318-3), 2002.
- Hansell, A. and Oppenheimer, C.: Health Hazards from Volcanic Gases: A Systematic Literature Review, 59, 628–639, <https://doi.org/10.1080/00039890409602947>, 2004.
- Hansen, J., Lacis, A., Ruedy, R., and Sato, M.: Potential climate impact of Mount Pinatubo eruption, 19, 215–218, <https://doi.org/10.1029/91GL02788>, 1992.
- Hoepfner, M., Stiller, G. P., Kuntz, M., Clarmann, T. von, Echle, G., Funke, B., Glatthor, N., Hase, F., Kemnitzer, H., and Zorn, S.: Karlsruhe optimized and precise radiative transfer algorithm: II. Interface to retrieval applications, in: *Optical Remote Sensing of the Atmosphere and Clouds*, *Optical Remote Sensing of the Atmosphere and Clouds*, 186–195, <https://doi.org/10.1117/12.317753>, 1998.
- Horton, K., Williams-Jones, G., Garbeil, H., Elias, T., Sutton, A., Mougini-Mark, P., Porter, J., and Clegg, S.: Real-time measurement of volcanic SO₂ emissions: Validation of a new UV correlation spectrometer (FLYSPEC), *Bulletin of Volcanology*, 68, 323–327, <https://doi.org/10.1007/s00445-005-0014-9>, 2006.
- Huret, N., Segonne, C., Payan, S., Salerno, G., Catoire, V., Ferrec, Y., Roberts, T., Pola Fossi, A., Rodriguez, D., Croizé, L., Chevrier, S., Langlois, S., La Spina, A., and Caltabiano, T.: Infrared Hyperspectral and Ultraviolet Remote Measurements of Volcanic Gas Plume at MT Etna during IMAGETNA Campaign, 11, 1175, <https://doi.org/10.3390/rs11101175>, 2019.
- Hyde, W. W.: The Volcanic History of Etna, 1, 401–418, <https://doi.org/10.2307/207484>, 1916.
- Johansson, S., Woiwode, W., Höpfner, M., Friedl-Vallon, F., Kleinert, A., Kretschmer, E., Latzko, T., Orphal, J., Preusse, P., Ungermann, J., Santee, M. L., Jurkat-Witschas, T., Marsing, A., Voigt, C., Giez, A., Krämer, M., Rolf, C., Zahn, A., Engel, A., Sinnhuber, B.-M., and Oelhaf, H.: Airborne limb-imaging measurements of temperature, HNO₃, O₃, ClONO₂, H₂O and CFC-12 during the Arctic winter 2015/16: characterization, in-situ validation and comparison to Aura/MLS, *Gases/Remote Sensing/Data Processing and Information Retrieval*, <https://doi.org/10.5194/amt-2018-52>, 2018.
- Karagulian, F., Clarisse, L., Clerboux, C., Prata, A. J., Hurtmans, D., and Coheur, P. F.: Detection of volcanic SO₂, ash, and H₂SO₄ using the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI), 115, <https://doi.org/10.1029/2009JD012786>, 2010.

- Keim, C., Eremenko, M., Orphal, J., Dufour, G., Flaud, J.-M., Höpfner, M., Boynard, A., Clerbaux, C., Payan, S., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Claude, H., Dier, H., Johnson, B., Kelder, H., Kivi, R., Koide, T., López Bartolomé, M., Lambkin, K., Moore, D., Schmidlin, F. J., and Stübi, R.: Tropospheric ozone from IASI: comparison of different inversion algorithms and validation with ozone sondes in the northern middle latitudes, 9, 9329–9347, <https://doi.org/10.5194/acp-9-9329-2009>, 2009.
- Kern, C., Deutschmann, T., Vogel, L., Wöhrbach, M., Wagner, T., and Platt, U.: Radiative transfer corrections for accurate spectroscopic measurements of volcanic gas emissions, *Bull Volcanol*, 72, 233–247, <https://doi.org/10.1007/s00445-009-0313-7>, 2010.
- Krueger, A.: Sighting of El Chichón Sulfur Dioxide Clouds with the Nimbus 7 Total Ozone Mapping Spectrometer, *Science* (New York, N.Y.), 220, 1377–9, <https://doi.org/10.1126/science.220.4604.1377>, 1983.
- La Spina, A., Burton, M., and Salerno, G. G.: Unravelling the processes controlling gas emissions from the central and northeast craters of Mt. Etna, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 198, 368–376, <https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2010.09.018>, 2010.
- Labitzke, K., Naujokat, B., and McCormick, M. P.: Temperature effects on the stratosphere of the April 4, 1982 eruption of El Chichon, Mexico, 10, 24–26, <https://doi.org/10.1029/GL010i001p00024>, 1983.
- Lagueux, P., Farley, V., Chamberland, M., Villemaire, A., Turcotte, C., and Puckrin, E.: Design and Performance of the Hyper-Cam , an Infrared Hyperspectral Imaging Sensor, 2012.
- Lechevallier, L., Vasilchenko, S., Grilli, R., Mondelain, D., Romanini, D., and Campargue, A.: The water vapour self-continuum absorption in the infrared atmospheric windows: new laser measurements near 3.3 and 2.0 μm , *Atmos. Meas. Tech.*, 11, 2159–2171, <https://doi.org/10.5194/amt-11-2159-2018>, 2018.
- Lu, D. and Weng, Q.: A survey of image classification methods and techniques for improving classification performance, *International Journal of Remote Sensing*, 28, 823–870, <https://doi.org/10.1080/01431160600746456>, 2007.
- Mann, M. E., Steinman, B. A., Brouillette, D. J., and Miller, S. K.: Multidecadal climate oscillations during the past millennium driven by volcanic forcing, 371, 1014–1019, <https://doi.org/10.1126/science.abc5810>, 2021.
- McGonigle, A. J. S., Delmelle, P., Oppenheimer, C., Tsanev, V. I., Delfosse, T., Williams-Jones, G., Horton, K., and Mather, T. A.: SO₂ depletion in tropospheric volcanic plumes, 31, <https://doi.org/10.1029/2004GL019990>, 2004.
- McGonigle, A. J. S., Pering, T. D., Wilkes, T. C., Tamburello, G., D'Aleo, R., Bitetto, M., Aiuppa, A., and Willmott, J. R.: Ultraviolet Imaging of Volcanic Plumes: A New Paradigm in Volcanology, 7, 68, <https://doi.org/10.3390/geosciences7030068>, 2017.
- Merucci, L., Burton, M., Corradini, S., and Salerno, G. G.: Reconstruction of SO₂ flux emission chronology from space-based measurements, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 206, 80–87, <https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2011.07.002>, 2011.

- Montzka, S. A., Butler, J. H., Elkins, J. W., Thompson, T. M., Clarke, A. D., and Lock, L. T.: Present and future trends in the atmospheric burden of ozone-depleting halogens, 398, 690–694, <https://doi.org/10.1038/19499>, 1999.
- Moore, E., Gross, K., Bowen, S., Perram, G., Chamberland, M., Farley, V., Gagnon, J.-P., Lagueux, P., and Villemare, A.: Characterizing and overcoming spectral artifacts in imaging Fouriertransform spectroscopy of turbulent exhaust plumes, *Proc SPIE*, 7304, <https://doi.org/10.1117/12.818710>, 2009.
- Mori, T. and Burton, M.: The SO₂ camera: A simple, fast and cheap method for ground-based imaging of SO₂ in volcanic plumes, 33, <https://doi.org/10.1029/2006GL027916>, 2006.
- Mori, T., Mori, T., Kazahaya, K., Ohwada, M., Hirabayashi, J., and Yoshikawa, S.: Effect of UV scattering on SO₂ emission rate measurements, 33, <https://doi.org/10.1029/2006GL026285>, 2006.
- Oppenheimer, C., Pyle, D. M., and Barclay, J.: *Volcanic Degassing*, Geological Society of London, 438 pp., 2003.
- Oppenheimer, C., Tsanev, V. I., Braban, C. F., Cox, R. A., Adams, J. W., Aiuppa, A., Bobrowski, N., Delmelle, P., Barclay, J., and McGonigle, A. J. S.: BrO formation in volcanic plumes, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 70, 2935–2941, <https://doi.org/10.1016/j.gca.2006.04.001>, 2006.
- Oppenheimer, C., Scaillet, B., and Martin, R. S.: Sulfur Degassing From Volcanoes: Source Conditions, Surveillance, Plume Chemistry and Earth System Impacts, *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 73, 363–421, <https://doi.org/10.2138/rmg.2011.73.13>, 2011.
- Paoletti, M. E., Haut, J. M., Plaza, J., and Plaza, A.: Deep learning classifiers for hyperspectral imaging: A review, *ISPRS Journal of Photogrammetry and Remote Sensing*, 158, 279–317, <https://doi.org/10.1016/j.isprsjprs.2019.09.006>, 2019.
- Payan, S., Camy-Peyret, C., Jeseck, P., Hawat, T., Durry, G., and Lefèvre, F.: First direct simultaneous HCl and ClONO₂ profile measurements in the Arctic Vortex, 25, 2663–2666, <https://doi.org/10.1029/98GL01933>, 1998.
- Payan, S., Camy-Peyret, C., Oelhaf, H., Wetzell, G., Maucher, G., Keim, C., Pirre, M., Huret, N., Engel, A., Volk, M. C., Kuellmann, H., Kuttippurath, J., Cortesi, U., Bianchini, G., Mencaraglia, F., Raspollini, P., Redaelli, G., Vigouroux, C., Mazière, M. D., Mikuteit, S., Blumenstock, T., Velazco, V., Notholt, J., Mahieu, E., Duchatelet, P., Smale, D., Wood, S., Jones, N., Piccolo, C., Payne, V., Bracher, A., Glatthor, N., Stiller, G., Grunow, K., Jeseck, P., Te, Y., and Butz, A.: Validation of version-4.61 methane and nitrous oxide observed by MIPAS, 9, 413–442, <https://doi.org/10.5194/acp-9-413-2009>, 2009.
- Payan, S., Camy-Peyret, C., and Bureau, J.: Retrieval of sea surface temperature and trace gas column averaged from GOSAT, IASI-A, and IASI-B over the Arctic Ocean in summer 2010 and 2013, in: *Multispectral, Hyperspectral, and Ultraspectral Remote Sensing Technology, Techniques and Applications VI*, Multispectral, Hyperspectral, and Ultraspectral Remote Sensing Technology, Techniques and Applications VI, 62–78, <https://doi.org/10.1117/12.2228013>, 2016.

- Payan, S., Camy-Peyret, C., and Bureau, J.: Comparison of Retrieved L2 Products from Four Successive Versions of L1B Spectra in the Thermal Infrared Band of TANSO-FTS over the Arctic Ocean, 9, 1167, <https://doi.org/10.3390/rs9111167>, 2017.
- Phillips, D. L.: A Technique for the Numerical Solution of Certain Integral Equations of the First Kind, *J. ACM*, 9, 84–97, <https://doi.org/10.1145/321105.321114>, 1962.
- Platt, U., Lübcke, P., Kuhn, J., Bobrowski, N., Prata, F., Burton, M., and Kern, C.: Quantitative imaging of volcanic plumes — Results, needs, and future trends, 300, 721, <https://doi.org/10.1016/j.jvolgeoes.2014.10.006>, 2015.
- Prata, A. J. and Bernardo, C.: Retrieval of sulfur dioxide from a ground-based thermal infrared imaging camera, 7, 2807–2828, <https://doi.org/10.5194/amt-7-2807-2014>, 2014.
- Prata, A. J. and Kerkmann, J.: Simultaneous retrieval of volcanic ash and SO₂ using MSG-SEVIRI measurements, 34, <https://doi.org/10.1029/2006GL028691>, 2007.
- Prel, F., Moreau, L., Lantagne, S., Roy, C., Vallières, C., and Lévesque, L.: MR-i, High Speed Dual Cameras Hyperspectral Imaging FTS, 8186, 12, <https://doi.org/10.1117/12.898179>, 2011.
- Press, W. H., Teukolsky, S. A., Vetterling, W. T., and Flannery, B. P.: Numerical recipes in FORTRAN (2nd ed.): the art of scientific computing, Cambridge University Press, USA, 963 pp., 1992.
- Queißer, M., Burton, M., Theys, N., Pardini, F., Salerno, G., Caltabiano, T., Varnam, M., Esse, B., and Kazahaya, R.: TROPOMI enables high resolution SO₂ flux observations from Mt. Etna, Italy, and beyond, 9, 957, <https://doi.org/10.1038/s41598-018-37807-w>, 2019.
- Randel, W. J., Wu, F., Gettelman, A., Russell, J. M., Zawodny, J. M., and Oltmans, S. J.: Seasonal variation of water vapor in the lower stratosphere observed in Halogen Occultation Experiment data, 106, 14313–14325, <https://doi.org/10.1029/2001JD900048>, 2001.
- Razavi, A., Clerbaux, C., Wespes, C., Clarisse, L., Hurtmans, D., Payan, S., Camy-Peyret, C., and Coheur, P. F.: Characterization of methane retrievals from the IASI space-borne sounder, 9, 7889–7899, <https://doi.org/10.5194/acp-9-7889-2009>, 2009.
- Remedios, J. J., Leigh, R. J., Waterfall, A. M., Moore, D. P., Sembhi, H., Parkes, I., Greenhough, J., Chipperfield, M. P., and Hauglustaine, D.: MIPAS reference atmospheres and comparisons to V4.61/V4.62 MIPAS level 2 geophysical data sets, 7, 2007.
- Roberts, T. J., Vignelles, D., Liuzzo, M., Giudice, G., Aiuppa, A., Coltelli, M., Salerno, G., Chartier, M., Couté, B., Berthet, G., Lurton, T., Dulac, F., and Renard, J.-B.: The primary volcanic aerosol emission from Mt Etna: Size-resolved particles with SO₂ and role in plume reactive halogen chemistry, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 222, 74–93, <https://doi.org/10.1016/j.gca.2017.09.040>, 2018.
- Robock, A.: Volcanic eruptions and climate, 38, 191–219, <https://doi.org/10.1029/1998RG000054>, 2000.

- Rodgers, C. D.: Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice, WORLD SCIENTIFIC, 256 pp., <https://doi.org/10.1142/3171>, 2000.
- Rosi, F., Harig, R., Miliani, C., Braun, R., Sali, D., Daveri, A., Brunetti, B. G., and Sgamellotti, A.: Mid-infrared hyperspectral imaging of painting materials, in: Optics for Arts, Architecture, and Archaeology IV, Optics for Arts, Architecture, and Archaeology IV, 87900Q, <https://doi.org/10.1117/12.2020477>, 2013.
- Rothman, L. S., Gordon, I. E., Barbe, A., Benner, D. C., Bernath, P. F., Birk, M., Boudon, V., Brown, L. R., Campargue, A., Champion, J.-P., Chance, K., Coudert, L. H., Dana, V., Devi, V. M., Fally, S., Flaud, J.-M., Gamache, R. R., Goldman, A., Jacquemart, D., Kleiner, I., Lacome, N., Lafferty, W. J., Mandin, J.-Y., Massie, S. T., Mikhailenko, S. N., Miller, C. E., Moazzen-Ahmadi, N., Naumenko, O. V., Nikitin, A. V., Orphal, J., Perevalov, V. I., Perrin, A., Predoi-Cross, A., Rinsland, C. P., Rotger, M., Šimečková, M., Smith, M. A. H., Sung, K., Tashkun, S. A., Tennyson, J., Toth, R. A., Vandaele, A. C., and Vander Auwera, J.: The HITRAN 2008 molecular spectroscopic database, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 110, 533–572, <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2009.02.013>, 2009.
- Rothman, L. S., Gordon, I. E., Babikov, Y., Barbe, A., Chris Benner, D., Bernath, P. F., Birk, M., Bizzocchi, L., Boudon, V., Brown, L. R., Campargue, A., Chance, K., Cohen, E. A., Coudert, L. H., Devi, V. M., Drouin, B. J., Fayt, A., Flaud, J.-M., Gamache, R. R., Harrison, J. J., Hartmann, J.-M., Hill, C., Hodges, J. T., Jacquemart, D., Jolly, A., Lamouroux, J., Le Roy, R. J., Li, G., Long, D. A., Lyulin, O. M., Mackie, C. J., Massie, S. T., Mikhailenko, S., Müller, H. S. P., Naumenko, O. V., Nikitin, A. V., Orphal, J., Perevalov, V., Perrin, A., Polovtseva, E. R., Richard, C., Smith, M. A. H., Starikova, E., Sung, K., Tashkun, S., Tennyson, J., Toon, G. C., Tyuterev, V. I., and Wagner, G.: The HITRAN2012 molecular spectroscopic database, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 130, 4–50, <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2013.07.002>, 2013.
- Sabbah, S., Harig, R., Rusch, P., Eichmann, J., Keens, A., and Gerhard, J.-H.: Remote sensing of gases by hyperspectral imaging: system performance and measurements, *OE*, 51, 111717, <https://doi.org/10.1117/1.OE.51.11.111717>, 2012.
- Salerno, G. G., Burton, M. R., Oppenheimer, C., Caltabiano, T., Tsanev, V. I., and Bruno, N.: Novel retrieval of volcanic SO₂ abundance from ultraviolet spectra, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 181, 141–153, <https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2009.01.009>, 2009a.
- Salerno, G. G., Burton, M. R., Oppenheimer, C., Caltabiano, T., Randazzo, D., Bruno, N., and Longo, V.: Three-years of SO₂ flux measurements of Mt. Etna using an automated UV scanner array: Comparison with conventional traverses and uncertainties in flux retrieval, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 183, 76–83, <https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2009.02.013>, 2009b.
- Segonne, C., Huret, N., Payan, S., Gouhier, M., and Catoire, V.: A Spectra Classification Methodology of Hyperspectral Infrared Images for Near Real-Time Estimation of the SO₂ Emission Flux from Mount Etna with LARA Radiative Transfer Retrieval Model, 12, 4107, <https://doi.org/10.3390/rs12244107>, 2020.

-
- Seinfeld, J.H. and Pandis, S.N.: Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change., 2nd ed., John Wiley & Sons, 2006.
- Sellitto, P., Zanetel, C., Sarra, A. D., Salerno, G., Tapparo, A., Meloni, D., Pace, G., Caltabiano, T., Briole, P., and Legras, B.: The impact of Mount Etna sulfur emissions on the atmospheric composition and aerosol properties in the central Mediterranean: a statistical analysis over the period 2000-2013 based on observations and Lagrangian modelling, 148, 77–88, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.10.032>, 2017.
- Sellitto, P., Salerno, G., La Spina, A., Caltabiano, T., Scollo, S., Boselli, A., Leto, G., Zanmar Sanchez, R., Crumeyrolle, S., Hanoune, B., and Briole, P.: Small-scale volcanic aerosols variability, processes and direct radiative impact at Mount Etna during the EPL-RADIO campaigns, *Sci Rep*, 10, 15224, <https://doi.org/10.1038/s41598-020-71635-1>, 2020.
- Shine, K. P., Ptashnik, I. V., and Rädcl, G.: The Water Vapour Continuum: Brief History and Recent Developments, *Surv Geophys*, 33, 535–555, <https://doi.org/10.1007/s10712-011-9170-y>, 2012.
- Smekens, J.-F. and Gouhier, M.: Observation of SO₂ degassing at Stromboli volcano using a hyperspectral thermal infrared imager, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 356, 75–89, <https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2018.02.018>, 2018.
- Smethurst, L., James, M. R., Pinkerton, H., and Tawn, J. A.: A statistical analysis of eruptive activity on Mount Etna, Sicily, 179, 655–666, <https://doi.org/10.1111/j.1365-246X.2009.04286.x>, 2009.
- Sparks, R. S. J.: Forecasting volcanic eruptions, *Earth and Planetary Science Letters*, 210, 1–15, [https://doi.org/10.1016/S0012-821X\(03\)00124-9](https://doi.org/10.1016/S0012-821X(03)00124-9), 2003.
- Spinetti, C. and Buongiorno, M. F.: Volcanic aerosol optical characteristics of Mt. Etna tropospheric plume retrieved by means of airborne multispectral images, *Journal of Atmospheric and Solar-Terrestrial Physics*, 69, 981–994, <https://doi.org/10.1016/j.jastp.2007.03.014>, 2007.
- Stephens, G. L. and Tsay, S.-C.: On the cloud absorption anomaly, 116, 671–704, <https://doi.org/10.1002/qj.49711649308>, 1990.
- Stevenson, D. S., Johnson, C. E., Collins, W. J., and Derwent, R. G.: The tropospheric sulphur cycle and the role of volcanic SO₂, 213, 295–305, <https://doi.org/10.1144/GSL.SP.2003.213.01.18>, 2003.
- Stiller, G. P., Hoepfner, M., Kuntz, M., Clarmann, T. von, Echle, G., Fischer, H., Funke, B., Glatthor, N., Hase, F., Kemnitzer, H., and Zorn, S.: Karlsruhe optimized and precise radiative transfer algorithm: I. Requirements, justification, and model error estimation, in: *Optical Remote Sensing of the Atmosphere and Clouds, Optical Remote Sensing of the Atmosphere and Clouds*, 257–268, <https://doi.org/10.1117/12.317754>, 1998.
- Stiller, G. P., von Clarmann, T., Funke, B., Glatthor, N., Hase, F., Höpfner, M., and Linden, A.: Sensitivity of trace gas abundances retrievals from infrared limb emission spectra to simplifying approximations in radiative transfer modelling, *Journal of Quantitative*

- Spectroscopy and Radiative Transfer, 72, 249–280, [https://doi.org/10.1016/S0022-4073\(01\)00123-6](https://doi.org/10.1016/S0022-4073(01)00123-6), 2002.
- Stockwell, W. R. and Calvert, J. G.: The mechanism of the HO-SO₂ reaction, *Atmospheric Environment* (1967), 17, 2231–2235, [https://doi.org/10.1016/0004-6981\(83\)90220-2](https://doi.org/10.1016/0004-6981(83)90220-2), 1983.
- Taylor, I. A., Preston, J., Carboni, E., Mather, T. A., Grainger, R. G., Theys, N., Hidalgo, S., and Kilbride, B. M.: Exploring the Utility of IASI for Monitoring Volcanic SO₂ Emissions, 123, 5588–5606, <https://doi.org/10.1002/2017JD027109>, 2018.
- Theys, N., Campion, R., Clarisse, L., Brenot, H., Gent, J. van, Dils, B., Corradini, S., Merucci, L., Coheur, P.-F., Roozendael, M. V., Hurtmans, D., Clerbaux, C., Tait, S., and Ferrucci, F.: Volcanic SO₂ fluxes derived from satellite data: a survey using OMI, GOME-2, IASI and MODIS, 13, 5945–5968, <https://doi.org/10.5194/acp-13-5945-2013>, 2013.
- Theys, N., Hedelt, P., De Smedt, I., Lerot, C., Yu, H., Vlietinck, J., Pedergnana, M., Arellano, S., Galle, B., Fernandez, D., Carlito, C. J. M., Barrington, C., Taisne, B., Delgado-Granados, H., Loyola, D., and Van Roozendael, M.: Global monitoring of volcanic SO₂ degassing with unprecedented resolution from TROPOMI onboard Sentinel-5 Precursor, 9, 2643, <https://doi.org/10.1038/s41598-019-39279-y>, 2019.
- Tikhonov, A. N.: Solution of Incorrectly Formulated Problems and the Regularization Method, *Soviet Mathematics. Doklady*, 5, 1962.
- Varnam, M., Burton, M., Esse, B., Kazahaya, R., Salerno, G., Caltabiano, T., and Ibarra, M.: Quantifying Light Dilution in Ultraviolet Spectroscopic Measurements of Volcanic SO₂ Using Dual-Band Modeling, 8, 468, <https://doi.org/10.3389/feart.2020.528753>, 2020.
- Veefkind, J. P., Aben, I., McMullan, K., Förster, H., de Vries, J., Otter, G., Claas, J., Eskes, H. J., de Haan, J. F., Kleipool, Q., van Weele, M., Hasekamp, O., Hoogeveen, R., Landgraf, J., Snel, R., Tol, P., Ingmann, P., Voors, R., Kruizinga, B., Vink, R., Visser, H., and Levelt, P. F.: TROPOMI on the ESA Sentinel-5 Precursor: A GMES mission for global observations of the atmospheric composition for climate, air quality and ozone layer applications, *Remote Sensing of Environment*, 120, 70–83, <https://doi.org/10.1016/j.rse.2011.09.027>, 2012.
- Vergnolle, S. and Jaupart, C.: Dynamics of degassing at Kilauea Volcano, Hawaii, 95, 2793–2809, <https://doi.org/10.1029/JB095iB03p02793>, 1990.
- Voigt, C., Jessberger, P., Jurkat, T., Kaufmann, S., Baumann, R., Schlager, H., Bobrowski, N., Giuffrida, G., and Salerno, G.: Evolution of CO₂, SO₂, HCl, and HNO₃ in the volcanic plumes from Etna, 41, 2196–2203, <https://doi.org/10.1002/2013GL058974>, 2014.
- Watson, I. M., Realmuto, V. J., Rose, W. I., Prata, A. J., Bluth, G. J. S., Gu, Y., Bader, C. E., and Yu, T.: Thermal infrared remote sensing of volcanic emissions using the moderate resolution imaging spectroradiometer, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 135, 75–89, <https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2003.12.017>, 2004.
- Williams-Jones, G. and Rymer, H.: Hazards of Volcanic Gases, 985–992, 2015.

-
- Williams-Jones, G., Stix, J., and Hickson, C.: The COSPEC Cookbook: Making SO₂ Measurements at Active Volcanoes, <https://doi.org/10.13140/RG.2.2.13728.99845>, 2008.
- Wright, R., Lucey, P., Crites, S., Horton, K., Wood, M., and Garbeil, H.: BBM/EM design of the thermal hyperspectral imager: An instrument for remote sensing of earth's surface, atmosphere and ocean, from a microsatellite platform, *Acta Astronautica*, 87, 182–192, <https://doi.org/10.1016/j.actaastro.2013.01.001>, 2013.
- Wright, R., Nunes, M., Lucey, P., Flynn, L., Gunapala, S., Ting, D., Rafol, S., Soibel, A., Ferrari-Wong, C., Gabrieli, A., and Thenabail, P.: HYTI: thermal hyperspectral imaging from a CubeSat platform, in: *CubeSats and SmallSats for Remote Sensing III, CubeSats and SmallSats for Remote Sensing III*, 111310G, <https://doi.org/10.1117/12.2530821>, 2019.

Autres références :

- [1] *Article de presse* : Le trafic aérien suspendu dans la moitié nord de la France, *Le Monde.fr*, 15th April, 2010. (https://www.lemonde.fr/planete/article/2010/04/15/l-eruption-d-un-volcan-en-islande-perturbe-le-traffic-aerien-en-europe-du-nord_1333792_3244.html)
- [2] *Article de revue* : The Etna Observatory, *Nature* 23, 559–560 (1881). <https://doi.org/10.1038/023559a0>
- [3] *Support de cours* : Cours sur l'inversion de données, Sébastien Payan, SPECTAMO 2009. http://cds-espri.ipsl.fr/etherTypo/fileadmin/files/SPECATMO/Payan_inversion.pdf

Annexes

- *Annexe #1 : Plan de gestion des données.*
- *Annexe #2 : Tableaux récapitulatifs des séquences de mesures de l'Hyper-Cam lors de la campagne IMAGETNA.*
- *Annexe #3 : Autres exemples d'inversion des SO₂ SCD d'images, et les $\chi^2_{\text{réduits}}$ correspondants, de la séquence du 26 juin 2015 étudiée dans le cas d'étude.*
- *Annexe #4 : Autres exemples d'images de SO₂ SCD issues des inversions des données UV à l'échelle des images de l'Hyper-Cam acquises simultanément*

Annexe #1 : Plan de gestion des données.

Nom du jeu de données :

Hyper-Cam - Campagne IMAGETNA juin 2015

Personnes en charge des données :

- Nathalie Huret (N.Huret@opgc.fr)
- Sébastien Payan (Sebastien.Payan@sorbonne-universite.fr)
- Cathy Boonne (Cathy.Boonne@ipsl.jussieu.fr)

Accès en open source :

En cours

Les données sont en cours de mise en ligne sur le data center de l'infrastructure HEMERA hébergé par le pôle de données AERIS de l'infrastructure de recherche Data Terra. (<https://data.hemera-h2020.eu/>). Elles donneront lieu à un DOI (*Digital Object Identifier*).

Hébergement des données :

Les données sont hébergées sur le serveur Ciclad de l'IPSL dans les répertoires suivants :

`/gsatfs/imagetna/TELOPS/lecture/output/`

`230615/`

`20150623_095622813_RPRO_res4_330264_res4cm_1/`

`20150623_101251016_RPRO_res2_330264_res2cm_1/`

`20150623_102426074_RPRO_res2_330264_res2cm_1_260us/`

`20150623_113649461_RPRO_res1_330264_res2cm_1_280us/`

`20150623_120712634_RPRO_res1_330264_res2cm_1_290us/`

`240615/`

`20150624_093713426_res2cm_1_320x128_res2cm_1/`

`20150624_101415868_res2cm_1_320x128_res2cm_1_290us/`

`20150624_103612214_res2cm_1_320x128_res2cm_1_285us/`

250615/

20150625_082316558_res2_128x64_calib32bb_res2cm_1_285us/
20150625_084341972_res4_128x64_calib32bb_res2cm_1_285/
20150625_085416969_res8_128x64_calib32bb_res8_273us/
20150625_090415721_res8_128x64_calib64bb_res8_273us/
20150625_092446128_res2_128x64_calib32bb_sync_269us/
20150625_111849411_res4_256x90_calib32bb_4_90x256/
20150625_115809092_res2_128x128_calib32bb_res2_128x128_300us/
20150625_122017977_res4_128x128_calib32bb_calib_fin/
20150625_124442939_res4_128x128_calib32bb_calib_fin/
20150625_141029472_res32_320x256_calib32bb_calib_fin/
20150625_143550339_res8_320x180_calib32bb_calib_fin/

260615/

20150626_091755010_res4_320x64_64bb_syncGuiseppe/
20150626_094930957_res2_64x256_32bb_col_res2/
20150626_102519997_res2_320x64_32bb_res2_320x64_299us/
20150626_105009923_res2_320x64_32bb_mesure_final/

Description des données :

- Lieu des mesures :
 - Observatoire Pizzi Deneri du Mont Etna, Sicile.
 - GPS : 37°45'56.8"N – 15°00'59.7"E
 - Altitude : 2,850 m
- Format du fichier de données : fichier ASCII “.dat”
- Format du titre des fichiers :

Chaque titre de fichier commence par le préfixe « dataHC_ » et est suivi de 8 caractères numériques pour indiquer la date de la mesure avec le format « AAAMMJJ_ » puis 9 caractères numériques correspondant à l'heure de la mesure en UTC (Temps universel coordonné) avec le format « HHMMSSSSS ».

Exemple de nom de fichier : *dataHC_20150623_075802854.dat*

- Composition des fichiers de données :
 - Un header de 5 lignes avec :
 - Ligne 1 : Le nombre de pixels horizontaux.
 - Ligne 2 : Le nombre de pixels verticaux.
 - Ligne 3 : Le nombre de points spectraux.
 - Ligne 4 : La valeur du ifov selon l'horizontale en radian.
 - Ligne 5 : La valeur du ifov selon la verticale en radian.
 - Suivi de 5 colonnes :
 - Colonne 1 : Indice des pixels horizontaux.
 - Colonne 2 : Indices des pixels verticaux.
 - Colonne 3 : Valeurs des nombres d'onde en cm^{-1} .
 - Colonne 4 : Valeurs de température de brillance en Kelvin.
 - Colonne 5 : Valeurs de radiance en $\text{W}/(\text{m}^2.\text{sr.cm}^{-1})$.

```
320
 64
262
ifovX : 346400010d-10 rad
ifovY : 346400010d-10 rad
 1  1  879.446      301.939  0.12451E+00
 1  1  881.112      302.691  0.12553E+00
 1  1  882.778      300.028  0.12059E+00
 1  1  884.443      300.816  0.12166E+00
 1  1  886.109      299.522  0.11913E+00
 1  1  887.774      300.117  0.11986E+00
 1  1  889.440      301.793  0.12247E+00
 1  1  891.106      301.095  0.12096E+00
 1  1  892.771      301.717  0.12174E+00
 1  1  894.437      301.619  0.12127E+00
 1  1  896.103      300.842  0.11962E+00
 1  1  897.768      301.798  0.12098E+00
 1  1  899.434      300.239  0.11798E+00
```

Figure 1 – Capture d'écran des premières lignes d'un fichier de l'Hyper-Cam converti au format ASCII.



Figure 2 – Image large bande d'un fichier de mesures avec l'emplacement des indices des pixels aux extrémités de l'image.

	Colonne 2	Colonne 1	Nombre d'onde	Température de brillance	Radiance
Pixel 1 - 1					
Ligne 1	1	1	879.446	301.939	0.12451E+00
...		
...		
...		
Ligne 262	1	1	1314.173	282.066	0.33203E-01
...		
...		
...		

Annotations dans le schéma :

- Pixel 1 - 1** : Indique la première ligne et la première colonne.
- Colonne 2** et **Colonne 1** : Indiquent les colonnes de données.
- Nombre d'onde** : Indique la colonne des longueurs d'onde.
- Température de brillance** et **Radiance** : Indiquent les colonnes des données de mesure.
- Pixels verticaux (Index de 1 à 64)** : Indique la première colonne de données.
- Pixels horizontaux (Index de 1 à 320)** : Indique la première ligne de données.
- Nombre d'onde (262 valeurs / lignes)** : Indique le nombre de valeurs par ligne.

Figure 3 – Schéma de listage des données dans les fichiers.

Crédits

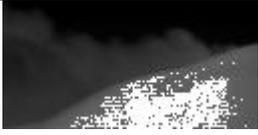
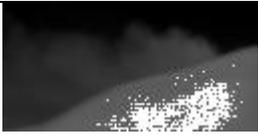
La campagne de mesures fait partie du LabEx Voltaire financé par l'Agence Nationale de la Recherche (n°ANR-10-LABX-100-01) et le programme national de chimie LEFE-CHAT (CNRS/INSU).

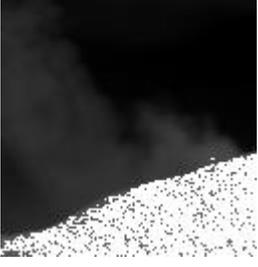
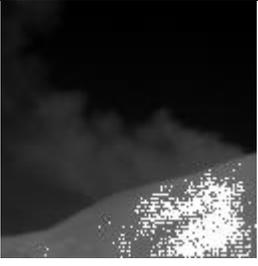
Annexe #2 : Tableaux récapitulatifs des séquences de mesures de l'Hyper-Cam lors de la campagne IMAGETNA.

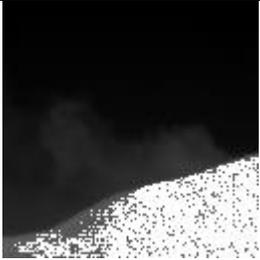
DAY 1 : 20150622		data filename : 220615		data format : radiance/raw				
Sequence	Initial time UT	Final time UT	configuration				Observations on meteorological conditions	Example spectrum/field of view
# Name	hhmmss	hhmmss	Spectral resolution	Temporal & spatial resolution	Calibration Averaging	FOV		
1 20150622_094132840_test_SO2_RDI	095535 (local Canada)	102755 (local Canada)	4	2.141 s 320x64 pi	Before 16	25.6x5.1 °		
2 20150622_103022843_Scenario_flame2	143157 (UTC)	143309 (UTC)	2	4.92 s 320x64 pi	Before 16	25.6x5.1 °	RAW only	
3 20150622_103158201_Scenario_nuafesans s	143330 (UTC)	143351 (UTC)	2	4.921 s 320x64 pi	Before 16	25.6x5.1 °	RAW only	
4 20150622_103234888_Scenario_nuafesans s2	143406 (UTC)	143605 (UTC)	2	4.921 s 320x64 pi	Before 16	25.6x5.1 °		
5 20150622_103536207_Scenario_nuafesans s3	143707 (UTC)	143749 (UTC)	2	4.921 s 320x64 pi	Before 16	25.6x5.1 °	RAW only	

DAY 2 : 20150623 data filename : 230615		data format : radiance/raw						
sequence	Initial time UT	Final time UT	configuration				Observations on meteorological conditions	Example spectrum/field of view
# Name	hhmmss	hhmmss	Spectral resolution	Temporal & spatial resolution	Calibration Averaging	FOV		
1 20150623_095622813_RPRO_res4_330264_ res4cm_1	075803 (UTC)	080258 (UTC)	4	2.296 s 320x64 pi	Before 16	25.6x5.1 °	Blue sky	
2 20150623_101251016_RPRO_res2_330264_ res2cm_1	081245 (UTC)	082222 (UTC)	2	4.595 s 320x64 pi	Before 16	25.6x5.1 °	Blue sky	
3 20150623_102426074_RPRO_res2_330264_ res2cm_1_260us	082418 (UTC)	083740 (UTC)	2	4.594 s 320x64 pi	Before 16	25.6x5.1 °	Blue sky	
4 20150623_113649461_RPRO_res1_330264_ res1cm_1_280us	093637 (UTC)	095618 (UTC)	1	9.189 s 320x64 pi	Before 16	25.6x5.1 °	Blue sky	
5 20150623_120712634_RPRO_res1_330264_ res2cm_1_290us	100707 (UTC)	104238 (UTC)	2	4.595 s 320x64 pi	Before 16	25.6x5.1 °	Blue sky	

sequence		Initial time UT	Final time UT	configuration			Observations on meteorological conditions	Example spectrum/field of view
#	Name	hhmmss	hhmmss	Spectral resolution	Temporal & spatial resolution	Calibration Averaging	FOV	
1	20150624_093713426_res2cm_1_320x128_res2cm_1	093703 (LOCAL)	094839 (LOCAL)	2	6.696 s 320x128 pi	Before 16	25.5x10. 2 °	Cloudy sky 
2	20150624_101415868_res2cm_1_320x128_res2cm_1_290us	101359 (LOCAL)	102405 (LOCAL)	2	6.698 s 320x128 pi	Before 16	25.5x10. 2 °	Cloudy sky 
3	20150624_103612214_res2cm_1_320x128_res2cm_1_285us	103559 (LOCAL)	105015 (LOCAL)	2	6.698 s 320x128 pi	Before 16	25.5x10. 2 °	Cloudy sky 

DAY 4 : 20150625 data filename : 250615		data format : radiance/raw							
sequence	Initial time UT	Final time UT	configuration				Observations on meteorological conditions	Example spectrum/field of view	
# Name	hhmmss	hhmmss	Spectral resolution	Temporal & spatial resolution	Calibration Averaging	FOV			
1 20150625_082316558_res2_128x64_calib32 bb_res2cm_1_285us	082312 (LOCAL)	082730 (LOCAL)	2	2.321 s 128x64 pi	Before/after 32	10.2x5.1 °	Blue sky		
2 20150625_084341972_res4_128x64_calib32 bb_res2cm_1_285us	084349 (LOCAL)	084553 (LOCAL)	4	1.161 s 128x64 pi	Before/after 32	10.2x5.1 °	Blue sky		
3 20150625_085416969_res8_128x64_calib32 bb_res8_273us	085415 (LOCAL)	085627 (LOCAL)	8	0.58 s 128x64 pi	Before/after 32	10.2x5.1 °	Blue sky		
4 20150625_090415721_res8_128x64_calib64 bb_res8_273us	090414 (LOCAL)	090739 (LOCAL)	8	0.58 s 128x64 pi	Before/after 64	10.2x5.1 °	Blue sky		
5 20150625_092446128_res2_128x64_calib32 bb_sync_269us	092443 (LOCAL)	100906 (LOCAL)	2	2.321 s 128x64 pi	Before/after 32	10.2x5.1 °	Blue sky		
20150625_110802997_res4_128x128_test90height : Ignore this sequence									
20150625_111157662_res4_256x90_calib32bb_calibavant : Ignore this sequence									

DAY 4 : 20150625 data filename : 250615		data format : radiance/raw							
sequence	Initial time UT	Final time UT	configuration				Observations on meteorological conditions	Example spectrum/field of view	
# Name	hhmmss	hhmmss	Spectral resolution	Temporal & spatial resolution	Calibration Averaging	FOV			
6 20150625_111849411_res4_256x90_calib32 bb_4_90x256	111845 (LOCAL)	113302 (LOCAL)	4	2.607 s 256x90 pi	Before/after 32	20.4x7.2 °			
7 20150625_115809092_res2_128x128_calib3 2bb_res2_128x128_300us	115804 (LOCAL)	120447 (LOCAL)	2	3.81 s 128x128 pi	Before/after 32	10.2x10. 2 °	Blue sky		
8 20150625_122017977_res4_128x128_calib3 2bb_calib_fin	122014 (LOCAL)	123818 (LOCAL)	4	1.905 s 128x128 pi	Before/after 32	10.2x10. 2 °	Blue sky		

9 20150625_124442939_res4_128x128_calib3 2bb_calib_fin	124439 (LOCAL)	131338 (LOCAL)	4	1.905 s 128x128 pi	Before/after 32	10.2x10. 2 °	Blue sky	
--	-------------------	-------------------	---	--------------------------	--------------------	-----------------	----------	---

sequence		Initial time UT	Final time UT	Configuration			Observations on meteorological conditions	Example spectrum/field of view	
#	Name	hhmmss	hhmmss	Spectral resolution	Temporal & spatial resolution	Calibration Averaging	FOV		
10	20150625_141029472_res32_320x256_calib32bb_calib_fin	141025 (LOCAL)	141439 (LOCAL)	32	2.358 s 320x256 pi	Before/after 32	25.6x20. 5 °	<p>Blue sky,</p> <p>Comment: people passed in front of the camera (bottom of FOV 14h11m50s). No problem for the interferograms associated with plume.</p>	

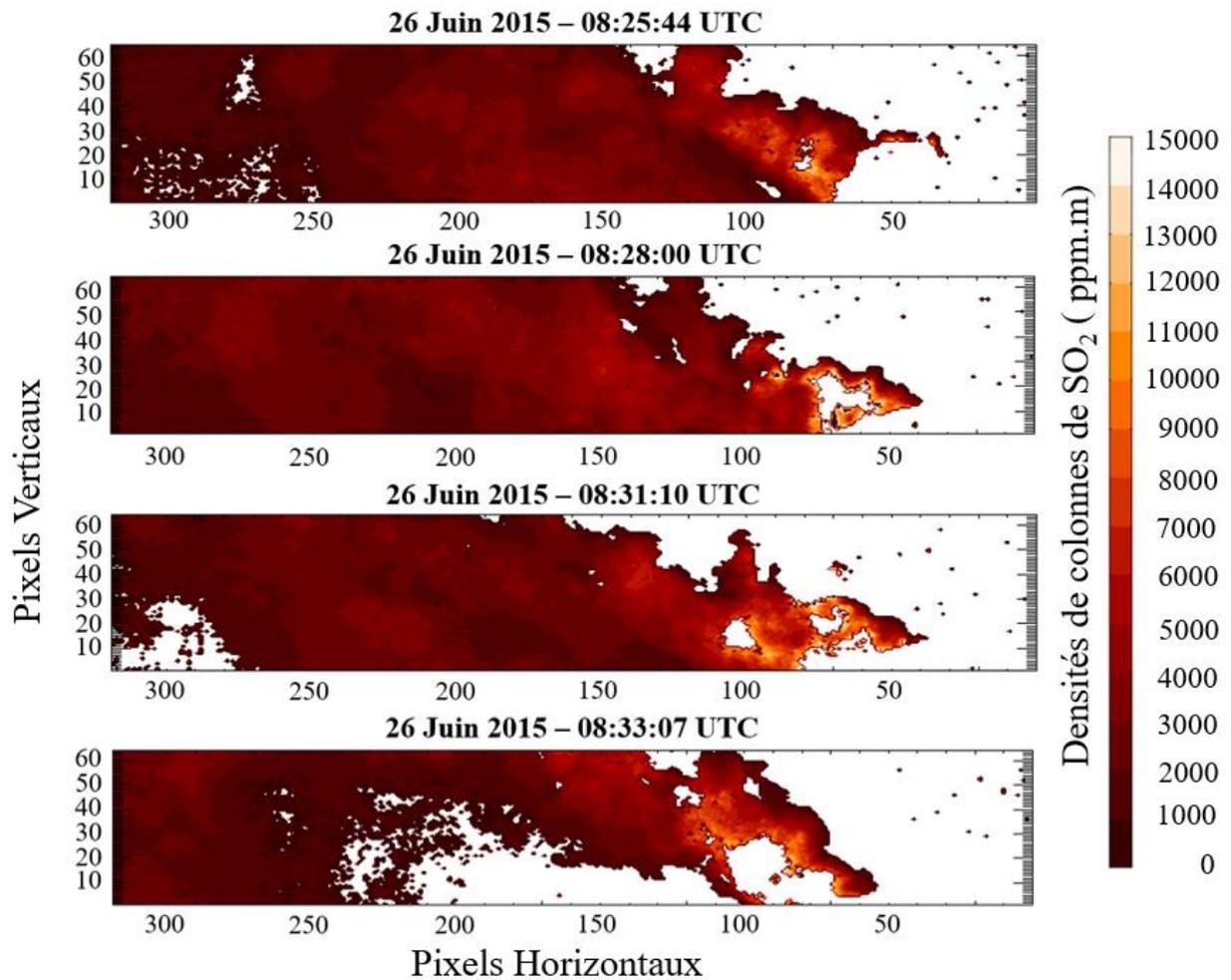
11 20150625_143550339_res8_320x180_calib3 2bb_calib_fin	143545 (LOCAL)	144109 (LOCAL)	8	4.403 s 320x180 pi	Before/after 32	25.6x14. 4 °	Blue sky but a cloud passed on top of the plume (14h37).	
---	-------------------	-------------------	---	--------------------------	--------------------	-----------------	--	---

DAY 5 : 20150626 data filename : 260615		data format : radiance/raw						
sequence	Initial time UT	Finale time UT	Configuration				Observations on meteorological conditions	Example spectrum/field of view
# Name	hhmmss	hhmmss	Spectral resolution	Temporal & spatial resolution	Calibration Averaging	FOV		
1 20150626_091755010_res4_320x64_64bb_s yncGuiseppe	071759 (UTC)	072902 (UTC)	4	1.274 s 320x64 pi	Before/after 64	25.6x5.1 °	Blue sky	

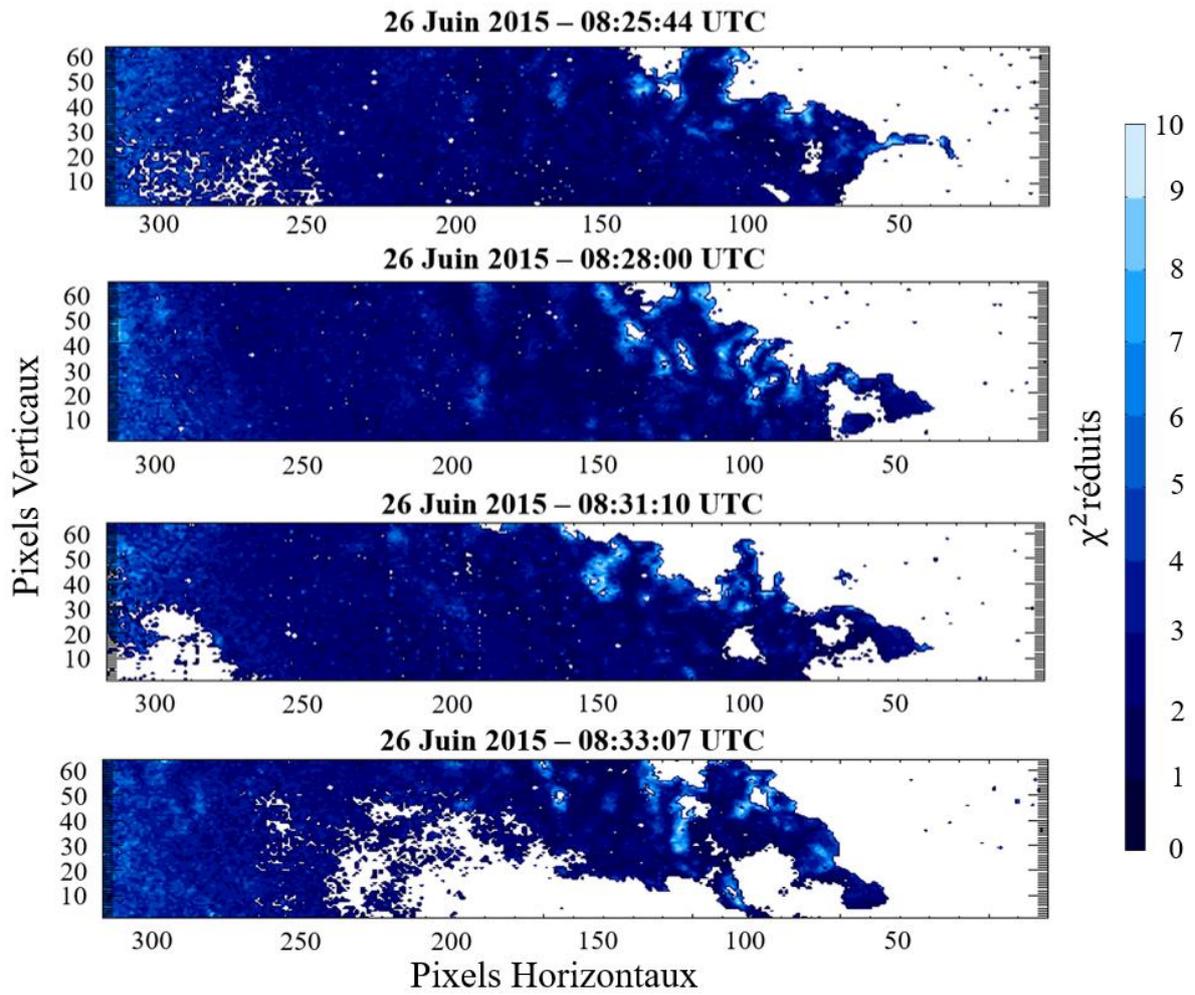
<p>2 20150626_094930957_res2_64x256_32bb_col_res2</p>	<p>074936 (UTC)</p>	<p>080639 (UTC)</p>	<p>2</p>	<p>2.134 s 64x256 pi</p>	<p>Before/after 32</p>	<p>5.1x20.4 °</p>	<p>Blue sky but a cloud passed behind the plume 7h56-8h05.</p>	
<p>3 20150626_102519997_res2_320x64_32bb_res2_320x64_299us</p>	<p>082525 (UTC)</p>	<p>084438 (UTC)</p>	<p>2</p>	<p>2.547 s 320x64 pi</p>	<p>Before/after 32</p>	<p>25.6x5.1 °</p>	<p>Blue sky, cloud was arriving in front of the plume (8h31-8h38 bottom left of the FOV) and at 8h38 we are in the cloud.</p>	
<p>4 20150626_105009923_res2_320x64_32bb_mesure_final</p>	<p>085015 (UTC)</p>	<p>085156 (UTC)</p>	<p>2</p>	<p>2.547 s 320x64 pi</p>	<p>Before/after 32</p>	<p>25.6x5.1 °</p>	<p>Once again, cloud passed.</p>	

Annexe #3 : Autres exemples d'inversion des SO_2 SCD d'images, et les $\chi^2_{\text{réduits}}$ correspondants, de la séquence du 26 juin 2015 étudiée dans le cas d'étude.

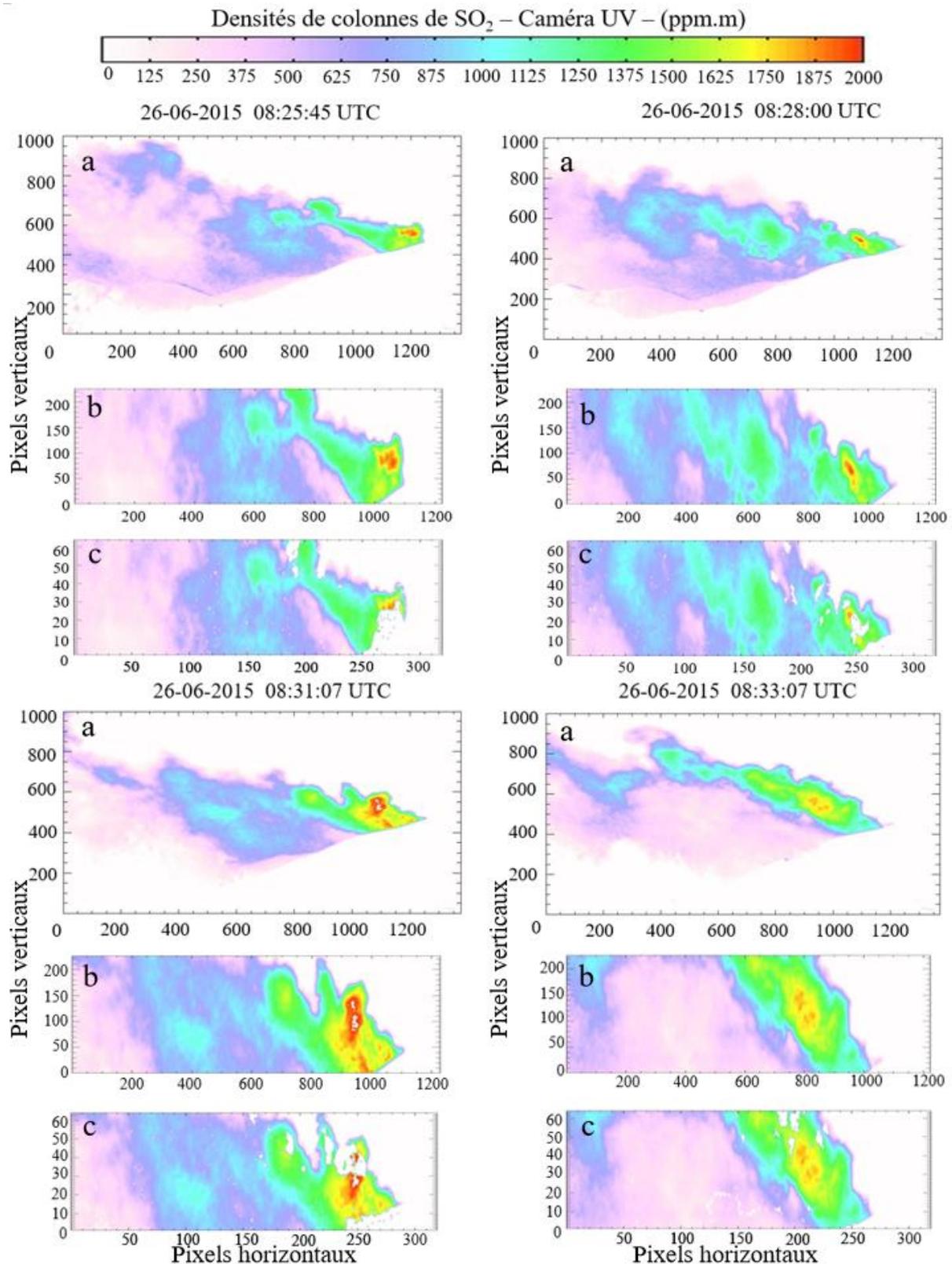
- Cartes des SO_2 SCD :



- Cartes des $\chi^2_{réduits}$:



Annexe #4 : Autres exemples d'images de SO₂ SCD issues des inversions des données UV (a), avec mise à l'échelle du champ de vue des images de l'Hyper-Cam (b) et de la taille des pixels (c).



Caractérisation de la composition chimique des panaches volcaniques par imagerie hyperspectrale infrarouge

Résumé : La caractérisation de l'atmosphère nécessite une bonne connaissance de la part des émissions volcaniques. L'émergence des imageurs hyperspectraux infrarouge (IHI), pour les mesures par télédétection, offre la possibilité d'avoir des mesures de jour et de nuit des panaches volcaniques avec une haute résolution spectrale, temporelle et spatiale. Le déploiement de l'IHI Hyper-Cam, de la société Telops, pour la mesure du panache de l'Etna, en juin 2015, a permis de valider l'adéquation de cette technologie pour ces mesures. L'adaptation du modèle de transfert radiatif et d'inversion LARA a été validée par des tests de sensibilité permettant de définir une configuration de la géométrie du panache de référence pour les inversions des images d'une séquence de mesures d'intérêt. Le modèle a prouvé sa robustesse pour l'inversion des densités de colonnes de SO₂ et pour la prise en compte de la contribution de l'extinction des aérosols. Le développement d'une méthode de classification des spectres pour une inversion massive des données permet de se rapprocher d'une estimation des flux d'émissions de SO₂ en quasi-temps réel.

Mots clés : *hyperspectral, infrarouge, imageur, SO₂, volcan, Etna, panache volcanique, transfert radiatif, modèle d'inversion, LARA, flux d'émission.*

Characterization of the chemical composition of volcanic plume using infrared hyperspectral imagery

Summary: The characterization of the atmosphere requires a good knowledge of the contribution of the volcanic emissions. The development of infrared hyperspectral imagers (IHI), for remote sensing measurements, gives the opportunity to have remote measurements of volcanic plumes, day and night, with high spectral, temporal, and spatial resolutions. The deployment of the IHI Hyper-Cam, from Telops company, for remote measurements of Mount Etna plume in June 2015, validated the suitability of this technology for these measurements. The adaptation of the radiative transfer model and inversion algorithm LARA has been validated through sensitivity tests and allowed the definition of a reference configuration of the plume geometry for the retrieval of the spectra from the images of the sequence of measurements of interest. LARA model has proven its robustness for the retrieval of the SO₂ slant column densities but also for taking into account the contribution of the aerosols extinction. The development of a spectra classification methodology, for a massive inversion of the data, makes it possible to approximate an estimate of the SO₂ emission fluxes in quasi-real time.

Keywords: *hyperspectral, infrared, imager, SO₂, volcano, Etna, volcanic plume, radiative transfer, inversion model, LARA, emission flux.*



LaMP – OPGC

4 Avenue Blaise Pascal,

63170 Aubière