



HAL
open science

Détection des évènements exceptionnels à partir des observations IASI

Adrien Vu Van

► **To cite this version:**

Adrien Vu Van. Détection des évènements exceptionnels à partir des observations IASI. Océan, Atmosphère. Sorbonne Université, 2022. Français. NNT : 2022SORUS505 . tel-04056837

HAL Id: tel-04056837

<https://theses.hal.science/tel-04056837>

Submitted on 3 Apr 2023

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.



Sorbonne Université

Ecole doctorale de Sciences de l'Environnement (ED129)

Laboratoire Atmosphères et Observations Spatiales (LATMOS)

DETECTION DES EVENEMENTS EXCEPTIONNELS A PARTIR DES OBSERVATIONS IASI

Adrien Vu Van

Thèse de doctorat en Sciences de l'Environnement

Dirigée par Cathy Clerbaux et Anne Boynard

Présentée et soutenue publiquement le 14 décembre 2022

Devant un jury composé de :

Solène TURQUETY

Vincent GUIDARD

Valérie THOURET

Sophie BAUDUIN

Claude CAMY-PEYRET

Anne BOYNARD

Cathy CLERBAUX

Présidente du jury

Rapporteur

Rapporteure

Examinatrice

Examineur

Co-encadrante de thèse

Directrice de thèse

REMERCIEMENT

À l'heure où j'écris ces mots, le nom qui me vient en premier est incontestablement celui de Anne. Merci Anne d'être la personne que tu es, merci d'être si tolérante, rigoureuse, rassurante et motivante. Plus généralement merci d'avoir été là, surtout dans les moments les plus difficiles, de m'avoir soutenu au-delà de tes heures de travail, et pour tous les moments d'échange.

Merci à Cathy, évidemment, qui a cru en moi dès le départ et qui m'a poussé sans cesse à aller plus loin dans mon travail. Merci aussi de ce que tu fais pour tous les jeunes qui arrivent dans le monde de la recherche (moi y compris) en ayant cette approche bienveillante, transparente et généreuse, et en donnant l'opportunité à chacun d'observer les différentes facettes de ce métier.

Il serait aussi très difficile d'oublier l'équipe IASI. Merci. Si je devais la décrire, je dirais qu'elle ne connaissait, récemment encore, que très peu la mixité, et pourtant j'ai été accueilli avec beaucoup de bienveillance (un mot qui revient sans cesse décidément). Je tiens à remercier Rimal pour avoir été la présentatrice de mon petit film « IASI conf », pour son humour et pour les discussions bien trop longues quand je la croisais dans les couloirs. Merci à Camille pour ses encouragements et conseils, à Nadir avec sa bonne humeur (grand présentateur aussi), à Juliette pour son tempérament sage et son grand calme, à Sarah pour sa capacité à passer de la chercheuse la plus sérieuse du monde à une humoriste provoquant l'hilarité générale dans une salle remplie. Merci aussi à Maya pour son énergie, son sens de l'organisation et son humour. Merci à mon ancienne voisine de bureau Marie, jumelle de thèse, pour son aide pythonesque, et pour les bons moments passés à Evian notamment. Merci à Lisa pour sa bonne humeur et pour son aide précieuse de dernière minute, à Selviga, la dernière arrivante dans la TEAM pour sa bonne humeur et pour avoir apporté un peu plus de vie dans un bureau qui était devenu très calme. Enfin un grand merci à Gaëlle pour ses conseils personnels, d'être devenue mon amie malgré un prank qui a mal tourné (indice : Le lion... ne s'associe pas... avec le cafard), et pour son soutien.

Il est important pour moi de remercier toute l'équipe de SPASCIA à Toulouse pour l'aide précieuse qu'ils m'ont apporté, la bonne ambiance pendant les réunions, les discussions d'oiseaux, et j'en passe. Je tiens à adresser des remerciements particuliers à Pascal qui m'a bien évidemment aidé scientifiquement pendant ce travail de thèse, mais aussi m'a permis d'observer ce qui se fait

probablement de mieux dans le monde du privé. Merci d'être quelqu'un de si respectueux avec les salariés de ton entreprise, de prendre en considération l'avis de tous et d'être aussi transparent quant aux directions prises par SPASCIA. Un remerciement particulier à Un remerciement particulier à Claude Camy-Peyret (IPSL), puits de science et grand sage aux yeux de tous, merci de ton aide, tes commentaires et conseils, merci d'avoir animé de longues discussions avec la touche d'humour subtile qui est la tienne.

Enfin, je tiens à remercier ma famille pour son support moral, mais aussi mes amis, présents au quotidien. Merci en particulier à Louis qui a été avec moi chaque jour ou presque. Au-delà de nos sujets de discussion favoris, tu as su être un support immense qu'il est difficile de décrire. Je te remercie d'être la personne que tu es, je te remercie pour ton oreille toujours disponible, je te remercie pour ton infinie empathie et pour tout l'amour que tu m'as donné.

Un grand merci à Rosy qui m'a supporté dans les moments de stress et aidé quand j'en avais besoin. Merci d'avoir été patiente alors que je n'avais plus de temps pour nous. Merci de me faire rire au quotidien. Le duo rigolo a tenu.

Je vous remercie donc tous, en particulier Cathy et Pascal d'avoir eu une influence très forte sur ma vision du monde du travail, de la recherche, et de m'avoir partagé les valeurs fortes qui sont les vôtres.

Cette thèse a été réalisé dans le cadre d'une convention CIFRE, gérée par l'Association Nationale de la Recherche Technique (ANRT). Merci donc à l'ANRT et à SPASCIA de m'avoir permis de réaliser cette thèse.

Résumé

Les instruments IASI (Interféromètre Atmosphérique de Sondage dans l'Infrarouge) à bord des satellites Metop-A, -B et -C mesurent le rayonnement infrarouge (IR) émis par le système Terre-atmosphère depuis 2006. Chaque jour plusieurs millions de spectres sont enregistrés par IASI, ce qui constitue un volume important de données. Une des problématiques inhérentes à cette quantité de données réside dans la recherche d'évènements extrêmes. En effet, il est possible d'observer des évènements extrêmes à partir des données chimiques de niveau 2 (L2), c'est-à-dire les concentrations de gaz mais l'inversion n'est généralement possible que pour des conditions de ciel clair. De plus il est difficile de rechercher ces évènements à partir des données L2 et de les caractériser en quasi-temps réel. Ce travail de thèse répond à la nécessité de mettre en place un algorithme de détection innovant et opérationnel afin de traiter directement les spectres de radiances (données de niveau 1 – L1C).

Une méthode optimisée pour la détection d'évènements extrêmes a été développée à partir de la méthode d'analyse en composantes principales (ACP ou en anglais PCA pour principal component analysis) sur les luminances IASI qui permet à la fois la compression des données mais aussi la réduction du bruit instrumental. Cette méthode repose sur la création d'une base d'apprentissage représentative de la variabilité atmosphérique permettant alors de conserver toute l'information lors de la compression/reconstruction des luminances IASI. Les évènements extrêmes sortant de la variabilité atmosphérique normale sont caractérisés par une mauvaise reconstruction. En prenant en compte les valeurs extrêmes issues de la mauvaise reconstruction des spectres IASI on peut alors étudier le signal atmosphérique anormal. Les données IASI L1C étant disponibles toutes les 3 minutes sous forme de granule, il est naturel d'appliquer la méthode directement sur les granules IASI pour permettre une détection en quasi-temps réel. De plus, la caractérisation des espèces à l'état de trace absorbantes est réalisée à partir de différentes combinaisons de raies intenses ou de bandes d'absorption (appelés « indicateurs » spectraux) qui ont été définies à partir de simulations de transfert radiatif et de bases de données spectroscopiques. Cette méthode de détection, appelée IASI-PCA-GE (GE pour granule extrema), permet alors de détecter en quasi

temps réel (NRT) les anomalies atmosphériques associées à des événements extrêmes comme les feux, éruptions volcaniques ou les épisodes de pollution anthropique.

Une première partie de ce travail de thèse a consisté à analyser différents événements extrêmes passés et documentés pendant la période IASI. Ensuite la méthode IASI-PCA-GE a été appliquée aux données IASI pour plusieurs cas d'étude, et les résultats ont été comparés avec les données L2 existantes. Par ailleurs, une archive d'événements extrêmes d'éruptions volcaniques et d'épisodes de feux a été générée à partir des résultats de cette méthode qui a été appliquée à la série temporelle IASI-B complète (2013-2022). La méthode est capable de détecter la présence de nombreuses molécules et la comparaison avec les données L2 montre un bon accord entre les deux jeux de données. Cependant certaines limitations subsistent et sont discutées.

La méthode développée pendant cette thèse pourra par ailleurs être appliquée à des futures missions, telles que la mission IASI-NG/Metop-SG et la mission géostationnaire MTG-IRS dont les lancements sont prévus en 2024.

Abstract

The IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer) instruments aboard the Metop-A, -B and -C satellites have been measuring the infrared radiation (IR) emitted by the Earth-atmosphere system since 2006. Every day, several million spectra are recorded by IASI, which constitutes a large volume of data. One of the problems inherent to this amount of data is the search for extreme events. Indeed, it is possible to observe extreme events from level 2 data (L2), i.e. gas concentrations, but the retrieval is generally only possible under clear sky conditions. Moreover, it is difficult to search for these events from L2 data and to characterize them in real time. This thesis work addresses the need to implement an innovative detection algorithm to directly process the radiance spectra (level 1 data – L1C).

An optimized method for the detection of extreme events has been developed from PCA (Principal Component Analysis) on IASI radiances, which allows both the compression of the data but also the reduction of instrumental noise. This method relies on the creation of a training database representative of the atmospheric variability, allowing to keep all the information during the compression/reconstruction of IASI radiances. However, extreme events are outside the normal atmospheric variability and will be ill-reconstructed. By taking into account the extreme values resulting from the ill-reconstructed IASI spectra, we can study the anomalous atmospheric signal. In order to allow a systematic, automatic and accurate analysis allowing the detection and characterization of anomalies, the analysis is performed on sets of radiance spectra observed during 3 min time steps (IASI granule). In addition, the characterization of absorbing trace species is performed using different thresholds and fine spectral indicators defined from radiative transfer simulations and spectroscopic database. This method called IASI-PCA-GE (GE for granule extrema) allows then to detect and characterize in quasi real time the atmospheric anomalies associated with extreme events such as fires, volcanic eruptions or anthropic pollution episodes.

A first part of this thesis work consisted in analyzing different past extreme events documented during the IASI period. Then the IASI-PCA-GE method was applied to IASI data for several study cases and the results were compared with existing L2 data. Furthermore, extreme event archives of volcanic eruptions and fire episodes were generated from the results of this method, which was

applied to the complete IASI-B time series (2013-2022). The method is able to detect the presence of numerous molecules and the comparison with the L2 data shows a good agreement between the two datasets. However, some limitations remain and are discussed.

The method developed during this thesis can also be applied to future missions, such as the IASI-NG/Metop-SG mission and the MTG-IRS geostationary mission, which are scheduled to be launched in 2024.

Acronymes

ACP Analyse en Composantes Principales

AIRS Atmospheric InfraRed Sounder

AVHRR Advanced Very-High-Resolution Radiometer

BUFR Binary Universal Form for the Representation of meteorological data

CNES Centre National d'Etudes Spatiales

COV Composés Organiques Volatiles

CrIs Cross Track Infrared sounder

DU Dobson Unit

EUMETSAT EUropean organisation for the exploitation of METeorological SATellites

FOV Field Of View

FTS Fourier Transform Spectrometer

GE Granule Extrema

GEISA Gestion et Etudes des Informations Spectroscopiques Atmosphériques

GIEC Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat

GMA Granule MAximum

GMI Granule MInimum

GOME Global Ozone Monitoring Experiment

HITRAN High-Resolution Transmission molecular Absorption Database

HRI Hyperspectral Range Index

IASI Infrared Atmospheric Sounding Interferometer

IASI-NG Infrared Atmospheric Sounding Interferometer New Generation

IFOV Instantaneous Field Of View

IR InfraRed

IRS InfraRed Sounder

Metop Météorologie opérationnelle

MODIS MODerate resolution Imaging Spectroradiometer

MOPITT Measurement Of Pollution In The Troposphere

MTG Meteosat Third Generation
NASA National Aeronautics and Space Administration
NedT Noise Equivalent Temperature Difference
NG New Generation
NRT Near Real Time
NWP Numerical Weather Prediction
OMI Ozone Monitoring Instrument
PM Particulate matter
RS Score de Reconstruction
S5P Sentinel-5 Precursor
TES Tropospheric Emission Spectrometer
TIR Thermal InfraRed
TIROS Television InfraRed Observation Satellite
TR Transfert Radiatif
TROPOMI TROPospheric Monitoring Instrument
UTLS Upper Troposphere Lower Stratosphere
UV UltraViolet

Table des matières

1	Introduction	15
1.1	L'atmosphère	15
1.1.1	Coupe verticale.....	15
1.1.2	Composition chimique	16
1.1.3	Les principaux polluants de l'air et leur durée de vie/transport	17
1.2	Les événements extrêmes	23
1.2.1	Qu'est-ce qu'un événement extrême ?.....	23
1.2.2	Catégorisation des événements extrêmes.....	24
1.3	Espèces impliquées dans les événements extrêmes	26
1.3.1	Eruptions volcaniques	26
1.3.1.1	Composés soufrés	26
1.3.1.2	Composés halogénés.....	27
1.3.1.3	Acide nitrique (HNO ₃).....	27
1.3.1.4	Aérosols et cendres volcaniques	27
1.3.2	Les feux.....	28
1.3.2.1	Le monoxyde de carbone (CO)	28
1.3.2.2	L'ammoniac (NH ₃).....	29
1.3.2.3	L'acide nitreux (HONO).....	29
1.3.2.4	Les composés organiques volatils (COVs).....	29
1.3.2.5	Le cyanure d'hydrogène (HCN).....	30
1.3.2.6	Le furane (C ₄ H ₄ O)	31
1.4	Les observations satellitaires	31
1.5	Motivations de la thèse	35
2	Le sondage atmosphérique par satellite.....	38
2.1	Pourquoi étudier l'infrarouge	38
2.2	Le transfert radiatif dans l'infrarouge thermique	39
2.2.1	Émission du rayonnement.....	39
2.2.2	L'équation du transfert radiatif et le modèle direct	42
2.2.3	Interaction rayonnement-matière	45
2.2.4	Famille de molécules et absorption	47
2.2.5	Restitution de paramètres géophysiques à partir de spectres infrarouges ... Erreur ! Signet non défini.	
2.3	Contribution spectrale des molécules	52
2.3.1	Simulations Atmosphit	53
2.3.2	HITRAN	60

2.3.2.1	Sections efficaces des molécules volcaniques	61
2.3.2.2	Sections efficaces des molécules de feux	63
2.4	La mission IASI/Metop	65
2.4.1	L'interféromètre IASI	66
2.4.2	Caractéristiques instrumentales de IASI	68
2.4.3	Caractéristiques géométriques de IASI	69
2.4.4	Les données IASI de niveau 1 (L1)	72
2.4.5	Les données IASI de niveau 2 (L2)	72
3	La méthode d'analyse en composantes principales.....	74
3.1	Concept de base	75
3.2	Applications de l'ACP	76
3.2.1	Utilisation des composantes principales.....	76
3.2.2	Détection d'événements extrêmes	78
3.3	La méthode IASI-PCA	80
3.3.1	Score de reconstruction	81
3.3.2	Choix des vecteurs propres	85
3.3.3	Création de la base d'apprentissage	87
3.3.4	Avantages et limitations de la méthode IASI-PCA.....	88
4	La méthode IASI-PCA-GE (Granule-Extrema)	94
4.1	Définition d'indicateurs spectraux.....	95
4.2	La méthode des « Granule-Extrema » (GE)	99
4.3	Caractérisation des molécules	101
4.4	Seuils de détection statistiques.	103
4.4.1	Sélection de granules	103
4.4.2	Sélection de canaux.....	106
4.4.3	Sélection de pixels.....	107
4.5	Alertes en temps réel.....	110
5	Les éruptions volcaniques	112
5.1	Intensité des éruptions volcaniques	113
5.2	Cas de l'éruption Ubinas, Pérou (20 juin 2019)	115
5.2.1	Contexte	115
5.2.2	Espèces détectées par la méthode IASI-PCA-GE	116
5.2.3	Analyse approfondie des détections spectrales de HNO ₃	118
5.2.4	Distribution spatiale des pixels de détection	121

5.2.5	Comparaison avec la méthode IASI-PCA	122
5.2.6	Transport du panache de SO ₂	124
5.2.7	Conclusions	125
5.3	Cas de l'activité à Popocatépetl, Mexique (21 août 2016)	126
5.3.1	Contexte	126
5.3.2	Espèces détectées par la méthode IASI-PCA-GE	127
5.3.3	Distribution spatiale des pixels de détection	128
5.3.4	Comparaison avec la méthode IASI-PCA	130
5.3.5	Conclusion	130
5.4	Création d'une archive d'éruptions volcaniques	131
5.5	Conclusions générales sur les éruptions volcaniques	135
6	Les feux.....	136
6.1	Caractéristiques des feux.....	137
6.2	Cas des feux d'Australie (2019-2020)	138
6.2.1	Contexte	138
6.2.2	Espèces détectées par la méthode IASI-PCA-GE	139
6.2.3	Distribution spatiale des pixels de détection	140
6.2.4	Conclusions sur les feux d'Australie	145
6.3	Cas des feux de Sibérie (3 août 2010).....	146
6.3.1	Contexte	146
6.3.2	Espèces détectées par la méthode IASI-PCA-GE	147
6.3.3	Distribution spatiale des pixels de détection	149
6.3.4	Conclusions sur les feux de Sibérie	151
6.4	Comparaison avec la méthode IASI-PCA.....	152
6.5	Analyse des séries temporelles pour les feux	153
6.5.1	Séries temporelles pour CO.....	154
6.5.2	Séries temporelles pour HCN	157
6.6	Conclusions générales sur les feux	159
7	Pollution anthropique	161
7.1	Cas du pic de pollution en Chine (janvier 2013)	162
7.1.1	Contexte	162
7.1.2	Espèces détectées par la méthode IASI-PCA-GE	162
7.1.3	Distribution spatiale des pixels de détection	163
7.2	Cas de l'incendie d'Al-Mishraq, Irak (octobre 2016).....	165

7.2.1	Contexte	165
7.2.2	Espèces détectées par la méthode IASI-PCA-GE	165
7.2.3	Distribution spatiale des pixels de détection	166
7.3	Autres cas d'étude	167
7.3.1	Sources de SO ₂	167
7.3.2	Sources de C ₂ H ₄	169
7.4	Conclusion générale sur les émissions anthropiques	174
8	Conclusions et perspectives	176
8.1	Conclusions	176
8.2	Limites et perspectives de ce projet de recherche	178
	Bibliographie	183

Chapitre 1

1 Introduction

1.1 L'atmosphère

1.1.1 Coupe verticale

Les évènements extrêmes étudiés dans cette thèse qu'ils soient d'origine naturelles ou anthropiques apparaissent à la surface de la Terre et vont avoir un impact sur la composition des premières couches de l'atmosphère. On s'intéressera donc au deux premières couches (les couches observées par IASI) qui s'étendent de la surface jusqu'à environ 50 km d'altitude composées de :

- La troposphère qui s'étend de la surface jusqu'à environ 8 km (aux pôles) et 16 km (à l'équateur) d'altitude. Le sommet de la troposphère s'appelle la tropopause. Dans cette première couche la température est gouvernée principalement par la densité et la pression de l'air qui diminue avec l'altitude, et la température diminue donc jusqu'à la tropopause.
- La stratosphère qui s'étend de la tropopause à 50 km d'altitude. Dans cette couche, la température est gouvernée par le rayonnement ultra-violet (UV) entraînant un échauffement par photochimie. La température de l'air augmente dans cette couche.

Au-dessus de la stratosphère se trouvent trois autres couches qui ne sont pas (ou rarement) impactés par les événements extrêmes :

- La mésosphère s'étendant entre 50 et 80 km d'altitude. La raréfaction des molécules dans cette couche fait varier la température comme dans la troposphère et on observe une baisse de la température en fonction de l'altitude.
- La thermosphère se situant entre 80 km et 350-600 km. Il s'agit d'une couche dans laquelle l'air est très rare mais l'absorption des rayonnements de très courtes longueurs d'onde

(ultra-violet - UV) par les molécules de dioxygène (O_2) va entraîner une forte augmentation de la température avec l'altitude.

- L'exosphère s'étendant du sommet de la thermosphère jusqu'au vide spatial. Dans cette couche, les collisions entre atomes (essentiellement des atomes d'hydrogène et d'hélium) sont considérées comme négligeables, et certains atomes échappent à la force gravitationnelle terrestre (zone d'échappement) [Leblanc, 2009].

La figure 1.1 illustre le profil vertical de température issu d'une climatologie standard (US standard) de la surface à la thermosphère.

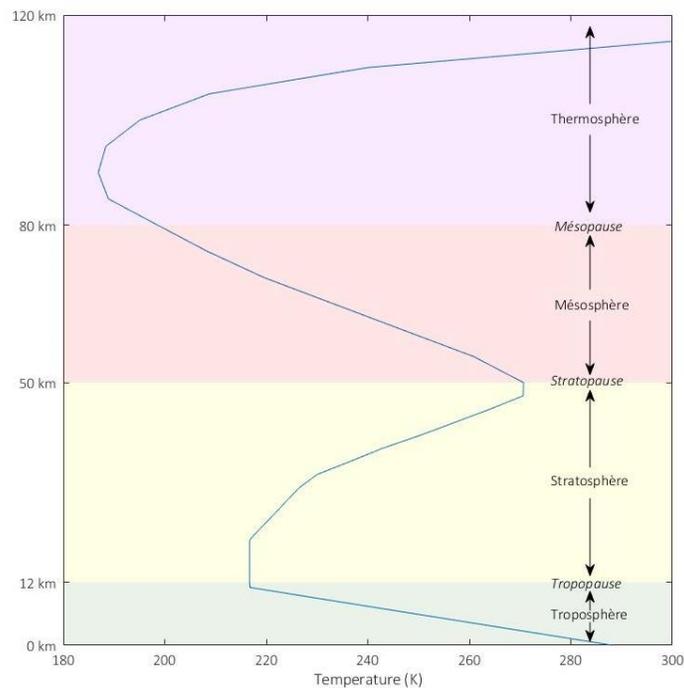


Figure 1.1 : Profil de température de la surface jusqu'à 120 km issue d'une climatologie standard (US standard).

1.1.2 Composition chimique

L'atmosphère se compose approximativement de 78% de diazote (N_2), 21% O_2 , et près de 1% d'argon. Outre ces composés majoritaires se trouvent des gaz à l'état de trace : dioxyde de carbone (CO_2), protoxyde d'azote (N_2O), méthane (CH_4), monoxyde de carbone (CO), ozone (O_3), etc. Cette composition est exprimée en rapport de mélange présenté en partie par millions en volume (ppmv) dans le tableau 1.1 donne la composition chimique de l'air sec.

Tableau 1.1 : Composition chimique de l'air sec (d'après Schlatter et al. [2016])

<i>Espèces</i>	<i>Formule chimique</i>	<i>Concentration (ppmv)</i>
<i>Azote</i>	N_2	780 840
<i>Oxygène</i>	O_2	209 460
<i>Argon</i>	Ar	9340
<i>Dioxyde de Carbone</i>	CO_2	384
<i>Ozone</i>	O_3	0.01 – 0.10
<i>Méthane</i>	CH_4	1.774
<i>Protoxyde d'azote</i>	N_2O	0.320

Longtemps considérée stable, la composition atmosphérique est connue maintenant comme étant variable, notamment en termes d'espèces à l'état de trace. Cela est notamment dû aux activités humaines ou encore aux extrêmes climatiques. La variation des gaz à l'état de trace, même avec de faibles concentrations dans l'atmosphère, ainsi que leur réactivité plus ou moins importante (à l'origine de la formation d'espèces secondaires), ont des effets sur le climat, la température ou encore la santé.

1.1.3 Les principaux polluants de l'air et leur durée de vie/transport

Les espèces émises dans l'atmosphère par l'homme ou par des phénomènes naturels sont nommées « polluants primaires » alors que les espèces issues de processus physico-chimiques, telles que l'ozone, sont nommées « polluants secondaires ». Parmi les polluants primaires on trouve :

- Les oxydes de soufre (SO_2) émis par la combustion de charbon et de pétrole, la fonte de minerais contenant du soufre, ainsi que par les éruptions volcaniques et certains feux de forêts. La concentration normale est de 0.382 - 1.91 ppbv dans l'air [Bisson, 2011].
- Les oxydes de carbone sont une famille d'espèces composées d'atomes de carbone et d'oxygène comme le CO ou le CO_2 . Dans le cas du CO, son émission résulte de combustion incomplète issue de toute combustion, ce qui favorise sa détection dans les pollutions humaines issues du trafic routier, chauffage, ou encore dans tous types de feux. De plus, c'est un gaz inodore et toxique qui représente 50% des empoisonnements dans les pays industrialisés [Omaye, 2002]. Le CO_2 est un polluant primaire, mais aussi un gaz à effet de serre

majeur [Lacis et al., 2010]. Il provient de différentes sources : les émissions anthropiques (énergies, déboisement, transports, agriculture) ou naturelles (respiration, feux de forêts).

- Les oxydes d'azote (NO_x) comme le monoxyde d'azote (NO), le dioxyde d'azote (NO_2) et le N_2O (source des NO_x dans la stratosphère est plutôt classé dans les gaz à effet de serre et pas dans les oxydes d'azote qui sont notés NO_y de façon générale). Ils sont émis principalement par les véhicules à moteur à combustion. Les NO_x sont déterminants dans l'atmosphère car ils sont précurseurs de l'ozone troposphérique. La baisse de la concentration de NO_x entraîne une augmentation de l'ozone troposphérique dans les régions les plus polluées [Sicard et al., 2020].
- Les composés organiques volatils (COV) constituent une grande famille d'espèces que l'on trouve dans l'atmosphère à l'état de gaz comme l'isoprène (C_5H_8), l'éthane (C_2H_6), l'acétylène (C_2H_2) ou éthylène (C_2H_4). Ils s'évaporent facilement dans les conditions de pression-température au sol (296 K et 1013.25 hPa). Les émissions de COV peuvent être d'origine biogéniques majoritairement dû à la végétation, et sont aussi retrouvée dans les émissions liées à la combustion, notamment par exemple dans les feux de biomasse. Par ailleurs ils peuvent être émis par les solvants ou encore le secteur agricole, et proviennent donc de sources très nombreuses. Les COV, considérés comme nocifs pour l'homme selon le Centre International de Recherche sur le Cancer (CIRC), sont des précurseurs de l'ozone troposphérique [Beekmann et Labouze, 2004].
- L'ammoniac (NH_3) qui est émis majoritairement par les activités agricoles, les épandages d'engrais minéraux et organiques pour la fertilisation des cultures, ainsi que par des sources de combustion, dans le secteur résidentiel, par les feux de forêts, ou dans le secteur industriel. L'ammoniac a une concentration normale de l'ordre de 1.44 à 4.32 ppbv et les concentrations les plus élevées rapportées sont dans le cadre de l'élevage intensif, plus de 1.44 ppmv dans un enclos où se trouvait parqué un cheptel important [INERIS, 2016]. En plus de son effet toxique (corrosif), l'ammoniac est responsable d'une grande partie de la formation des $\text{PM}_{2.5}$ (particules fines d'un diamètre inférieur à $2.5 \mu\text{m}$; PM pour particulate matter) [Lee et al., 2015] ainsi que de la formation d'aérosols, cependant son rôle reste complexe et dépend de différents facteurs [Viatte et al., 2021].

- Les particules fines ($PM_{2.5}$, PM_{10}), dangereuses pour les systèmes respiratoire et cardiovasculaire, sont un mélange d'espèces solides et aqueuses d'origine à la fois humaine ou naturelle avec des structures très variables (taille, surface, densité). Elles sont principalement émises par le trafic routier (combustion dans les moteurs) et par le secteur résidentiel (chauffage) ce qui augmente la pollution en particules fines en hiver en raison du chauffage mais aussi par le secteur de la construction (chantiers et carrières) qui émet davantage de particules plus grosses telles que les PM_{10} . Les concentrations de particules fines dépendent fortement des conditions chimiques, de la dispersion dans l'atmosphère et du transport longue-distance favorise l'augmentation des concentrations des $PM_{2.5}$ et PM_{10} dans certaines régions [Querol et al., 2004].

La durée de vie des gaz à l'état de trace dans l'atmosphère est directement liée à leur réactivité. En effet, une espèce primaire émise dans l'atmosphère aura une durée de vie courte si elle se retrouve dans des conditions propices à des processus physico-chimiques (espèce fortement réactive, ensoleillement, forte concentration, espèces oxydantes). La composition atmosphérique peut varier rapidement de façon locale sous l'influence combinée d'émissions naturelles et anthropiques. Les incendies ou encore la pollution urbaine locale sont susceptibles d'augmenter dans un climat qui se réchauffe [Hart, 2022]. Cela implique des impacts potentiels sur la société et la santé et illustre l'importance d'une surveillance de la composition atmosphérique, ce qui justifie l'étude des événements extrêmes, sources de polluants primaires ou secondaires, qui impactent la composition atmosphérique. Parmi les espèces (tableau 1.2), certains gaz, selon leur durée de vie, ont un impact direct ou indirect sur la qualité de l'air, le climat, l'acidité des pluies ou encore la sécurité aérienne.

Tableau 1.2 : Durée de vie de certaines espèces gazeuses.

<i>Espèces</i>	<i>Formule</i>	<i>Durée de vie</i>	<i>Impact</i>
<i>Glyoxal</i>	CHOCHO	1 – 2 heures [Volkamer et al., 2005.]	Précurseur de l’ozone troposphérique, toxicité [Kielhorn et al., 2004]
<i>Formaldéhyde</i>	HCHO	8 heures [Pfister et al., 2008]	Source de d’acide formique (HCOOH) [Franco et al., 2021]
<i>Ammoniac</i>	NH ₃	Quelques heures à un jour [Nair et al., 2020]	Qualité de l’air, toxicité
<i>Dioxyde d’azote</i>	NO ₂	Quelques heures à quelques jours [Richter, 2009]	Qualité de l’air, toxicité, acidité des pluies
<i>Protoxyde d’azote</i>	N ₂ O	120 ans [Prather et al., 2015]	Effet de serre, Source des NOX dans la stratosphère
<i>Ozone à la surface</i>	O ₃	1.3 jours [Santos et al., 2018]	Toxicité, système respiratoire, effet de serre
<i>Dioxyde de soufre</i>	SO ₂	1 – 2 jours [Beirle et al., 2014]	Sécurité aérienne, qualité de l’air toxicité
<i>Acide Formique</i>	HCOOH	2 à 4 jours [Franco et al., 2021]	Acidité des pluies [Franco et al., 2021]
<i>Vapeur d’eau</i>	H ₂ O	8 – 9 jours [Hodnebrog et al., 2019]	Effet de serre, précipitations [Hodnebrog et al., 2019]
<i>Ozone stratosphérique</i>	O ₃	Quelques jours à plusieurs mois [Bekki et al., 2009]	Protection rayonnement UV [Bekki et al., 2009]
<i>Monoxyde de carbone</i>	CO	2 – 3 mois [Pfister et al., 2008]	Qualité de l’air, toxicité
<i>Particules / Aérosols</i>		Dépendant de l’humidité relative [Slade et al., 2014]	Qualité de l’air, santé [Fuzzi et al., 2015]
<i>Méthane</i>	CH ₄	10 ans [Solomon, 2010]	Effet de serre [Solomon, 2010]
<i>Hydrochlorofluorocarbures</i>	HCFC	13.6 ans (HCFC-22) [Montzka et al., 1993]	Destruction de la couche d’ozone [McCulloch et al., 2006]
<i>Chlorofluorocarbures</i>	CFCs	52 ans (CFC-11) 112 ans (CFC-12) [Hoffmann 2014]	Destruction de la couche d’ozone [Solomon, 1999]
<i>Dioxyde de carbone</i>	CO ₂	50-200 ans [Archer et al., 2009]	Effet de serre [Archer et al., 2009]
<i>Hexafluorure de soufre</i>	SF ₆	3200 ans [Maiss, 1998]	Système respiratoire [Tsai, 2007]

Plus la durée de vie d'une espèce est courte moins plus la distribution spatiale sera de cette espèce sera à proximité de sa source d'émission. Cela permet pour certaines molécules d'être présentes plus fréquemment autour des points chauds d'émissions (appelés « hot spot ») dont ils sont issus comme démontré avec le cas de l'ammoniac où les observations de ces « hot spots » permettent de les mettre en relation directes avec les émissions anthropiques liées aux zones industrielles et agricoles [Van Damme et al., 2018].

Bien que certaines espèces aient un temps de vie court, les temps de transport des panaches dans l'atmosphère peuvent être rapide, entraînés par les déplacements des masses d'air. En effet, dans les moyennes latitudes où l'on trouve les principales sources de pollution, ils sont parfois transportés d'un continent à l'autre sur une même latitude, mais il est aussi possible d'observer des déplacements vers les pôles ou les tropiques [Auby, 2012] avec des temps de transport variables.

La figure 1.2 et le tableau 1.3 indiquent les chemins et temps de transport caractéristiques des panaches entre différentes régions du globe. Dans les cas des chemins D, E, F, G montrant des échanges intercontinentaux dans les moyennes latitudes, les durées sont de l'ordre d'une à deux semaines. Les échanges avec les tropiques observés selon le chemin B sont moins rapides (1-2 mois). Les échanges de l'hémisphère nord vers l'hémisphère sud sont les plus longs avec un temps de transport de 1 an. Enfin les échanges entre les moyennes latitudes et l'Arctique observé avec le chemin A son de l'ordre de 1 à 4 semaines et donc se font sur des échelles de temps proches du transport intercontinental à l'intérieur des moyennes latitudes. Cela montre que la troposphère boréale est susceptible d'être fortement influencée par les sources de pollution aux moyennes latitudes.

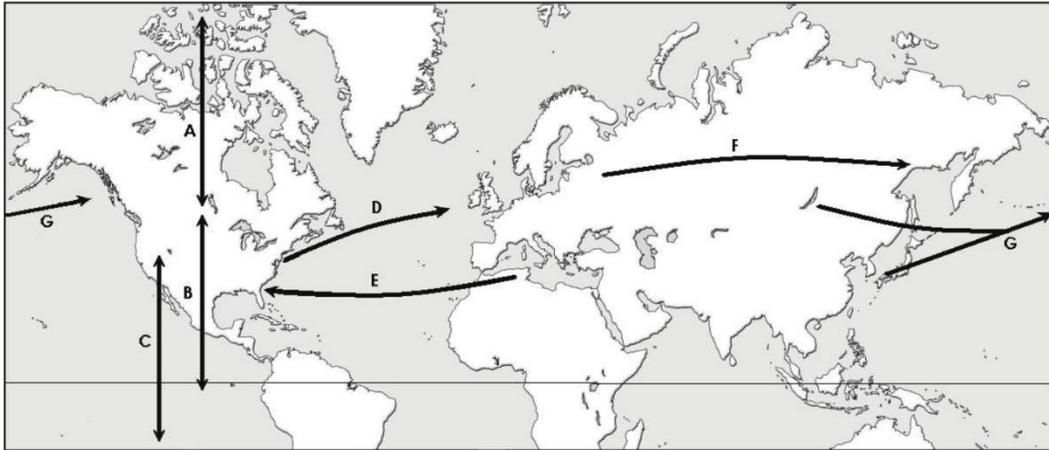


Figure 1.2 : Chemins de transport de panaches (d'après Auby [2012])

Tableau 1.3 : Temps de transport de panache associés aux chemins de transport indiqués sur la figure 1.2 (d'après Auby [2012])

	<i>Chemin</i>	<i>Temps de transport</i>
A	Moyennes latitudes – Arctique	1-4 semaines
B	Moyennes latitudes – Tropiques	1-2 mois
C	Hémisphère Nord – Hémisphère Sud	1 an
D	Amérique du Nord – Europe	3-13 jours
E	Amérique du Nord – Afrique	1-2 semaines
F	Europe de l'Est – Asie	1-2 semaines
G	Asie – Amérique du Nord	4-17 jours

1.2 Les événements extrêmes

1.2.1 Qu'est-ce qu'un événement extrême ?

Dans la littérature scientifique les événements extrêmes sont couramment définis avec des critères de probabilité et de statistique. On va parler d'événements extrêmes ou rares [Seneviratne et al., 2012] pour sa distribution de référence statistique à un endroit spécifique.

Dans le rapport spécial du groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat (GIEC) de 2012 [Seneviratne et al., 2012] est indiqué que dans un contexte de changement climatique des changements au niveau de différents critères associés aux extrêmes sont à prévoir. Pour un événement spécifique on va s'intéresser aux critères tels que sa rareté, son intensité, sa durée, son expansion spatiale, mais aussi les dégâts socio-économiques ou dégâts écologiques causés et sa simultanéité avec d'autres événements.

Cependant, il n'existe pas de définition précise de ce qu'est un événement extrême [Stephenson et al., 2008] et il existe des limitations aux approches basées sur les probabilités ou les seuils quant aux impacts causés par ces événements. On peut noter qu'un extrême d'intensité ne sera pas nécessairement associé à un impact extrême. En effet, un extrême, en termes d'impact, est très dépendant des variables spatiales et temporelles. Selon la région du globe, la période de l'année, on parlera ou pas d'épisode exceptionnel. Aussi, la variabilité naturelle de phénomènes à grande échelle, comme El Niño, les variations décennales et les variations multi-décennales, peuvent entraîner des événements exceptionnels (par exemple des sécheresses et des pluies intenses avec El Niño) encore plus marqués. L'impact du changement climatique sur la fréquence ou l'intensité de ces phénomènes n'est pas prouvé [Collins et al., 2010]. Cependant en 2022 le GIEC insiste sur l'augmentation des événements extrêmes selon les critères de fréquence, d'intensité mais aussi de durée. En effet, d'après le GIEC, avec un indice de confiance fort et selon les projections futures, le réchauffement climatique mène à des augmentations des extrêmes tels que les épisodes de sécheresse, de vague de chaleurs, et les feux de biomasse dans différentes régions comme l'Australie ou l'Amazonie [Begum et al., 2022 ; Parmesan et al., 2022].

Enfin, au sein des évènements extrêmes, il est important de distinguer les échelles de temps concernées. En effet, on peut prendre l'exemple des évènements climatiques extrêmes et des évènements météorologiques extrêmes qui se distinguent par les échelles de temps allant de moins d'une journée à plusieurs semaines pour les évènements météorologiques extrêmes, et des échelles beaucoup plus longues (plusieurs années/décennies) pour les évènements climatiques extrêmes [Seneviratne et al., 2012].

Dans le cadre de ce travail, les évènements extrêmes étudiés seront des évènements impactant la chimie de l'atmosphère dans des périodes de temps relativement courte (de moins d'un jour à plusieurs semaines) et une approche basée sur les statistiques et des seuils sera choisie. On va s'intéresser particulièrement aux critères d'intensité d'un évènement ainsi qu'à son expansion spatiale et sa durée puisque les données utilisées dans cette thèse permettent d'accéder à une étude spatiale des évènements le jour et la nuit.

1.2.2 Catégorisation des évènements extrêmes

L'évolution du climat ces 50 dernières années est marquée par un réchauffement exceptionnel, accompagné par des évolutions des phénomènes extrêmes, notamment l'augmentation des vagues de chaleur, des régions affectées par les sécheresses, du nombre d'évènements de précipitations intenses aux moyennes latitudes, de l'intensité et la durée des tempêtes tropicales, des évènements de feux, des pics de pollution urbaine etc. Sur Terre, on peut classer les extrêmes impactant la composition atmosphérique selon trois catégories :

- Les évènements naturels d'origine géologique avec les éruptions volcaniques [Cheng, 2022].
- Les évènements naturels d'origine météorologique comme les feux de biomasse [Richardson et al., 2022].
- Les évènements directement liés l'homme comme les accidents industriels, pics de pollution en région urbaine et certains feux de biomasse lié notamment à la culture sur brûlis [Simkhovich et al., 2009 ; Jethva et al., 2019].

Les évènements extrêmes impactent la composition atmosphérique et ont une incidence sur la qualité de l'air à l'échelle locale, régionale et globale selon leur intensité. En effet les panaches de

feux ou les panaches d'émissions volcaniques peuvent faire le tour du monde comme montré dans la figure 1.3, peuvent imposer des évacuations et confinements de populations comme en décembre 2021 aux Canaries [Carracedo et al., 2022], bloquer le trafic aérien comme dans l'ensemble de l'Europe dans le cas du volcan Eyjafjallajökul en Islande en 2011 [Clerbaux et al., 2011], ou impacter la qualité de l'air, avec des risques sanitaires pour les populations dans le cas des feux notamment [Leonelli, 2018].

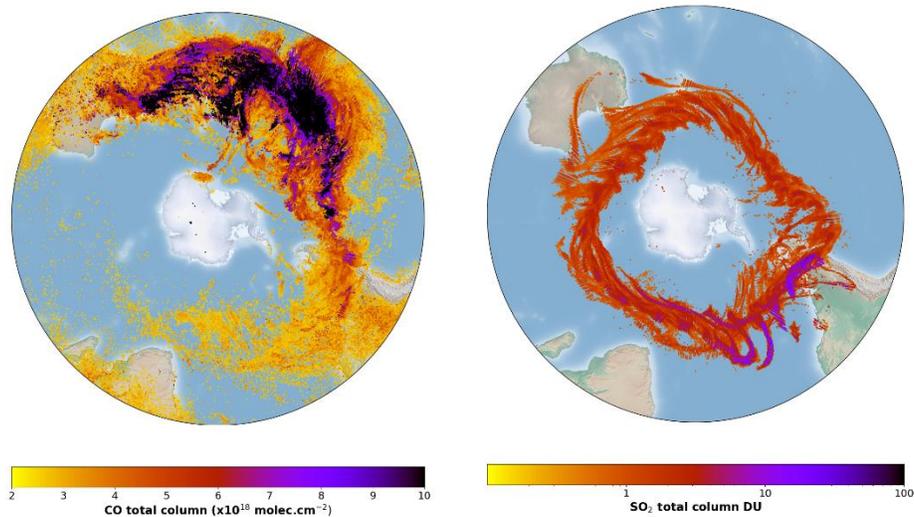


Figure 1.3 : A gauche, le monoxyde de carbone mesuré par IASI/Metop-B dans les fumées des feux australiens, du 1^{er} au 19 janvier 2020. A droite, le dioxyde de soufre mesuré par IASI/Metop-B dans les panaches du volcan Cordón Caulle (Chili) du 3 au 20 Juin 2011.

L'étude des extrêmes permet d'un point de vue sociétal de donner des alertes et de faire des choix plus précis et cohérents face à un événement. Du point de vue de l'étude du système Terre-atmosphère l'intérêt pour les extrêmes est l'étude de leur occurrence, de leur composition chimique (émissions de polluants primaires, réactions chimiques menant à la production de polluants secondaires) ainsi que la quantification des molécules impliquées; l'étude du transport des panaches de polluants, de leur temps de vie ou encore des impacts possibles sur la chimie globale, la météorologie et le climat (exemple des forçages).

1.3 Espèces impliquées dans les événements extrêmes

1.3.1 Eruptions volcaniques

Les éruptions volcaniques sont naturelles, souvent imprévisibles et peuvent rejeter de grandes quantités de composés soufrés (S_2 , H_2S , SO_2 , OCS et SO_3 [Oppenheimer et al., 2011]) ou autres (comme la vapeur d'eau et dioxyde de carbone [Kern et al., 2017 ; Fischer et al., 2019]), d'aérosols [Mather et al., 2003] et de cendres [Corradini et al., 2009]. Je présente ici les principales espèces à courte durée de vie retrouvées dans l'atmosphère dans les cas d'éruptions volcaniques qui seront discutés dans le chapitre 5.

1.3.1.1 Composés soufrés

Le SO_2 est l'espèce principale retrouvée dans les panaches des éruptions volcaniques ou lors des dégazages des volcans, responsables en moyenne d'émissions de l'ordre de 13 Tg par an [Andres et al., 1998]. Le SO_2 peut à la fois être oxydé par les radicaux hydroxyle (OH) permettant alors la production de l'acide sulfurique (H_2SO_4) mais aussi par l'adsorption sur la surface des cendres qui va agir comme un puit de SO_2 [Schmauss et al., 2014 ; Zhu et al., 2020]. Précurseur d'aérosols (e.g. H_2SO_4) dont la présence affecte directement ou indirectement le bilan radiatif de la Terre [Schmidt et al., 2012], le SO_2 joue un rôle important sur la météorologie et le climat. Son temps de vie dépend de l'origine de son émission (volcanisme, industries, feux), de la saison et de la couche atmosphérique dans laquelle il est injecté. On estime que son temps de vie dans la troposphère varie entre approximativement une journée l'été [Beirle et al., 2014], jusqu'à 3-4 jours l'hiver [Lee et al., 2011]. En revanche, le temps de vie du SO_2 dans la stratosphère peut aller de plusieurs semaines à plus d'un mois [Carn et al., 2016]. On retrouve d'autres sources de SO_2 , notamment d'origine anthropique, comme les industries utilisant le charbon, qui émettent en moyenne jusqu'à 50-65 Tg de SO_2 par an [Lee et al., 2011].

Le second principal composé soufré retrouvé dans les émissions volcaniques est le sulfure d'hydrogène (H_2S). Il a été précédemment détecté par IASI [Clarisse et al., 2011] avec des estimations annuelles d'émissions globales allant de 1 à 37 Tg [Clerbaux et al., 2011]. Son temps de vie dans l'atmosphère, est estimé à 3 jours environ [Von Glasow et al., 2009]. Il s'oxyde en SO_2 , augmentant la concentration de ce dernier dans l'atmosphère. Le SO_2 étant le composant le plus

émis dans les panaches volcaniques, l'observation simultanée de H_2S et SO_2 est rarement possible [Von Glasow et al., 2009].

1.3.1.2 Composés halogénés

Parmi les composés halogénés émis par les éruptions volcaniques, on peut citer le chlorure d'hydrogène (HCl) [Rose et al., 2006 ; Millard et al., 2006] avec un temps de vie de l'ordre de quelques heures [Fan et al., 2021], le fluorure d'hydrogène (HF) [Butz et al., 2016] et le bromure d'hydrogène (HBr) avec un temps de vie de l'ordre d'une journée [Oppenheimer et al., 2006 ; Fan et al., 2021]. Ces trois composés ont déjà été observés par satellite [Mahieu et al., 2008 ; Clarisse et al., 2020 ; Oppenheimer et al., 2006]. Les composés halogénés comme le bromure d'hydrogène (HBr) peuvent être convertis en halogènes réactifs [Roberts et al., 2009], composés chimiques ayant un impact sur la couche d'ozone. En effet, le mécanisme dû à une réaction avec les surfaces des aérosols volcaniques entraîne la destruction locale de l'ozone [Theys et al., 2014] particulièrement dans les éruptions de forte intensité [Kutterolf et al., 2013].

1.3.1.3 Acide nitrique (HNO_3)

La présence de l'acide nitrique a été observée dans les panaches volcaniques [Mather et al., 2004 ; Voigt et al., 2014, Oppenheimer et al., 2010 ; Rose et al., 2006]. Cependant elle est encore mal comprise et considérée comme une espèce secondaire issue de différentes réactions entre des molécules chimiques d'origine volcanique [Martin et al., 2012]. Avec l'acide sulfurique, HNO_3 est connu pour être l'un des acides responsables des pluies acides, jouant un rôle important dans le cycle de l'azote. Le temps de vie de HNO_3 est estimé autour de plusieurs semaines dans la haute troposphère [Wespes et al., 2007].

1.3.1.4 Aérosols et cendres volcaniques

Les éruptions volcaniques de forte intensité libèrent d'énormes quantités du soufre qui sont injectées dans la stratosphère et se transforment en aérosols, qui impactent sur le bilan radiatif atmosphérique [Tilmes et al., 2014]. Les aérosols volcaniques ont un temps de vie dépendant de la hauteur d'injection des émissions volcaniques. Le temps de vie des aérosols sulfatés est estimé à environ 40-60 heures [Li et al., 2021] mais dans le cas de l'éruption du Pinatubo en 1991 et ses émissions atteignant la stratosphère, ce temps de vie a été estimé à 24 mois [Toohey et al., 2021]. La disparition des aérosols dans l'atmosphère est aujourd'hui principalement attribuée au

processus de déposition (dépôt sec et dépôt humide). Parmi les principaux aérosols volcaniques, on peut citer l'acide sulfurique [Karagulian et al., 2010] qui a également un impact sur le climat via des réactions chimiques hétérogènes avec des composés halogénés responsables de la destruction de la couche d'ozone [Zhu et al., 2020]. Il est également responsable des pluies acides et a impact sur la qualité de l'air [Singh et al., 2007]. L'acide sulfurique a été observé pour la première fois par IASI dans une bande d'absorption large autour de $1072\text{--}1215\text{ cm}^{-1}$ sous forme de gouttelette [Karagulian et al., 2010].

Les panaches de cendres peuvent être transportés verticalement à des altitudes différentes des panaches de gaz [Prata et al. 2007] mais les cendres volcaniques peuvent aussi coexister avec les gaz et aérosols tels que SO_2 , HCl ou H_2SO_4 et peuvent alors être un puit (par adsorption) de SO_2 [Schmauss et al., 2014] ou encore de HCl [Gutiérrez et al., 2016]. En effet, les cendres volcaniques ont un temps de vie relativement court et finissent par ne plus être observées dans les panaches car elles se déposent en surface après seulement quelques jours. Il est important de noter que selon l'altitude d'injection ce temps de vie peut être augmenté, à savoir que lorsque les cendre atteignent la stratosphère elles peuvent alors y rester jusqu'à plusieurs mois [Zhu et al., 2020].

1.3.2 Les feux

Les feux de biomasses sont responsables des émissions d'un grand nombre de gaz à l'état de trace, composés organiques volatiles, ou aérosols [Coheur, 2009 ; Andreae, 2019 ; Ciccioli et al., 2014]. Certains composés comme le dioxyde de carbone sont aussi retrouvés dans les émissions des feux, cependant dans ce travail nous nous intéresserons aux molécules variables dans l'atmosphère précédemment observées par satellites dans l'infrarouge et dont la présence est discutée dans le chapitre 6.

1.3.2.1 Le monoxyde de carbone (CO)

Une des espèces les plus abondantes dans les feux est le monoxyde de carbone qui est émis à la fois par des sources anthropiques (transport, chauffage, industrie) et par les feux naturels ou provoqués pour le brûlage de la biomasse [Duncan et al., 2008]. Le CO est connu pour être un précurseur de l'ozone et est principalement détruit par sa réaction avec le radical OH [George et al., 2009]. Avec un temps de vie d'environ deux mois dans la troposphère, le CO est utilisé comme

un traceur du transport des panaches émis par les feux [Logan et al., 1981]. Il est observé quotidiennement par satellite depuis les années 2000 [George et al., 2009 ; Turquety et al., 2009 ; Fortems-Cheiney et al., 2011]

1.3.2.2 L'ammoniac (NH_3)

Une autre molécule qu'on retrouve largement dans les panaches de feux de biomasse est l'ammoniac avec une durée de vie courte de l'ordre de 12 à 36 h [Whitburn et al., 2015] et avec une dépendance importante de la concentration d'ammoniac par rapport au type de biome associé au feu [Whitburn et al., 2017]. L'ammoniac est également émis par des sources industrielles ainsi que par l'agriculture [Van Damme et al., 2018].

1.3.2.3 L'acide nitreux (HONO)

L'acide nitreux est un composé d'importance car il est un précurseur du radical hydroxyle qui contrôle la dégradation de polluants/gaz à effet de serre. Il a très récemment été observé par satellite dans les feux d'Australie de 2019/2020, avec de fortes anomalies de concentration le 4 Janvier 2020 [Theys et al., 2020 ; Dufour et al., 2022]. Son temps de vie est de l'ordre de quelques minutes la journée, dû à la photodissociation, ce qui rend sa détection difficile en journée [Sörgel et al., 2011] alors qu'il est estimé à plusieurs heures pendant la nuit. Cependant, Dufour et al. [2022] suggèrent que les anomalies de concentrations observées au-dessus de l'Australie ont été possible en journée grâce à la présence simultanée d'aérosols dans le panache, limitant la photolyse de HONO.

1.3.2.4 Les composés organiques volatils (COVs)

L'acide formique (HCOOH) et l'acide acétique (CH_3COOH) sont les acides carboxyliques les plus abondants dans l'atmosphère [Franco et al., 2020]. HCOOH a pour effet d'acidifier les précipitations [Pommier et al., 2017 ; Zhong et al., 2001]. De plus, sa présence en quantité anormale a été retrouvée dans les feux de biomasse avec IASI en Amazonie, Australie ou encore en Afrique [Pommier et al., 2017].

Après un temps de vie estimé autour de 3–4 jours dans l'atmosphère pour HCOOH [Paulot et al., 2011] et de 1-2 jours pour CH_3COOH [Khan et al., 2018], la destruction de HCOOH et CH_3COOH

dans la troposphère est attribuée principalement à des processus de déposition sèche ou humide ainsi que par des réactions d'oxydations [Chaliyakunnel et al., 2016].

Parmi les COVs les plus abondants dans la troposphère se trouve le méthanol [Jacob et al., 2005]. Il est émis par des sources naturelles telles que les feux de biomasse ainsi que par des sources biogéniques [Razavi et al., 2010]. Dans les feux, il a par exemple été observé depuis l'espace dans l'UTLS dans des panaches issus de feux tropicaux [Dufour et al., 2006]. Sa durée de vie moyenne est estimée à environ 3-6 jours dans la couche limite et 9 jours dans les nuages [Heikes et al., 2002] avec des puits associés au radical OH, au dépôt et à l'absorption par les océans.

On peut également citer l'acétylène (C_2H_2) dont la présence et le transport ont été étudié dans des feux d'Afrique du sud en 2010 [Duflot et al., 2013] mais aussi retrouvé dans des émissions anthropiques avec la combustion de combustibles fossiles [Xiao et al., 2007]. Ce composé est utilisé pour estimer l'âge d'un panache issu de la combustion de biomasses, notamment avec le rapport C_2H_2/CO [Xiao et al., 2007]. Le puit principal de l'acétylène est sa réaction avec le radical hydroxyle (OH) qui serait également lié à la formation de d'aérosols organiques secondaires [Volkamer et al., 2009]. Dans la troposphère son temps de vie est variable selon la saison et la latitude et est estimé en moyenne entre 2 et 4 semaines [Logan et al., 1981].

Un autre COV est l'éthylène (C_2H_4) dont l'origine peut être à la fois anthropique avec les émissions des industries pétrochimiques et du transport routier [Gentner et al., 2013], et naturelle, avec les feux de biomasse [Coheur et al., 2009] et la production biogénique dans les océans [Seifert et al., 1999]. Ce COV a pu être observé avec l'instrument TES à bord du satellite AURA dans des feux boréaux [Dolan et al., 2016] et à bord de IASI [Coheur et al., 2009]. Son temps de vie relativement court dans la troposphère du fait de sa réactivité avec O_3 et OH (14–32 h), il est possible de détecter des sources « points chauds » (hotspot en anglais) de ce COV [Franco et al., 2022], tout comme l'ammoniac [Van Damme et al., 2018].

1.3.2.5 Le cyanure d'hydrogène (HCN)

Le cyanure d'hydrogène est un des espèces à l'état de trace du groupe des cyanures le plus abondant dans l'atmosphère ayant un rôle important dans le cycle de l'azote [Li et al., 2000]. Il est émis principalement par les feux de biomasse. Bien que sa réactivité soit faible dans l'atmosphère,

les mécanismes principaux régissant sa disparition dans l'atmosphère sont la réaction avec les radicaux OH et le dépôt dans les océans [Singh et al., 2003]. On lui attribue un temps de vie estimé autour de 5 mois [Li et al., 2003] et jusqu'à plusieurs années dans la stratosphère [Bruno et al., 2022]. Grâce à son temps de vie relativement long, HCN est un gaz intéressant pour le suivi des panaches de feux [Li et al., 2000].

1.3.2.6 Le furane (C₄H₄O)

Le furane est une molécule précédemment retrouvée dans les feux de biomasse [Clarisse et al., 2011] qui participe à la formation d'ozone en surface ainsi qu'à la formation de particules fines [Jiang et al., 2019]. Les réactions du furane avec OH pendant la journée, et le radical nitrate (NO₃) pendant la nuit, sont les processus majoritaires qui agissent comme des puits de furane et expliquent son temps de vie très court dans l'atmosphère, entre 1 h et plusieurs jours [Newland et al., 2022].

1.4 Les observations satellitaires

L'étude des différents paramètres atmosphériques dans les premières couches atmosphériques, à savoir la troposphère et la stratosphère est primordial pour l'étude du climat, de la composition chimique et de la qualité de l'air. Différentes méthodes de mesure permettent de sonder l'atmosphère. On peut séparer en deux catégories les observations spatiales et les mesures *in situ*.

Il faut noter que les différents types d'observation se complètent, à savoir que les données spatiales demandent notamment d'être validée par les données *in situ*. Cette complémentarité se retrouve aussi dans les capacités inhérentes aux deux types de mesures. En effet, les avantages et inconvénients des différentes méthodes d'observations sont directement liés aux techniques d'observations et aux aspects *in situ* ou spatial. Les observations *in situ* peuvent permettre une haute résolution temporelle dans les cas des stations sol, une haute résolution verticale dans les cas des ballons sondes ou des nacelles ballon instrumentées, mais leur couverture spatiale est limitée. Les données satellitaires ont souvent le désavantage d'une résolution verticale très limitées [Weaver et al., 2019] mais permettent des observations de manière globale (pour les satellites à orbite polaire) ou avec une haute résolution horizontale (satellites géostationnaires).

Il existe deux types de satellites qui se différencient par leur altitude et leur orbite à savoir les satellites à orbite polaires et géostationnaires. Les satellites en orbite polaire héliosynchrone sont situés à une distance d'environ 800 km de la surface terrestre et sont équipés de différents instruments. Ils permettent une couverture globale avec des observations telles que des profils verticaux de température et d'humidité, le suivi de variables liées aux nuages et précipitations, des mesures paramètres de surface (végétation, désert, terre, mer, albédo, émissivité), et le suivi de la composition atmosphérique.

Les satellites géosynchrones (ou géostationnaires) sont situés à 36 000 km autour de la Terre. Ils sont principalement conçus pour observer, avec un échantillonnage spatial fréquent, des variables météorologiques telles que les nuages, la température, l'humidité [Coopmann et al., 2022]. Il est également possible de surveiller la composition chimique de l'air [Lahoz et al., 2012 ; Sowden et al., 2021].

On peut citer deux grandes catégories d'instruments à bord des satellites, qui se distinguent par leur capteurs dits « passifs » ou « actifs ». Les capteurs passifs observent un rayonnement dont ils ne sont pas la source (ex : rayonnement solaire visible, infrarouge, ultraviolet), les capteurs actifs sont capables d'émettre un rayonnement (ex : ondes radio, micro-ondes) pour observer leur cible. De manière générale un instrument est caractérisé par un domaine spectral spécifique qui va lui permettre d'être sensible à certains paramètres géophysiques.

Le besoin d'étudier l'atmosphère depuis l'espace est d'abord introduit par le secteur militaire. C'est en 1960 que le premier succès de mise en orbite d'un satellite météorologique permet d'étudier la Terre depuis l'espace avec le satellite météorologique opérationnel TIROS-1 (Television InfraRed Observation Satellite) lancé par la NASA. Malgré sa courte durée de vie de 78 jours [Fiolek, 2011] il servira à prouver que l'observation de données météorologiques depuis l'espace, tel que la couverture nuageuse, est possible. Aujourd'hui plusieurs instruments et série d'instruments présentés dans le tableau 1.4 permettent le sondage du système Terre-Atmosphère en continu depuis plusieurs années et on peut citer certains instruments précurseurs des instruments actuels cités dans le tableau 1.4 comme l'instrument IMG (Interferometric Monitor for Greenhouse gases) lancé à bord de la plateforme ADEOS (ADvanced Earth Observing Satellite) [Kobayashi et al., 1999]

et précurseurs de l'instrument IASI avec pour objectif d'observer la composition chimique de l'atmosphère comme l'ozone [Turquety et al., 2002] et le monoxyde de carbone [Barret et al., 2005]. Par ailleurs, IMG est basé sur le principe de l'interféromètre de Michelson mesurant dans l'infrarouge thermique (TIR) de 3.3 à 14 μm avec une résolution temporelle de 4 jours et des pixels de 12 km de diamètre.

Parmi les sondeurs atmosphériques en vol actuellement on peut citer :

- MOPITT (Measurement Of Pollution In The Troposphere) à bord de Terra permet le suivi de la concentration de monoxyde de carbone en surface [Worden et al., 2010], mais aussi l'analyse des panaches liés aux activités humaines au-dessus des villes [Clerbaux et al., 2008] ou aux causes naturelles comme pendant la mousson asiatique [Kar et al., 2004]. Grâce à ses analyses sur plus de 16 ans d'observations MOPITT a permis d'analyser des tendances de CO au niveau urbain et régional dans plusieurs régions du monde.
- AIRS (Atmospheric Infrared Sounder) à bord AQUA, permet un suivi de paramètres tels que la température de surface [Hulley et al., 2012] ou la restitution de concentration pour certains gaz à l'état de trace telles que SO₂ pour le suivi des éruptions volcaniques [Prata et al., 2007] le CO pour l'étude de la pollution anthropique ainsi que des feux de biomasse [McMillan et al., 2005]. Aussi, il permet la restitution de profils verticaux d'ozone notamment pour l'étude des évènements de trou d'ozone dans la stratosphère [Divakarla et al., 2008].
- Les instruments IASI [Clerbaux et al., 2009] à bord des satellites Metop peuvent suivre des variables associées aux surfaces mais aussi à l'atmosphère avec un suivi de la température et de la composition atmosphérique. Une section est dédiée à l'instrument IASI/Metop dans le chapitre 2.
- OMI (Ozone Monitoring Instrument) à bord de la plateforme AURA permet la restitution des concentration verticale d'ozone mais aussi la restitution de concentrations de SO₂ pour l'étude de la pollution [Krotkov, 2016] ou NO₂ [Boersma et al., 2006].
- TROPOMI (TROPOspheric Monitoring Instrument) à bord de Sentinel-5 Precursor (S5P) est capable de mesurer différents constituants atmosphériques tels que O₃, NO₂, SO₂, CO, CH₄, CH₂O et les propriétés des aérosols. [Veefkind et al., 2012]

- GOME-2 (Global Ozone Monitoring Experiment) sert au suivi de constituants comme la vapeur d'eau [Noël et al., 2008], l'ozone troposphérique [Miles et al., 2015] pour l'étude la qualité de l'air dans les zones urbaines notamment ainsi que l'ozone stratosphérique pour le suivi de la concentration d'ozone et des trou d'ozone observés dans la région Antarctique [Hao et al., 2014].
- CrIS lancé à bord de NPP & NPOESS [Bloom et al., 2001] permet d'observer les variables de température et humidité atmosphérique [Ma et al., 2014] ainsi que le suivi de polluants comme le PAN ou le NH₃ [Payne et al., 2022 ; Shepherd et al., 2019] gaz à effet de serre tels que le CO₂ [Zhang et al., 2021] ou le CH₄ [Xiong et al., 2013].

La continuité du programme IASI/Metop sera assurée par l'instrument IASI-Nouvelle Génération (IASI-NG) dont la résolution spectrale sera deux fois meilleure que celle de IASI et qui sera lancé à bord des satellites Metop-Seconde Génération (METOP-SG) en 2024 [Crevoisier et al. 2014]. Une autre mission future en orbite géostationnaire est également prévu en 2024 : la mission IRS à bord de MTG (Meteosat Third Generation) dont l'objectif principal est d'améliorer les modèles de prévision météorologiques (température et humidité) [Coopmann et al., 2022] grâce à sa résolution temporelle très fine (toutes les 30 min). Bien que l'instrument MTG-IRS ait une résolution spectrale moindre que celle de IASI, certaines molécules telles que l'ammoniac ne seront pas affectées.

Tableau 1.4 : Liste des instruments satellitaires de sondage atmosphérique actuels et futurs. L'ensemble des satellites présentés dans ce tableau suivent une orbite héliosynchrone sauf MTG qui est en orbite géostationnaire.

<i>Instruments (satellite)</i>	<i>Depuis</i>	<i>Type</i>	<i>Domaine spectral</i>
<i>MODIS (Terra)</i>	<i>1999</i>	<i>Spectroradiomètre</i>	<i>VIS, IR</i>
<i>MOPITT (Terra)</i>	<i>1999</i>	<i>Spectromètre</i>	<i>IR</i>
<i>AIRS (Aqua)</i>	<i>2002</i>	<i>Spectromètre</i>	<i>IR</i>
<i>OMI (Aura)</i>	<i>2004</i>	<i>Spectromètre</i>	<i>UV</i>
<i>IASI (Metop-A, -B et -C)</i>	<i>2006, 2012, 2018</i>	<i>Interféromètre</i>	<i>IR</i>
<i>GOME-2 (Metop-A, -B et -C)</i>	<i>2006, 2012, 2018</i>	<i>Spectromètre</i>	<i>UV, VIS</i>
<i>CrIS (NPP & NPOESS)</i>	<i>2006</i>	<i>Interféromètre</i>	<i>IR</i>
<i>TROPOMI (Sentinel-5P)</i>	<i>2017</i>	<i>Spectromètre</i>	<i>UV, VIS, NIR</i>
<i>IASI-NG (Metop-SG)</i>	<i>2024</i>	<i>Interféromètre</i>	<i>IR</i>
<i>IRS (MTG)</i>	<i>2024</i>	<i>Interféromètre</i>	<i>IR</i>

1.5 Motivations de la thèse

Avec le développement des activités humaines, l'impact des événements extrêmes tels que les feux, les épisodes de pollution urbaine augmentent significativement. Ces extrêmes ayant un impact économique, sociétal et sanitaire, il est donc primordial de surveiller ces événements qui impactent la composition atmosphérique.

Les observations in-situ sont aujourd'hui éparses et les stations de mesures ne permettent pas un suivi des différents composants de l'atmosphère tout autour du globe. Les données satellitaires permettent aujourd'hui de suivre de façon globale et en quasi-temps réel la composition chimique de l'atmosphère. La mission IASI/Metop permet d'apporter des données météorologiques importantes pour alimenter les modèles utilisés par Météo France [Bouyssel et al., 2022] mais peut aussi être majeure en matière de protection des populations (santé, transport aérien) de par sa capacité à observer une multitude d'espèces potentiellement dangereuses pour l'homme dans l'atmosphère. Sa surveillance constante de l'atmosphère en fait un outil de contrôle efficace dans l'espace et dans le temps. Les observations IASI produisent plusieurs millions d'observations par

jour reçues par les stations sol en quasi temps réel, lesquelles sont traitées à des échelles de temps différentes selon les variables d'intérêts. Certaines espèces telles que CO, SO₂, O₃ et HCOOH sont disponibles en quasi-temps réel via le pôle de données AERIS (<https://iasi.aeris-data.fr>).

Cependant la quantité sans précédent des données IASI ainsi que sa continuité dans les prochaines décennies (avec IASI-NG/Metop-SG ou encore MTG-IRS) requiert de développer des nouvelles méthodes de traitement des données, pour avoir un accès rapide aux potentielles anomalies dans la composition atmosphérique. Les questions scientifiques qui se posent sont :

- Comment mieux exploiter les données satellitaires pour détecter des événements d'intérêt ?
- Comment mieux exploiter la capacité opérationnelle des données satellitaires pour la détection en temps réel d'événements ciblés ?
- Est-il possible de catégoriser les événements (par exemple feux de brousse, de forêt, de tourbe, etc.) à partir de l'utilisation directe des luminance IASI ?

De récents travaux ont proposé appliquer l'analyse en composantes principales (ACP) sur les luminance IASI pour la détection d'espèces chimiques à l'état de traces dans l'atmosphère [Atkinson et al., 2010]. Cependant la valeur ajoutée de cette approche pour la détection, le suivi et l'analyse des événements atmosphériques extrêmes tels que les feux, les éruptions volcaniques, les épisodes de pollution anthropique, par rapport aux produits IASI de niveau 2 (L2) existants et disponibles de manière opérationnelle, n'a pas encore été démontrée.

Dans ce contexte, l'objectif de mes travaux de thèse est de développer un outil innovant d'exploitation en quasi temps réel des données IASI de niveau 1 (spectres de luminance) pour la détection d'évènements exceptionnels, qui s'appuie sur la méthode ACP. Une étape essentielle est la validation de cet outil qui est réalisée à l'aide des données IASI de niveau 2 (concentrations). Il est également intéressant d'appliquer la méthode sur la période entière des données IASI pour générer une archive d'évènements extrêmes d'éruptions volcaniques ou encore d'épisodes de feux. Il sera alors possible d'avoir des informations notamment sur leurs fréquences et leurs intensités, et de mieux comprendre leurs impacts sur la composition atmosphérique et plus généralement le climat.

Dans ce manuscrit, le chapitre 2 présente les principes du sondage atmosphérique par satellite. J'introduis quelques notions sur la spectroscopie infrarouge et le transfert radiatif. La méthode ACP développée au cours de cette thèse s'appuie sur une caractérisation spectrale des espèces chimiques. Dans ce contexte, le code de transfert radiatif Atmosphit et la base de données spectroscopique HITRAN ont été utilisés. La dernière partie du chapitre 2 est dédiée à la description des observations IASI utilisées au cours de ces travaux de thèse. Le chapitre 3 introduit le principe de base de la méthode ACP développée par EUMETSAT ainsi que ses applications telles que l'assimilation de paramètres géophysiques dans les modèles météorologiques. Dans le cadre d'un projet CNES initié à EUMETSAT pour l'assimilation de données ou encore la détection d'événements extrêmes, la méthode ACP EUMETSAT a été reprise et testée par SPASCIA et HYGEOS pour la détection d'événements extrêmes dans le but de permettre une caractérisation rapide des molécules détectées dans un événement particulier à partir des radiances IASI compressées et reconstruites. Nous nous intéresserons à montrer les avantages et les limites de cette méthode et de comprendre comment optimiser les résultats issus de l'ACP. Le chapitre 4 décrit la méthode de détection optimisée développée au cours de cette thèse et prenant en compte les valeurs extrêmes issues de la mauvaise reconstruction des radiances IASI. Les résultats de l'application de cette méthode à différents événements extrêmes passés et documentés (éruptions volcaniques, épisodes de feux et de pollution anthropique) ainsi qu'à la série temporelle IASI-B sont présentés dans les chapitres 5, 6 et 7 respectivement pour l'étude des éruptions volcaniques et feux. Nous verrons aussi que certaines sources moins exceptionnelles d'origine anthropique (industries, pollution) pour des molécules spécifiques sont détectables à partir des résultats d'analyse ACP. Le chapitre 8 présente les conclusions et les perspectives de ce travail.

Chapitre 2

2 Le sondage atmosphérique par satellite

2.1 Pourquoi étudier l'infrarouge

Le domaine infrarouge est particulièrement intéressant pour l'étude des gaz à effet de serre qui par définition ont la capacité d'absorber les photons du rayonnement infrarouge, responsable du piégeage de ce rayonnement dans le système Terre-Atmosphère et donc de l'augmentation de la température en surface.

Les composants de l'atmosphère tels que la vapeur d'eau, le méthane, le dioxyde de carbone, l'oxyde nitreux, l'ozone ou encore les halocarbures, ont une action d'absorption du rayonnement infrarouge et vont réémettre dans toutes les directions, dont vers la surface de la planète. Grâce au spectre d'absorption dans l'infrarouge, on peut observer les signatures de ces différentes molécules. Pour les domaines spectraux d'absorption de la vapeur d'eau et du dioxyde de carbone on va observer une absorption presque totale autour de 5-8 μm (1250-2000 cm^{-1}) et pour des longueurs d'ondes supérieures à 16 μm (625 cm^{-1}) pour H_2O et autour de 4-5 μm (2000-2500 cm^{-1}) et 12-15 μm (666-833 cm^{-1}) pour CO_2 . La figure 2.1 illustre un exemple de spectre IASI ainsi que la contribution à l'absorption dans l'infrarouge de différentes espèces peu variables dans l'atmosphère. L'absorption de la vapeur d'eau est illustrée au milieu, tandis que les absorptions de CO_2 ou CH_4 sont illustrées en bas. Il existe un domaine spectral appelé fenêtre atmosphérique représenté en pointillée, qui est relativement transparent au rayonnement infrarouge autour de 8-12 μm (833-1250 cm^{-1}) et d'autres domaines pour lesquels l'absorption est presque totale. On qualifie alors cette absorption de saturée.

En dehors de la fenêtre atmosphérique les gaz à effet de serre absorbent l'ensemble du rayonnement infrarouge et le renvoient dans toutes les directions, or l'augmentation de la concentration des gaz à effet de serre va avoir pour conséquence l'augmentation de l'absorptivité

de l'atmosphère, dans les régions spectrales non saturées. Une augmentation de l'absorptivité va entraîner une augmentation de l'émission du rayonnement infrarouge dans toutes les directions et donc vers la surface, entraînant alors un réchauffement de la Terre.

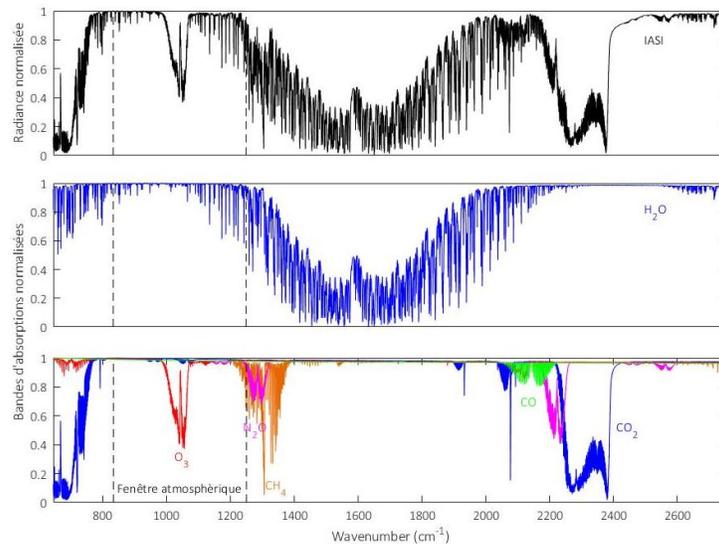


Figure 2.1 : Spectre IASI (en haut), transmittances simulées avec ATMOSPHT en condition US Standard pour illustrer la contribution de H₂O (au milieu) et CO₂, O₃, CH₄, N₂O, et CO.

Dans la section 2.2, nous verrons plus en détails les interactions entre constituants atmosphériques absorbants et le rayonnement infrarouge.

2.2 Le transfert radiatif dans l'infrarouge thermique

2.2.1 Émission du rayonnement

Un rayonnement peut être absorbé, transmis ou réfléchi, respectivement selon les phénomènes d'absorbance α , transmittance τ et réflectance ρ . On trouve pour chaque nombre d'onde λ^{-1} ou $\tilde{\nu}$ l'équation suivante :

$$\alpha_{\nu} + \tau_{\nu} + \rho_{\nu} = 1 \quad (2.1)$$

Lorsque $\alpha_{\nu} = 1$ (pour la variable spectrale ν) le milieu (gazeux comme l'atmosphère) ou l'objet (comme la surface) absorbe toute l'énergie et se comporte comme un corps noir qui absorbe toute l'énergie qu'il reçoit sans la transmettre ou la réfléchir. Pour un corps noir véritable $\alpha_{\nu} = 1$ pour

toutes les valeurs de la variable spectrale et la luminance énergétique d'un corps noir de température T pour la longueur d'onde $\lambda=c/v$ est décrite par la loi de Planck (Eq 2.2) :

$$B(\lambda, T) = \frac{2hc^2}{\lambda^5} \frac{1}{e^{\frac{hc}{kT\lambda}} - 1} \quad (2.2)$$

On note $h = 6.62607015 \times 10^{-34}$ J.s la constante de Planck, $c = 299792458$ m.s⁻¹, la vitesse de la lumière dans le vide, λ la longueur d'onde en m, $k = 1.380649 \times 10^{-23}$ J.K⁻¹, la constante de Boltzmann, T la température en K. En appliquant la loi de Planck selon deux températures de corps noir de 288 K (une température typique de la basse troposphère) et 5778 K (la température effective de la photosphère solaire si on souhaite la représenter approximativement par celle d'un corps noir) on obtient alors les deux spectres de luminance de la figure 2.2.

On observe que le soleil va émettre un rayonnement électromagnétique couvrant un large domaine spectral (entre 0.2 et 4 μm) avec un maximum de luminance centré dans le domaine du visible entre 0.4 et 0.8 μm . Le soleil va émettre de l'énergie principalement dans le domaine des longueurs d'onde du visible avec un pic observé autour de 0.5 μm .

En outre, selon la loi de Planck, plus la température d'un corps noir est faible, plus le corps noir va émettre un rayonnement dont le spectre sera centré dans un domaine spectral de grandes longueurs d'onde. Dans le cas de l'étude du système Terre-Atmosphère, l'intérêt d'étudier le domaine de longueur d'onde de l'infrarouge est donc expliqué par le fait que la Terre (à une température est de 288 K) rayonne principalement dans l'infrarouge thermique. Le système Terre-Atmosphère peut donc être considéré (au sommet de l'atmosphère) et de façon approximative comme source de rayonnement infrarouge avec un pic d'émission autour de 10 μm soit autour de 1000 cm⁻¹.

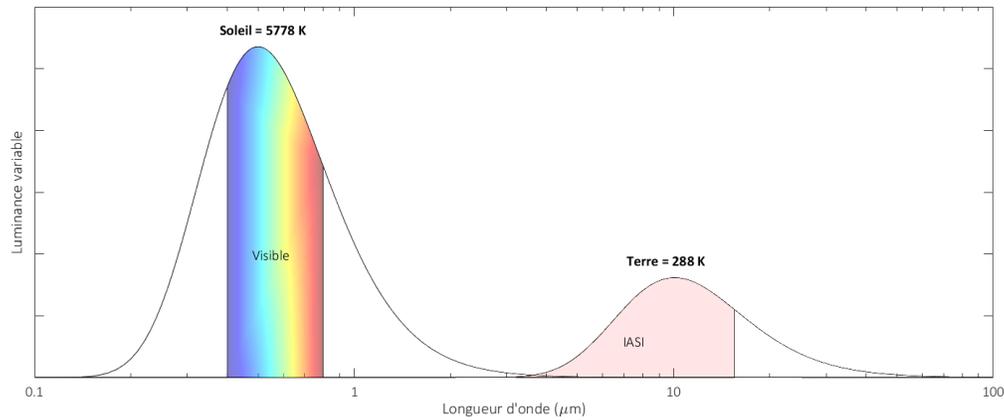


Figure 2.2 : Rayonnement de corps noir correspondant à des objets de 288 et 5778 K. Le rayonnement dans le visible est représenté par le domaine en arc en ciel, le domaine infrarouge de IASI est représenté en rose.

Une autre façon de décrire un spectre de luminance est d'utiliser la température de brillance. La température de brillance $T_B(\lambda)$ pour une luminance $I(\lambda)$ à la longueur d'onde λ est définie par la fonction inverse de la fonction de Planck comme :

$$T_B(\lambda) = \frac{hc}{k\lambda} \ln^{-1}\left(1 + \frac{2hc^2}{\lambda^5 I(\lambda)}\right) \quad (2.3)$$

On vérifie l'identité de $T_B(\lambda) = T$ (pour toutes les valeurs de λ) quand on remplace dans Eq (2.3) la valeur $I(\lambda)$ par $B(\lambda, T)$. Mais la luminance atmosphérique $I(\lambda)$ n'est pas en général celle d'un corps noir sauf dans les régions complètement saturées du spectre électromagnétique.

Une interprétation de la température de brillance $T_B(\lambda)$ permet d'estimer la température locale du milieu observé (depuis l'espace pour le système Terre-Atmosphère) si pour la longueur d'onde λ on constate une transmittance (ou épaisseur optique) τ égale à 1 :

$$T_B(\lambda) \approx T[\tau(\lambda) = 1] \quad (2.4)$$

Cependant cette interprétation n'est possible que dans les hypothèses suivantes:

- La diffusion est égale à 0.
- L'atmosphère est en équilibre hydrostatique et isotherme avec une courbure planétaire négligée.
- L'absorbant principal à la longueur d'onde λ est uniformément mélangé et sa section efficace est indépendante de la pression.

2.2.2 L'équation du transfert radiatif et le modèle direct

Le transfert radiatif est le domaine physique s'intéressant à l'interaction entre le rayonnement électromagnétique et la matière (milieu gazeux, solide ou liquide). On peut noter que l'équation de transfert radiatif a pour objectif de rendre compte, dans un élément de volume cylindrique d'intérêt de surface dS et de longueur ds , dans une direction \vec{S} donnée et tout au long du trajet du spectre lumineux, des phénomènes liés à l'interaction d'un rayonnement, dans un domaine spectral (exemple : le visible) donné, avec le milieu (ici le milieu atmosphérique est considéré comme hétérogène). On s'intéressera aux luminances d'entrée et de sortie notées respectivement $L_{\vec{v}}(s)$ et $L_{\vec{v}}(s + ds)$.

Dans l'équation de transfert radiatif on observe que le rayonnement est décrit par trois processus (figure 2.3) que sont :

L'extinction (terme $dL_{\vec{v}}^{ext}$) qui est due à l'absorption ou à la diffusion du rayonnement dans d'autres directions. L'extinction est toujours négative et sera proportionnelle à la densité de molécules absorbantes ou de particules diffusantes. On notera la fraction transmise à la sortie du cylindre :

$$L_{\vec{v}}(s) + dL_{\vec{v}}^{ext}(s) \text{ Avec } dL_{\vec{v}}^{ext}(s) = -\alpha_{\vec{v}}^{ext} L_{\vec{v}}(s) ds < 0 \quad (2.5)$$

Où $\alpha_{\vec{v}}^{ext} = \alpha_{\vec{v}}^{abs} + \alpha_{\vec{v}}^{dif}$ la somme des coefficients d'absorption et de diffusion.

La diffusion (terme $dL_{\vec{v}}^{dif}$) qui prend en compte la diffusion qui augmente la luminance sortante) qui peut être à la fois une source ou un puit de rayonnement.

L'émission (terme $dL_{\vec{v}}^{emi}$). Le rayonnement émis, supposé en équilibre thermodynamique, est proportionnel au rayonnement du corps noir.

$$dL_{\vec{v}}^{emi}(s) = \alpha_{\vec{v}}^{abs} J_{\vec{v}}(s) ds \quad (2.6)$$

Où $J_{\vec{v}}$ est la fonction source traduisant le phénomène d'émission.

Le terme de diffusion peut donc être positif ou négatif. Le terme lié à l'émission sera toujours positif et sera caractérisé par un coefficient d'émission et le terme lié à l'extinction toujours négatif.

Finalement, la luminance en sortie du volume s'écrira :

$$L_{\bar{\nu}}(s + ds) = L_{\bar{\nu}}(s) + dL_{\bar{\nu}}^{ext}(s) + dL_{\bar{\nu}}^{dif}(s) + dL_{\bar{\nu}}^{emi}(s) \quad (2.7)$$

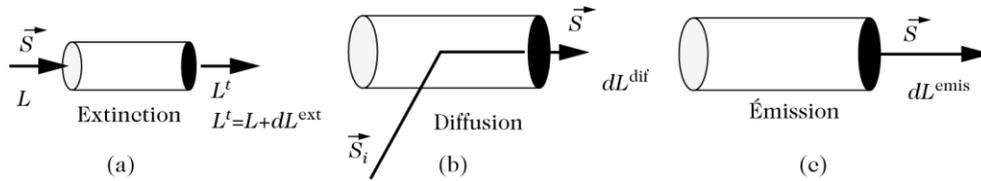


Figure 2.3 : Les trois processus radiatifs décrivant le rayonnement atmosphérique. D'après Delmas, [2005]

Dans le cas d'une observation IASI (visée au nadir) on considère que le rayonnement infrarouge est essentiellement émis par la surface de la Terre et que la contribution du rayonnement solaire, qui n'émet presque pas dans ce domaine de longueur d'onde (voir figure 2.2). De plus, le processus de diffusion peut être considéré comme négligeable pour le rayonnement infrarouge. Avec ces approximations on peut considérer que les processus d'intérêt liés au domaine infrarouge dans ce cas d'étude seront principalement : l'émission du rayonnement infrarouge par la surface terrestre, et l'émission et absorption par les différentes couches atmosphériques. La figure 2.4 illustre une observation spatiale en visée nadir.

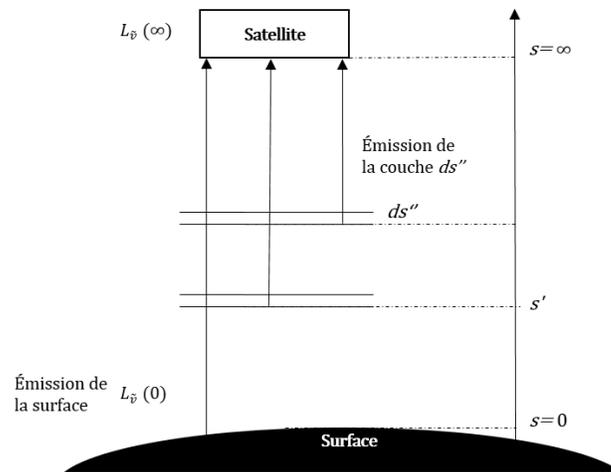


Figure 2.4 : Illustration d'une observation dans l'infrarouge depuis l'espace en visée au nadir. Les couches atmosphériques schématisent la présence de molécules absorbantes dans l'atmosphère. L'atmosphère est considérée plan-parallèle. D'après Boynard [2009].

On peut écrire la forme locale de l'équation de transfert radiatif de la sorte :

$$\frac{\partial L_{\tilde{\nu}}(s)}{\partial s}(s) = -\alpha_{\tilde{\nu}}^{abs}(L_{\tilde{\nu}}(s) - J_{\tilde{\nu}}(s)) \quad (2.8)$$

Dans la troposphère et la basse stratosphère, on considère que l'équilibre thermodynamique est atteint, on a une fonction source identique à la fonction de Planck à la Température T du milieu.

On peut noter :

$$J_{\tilde{\nu}} = B_{\tilde{\nu}}(T) \quad (2.9)$$

L'équation du transfert radiatif s'écrit alors sous sa forme intégrée et décrit la luminance au sondeur :

$$L_{\tilde{\nu}}(s) = L_{\tilde{\nu}}(0)\exp(-\tau_{\tilde{\nu}}(s, 0)) + \int_0^s B_{\tilde{\nu}}(T_{s'}) \exp(-\tau_{\tilde{\nu}}(s, s'))\alpha_{\tilde{\nu}}^{abs}(s')ds' \quad (2.10)$$

Avec $\tau_{\tilde{\nu}}(s, s')$ l'épaisseur optique entre s et s' . On peut noter cette épaisseur optique de la façon suivante :

$$\tau_{\tilde{\nu}}(s, s') = \int_{s'}^s \alpha_{\tilde{\nu}}^{abs}(s'')ds'' \quad (2.11)$$

Dans l'équation 2.10, le premier terme traduit la propagation dans le milieu du rayonnement incident (au point $s = 0$). Par la suite des processus d'extinction (absorption) le faisceau est atténué par un facteur de transmittance $Tr_{\tilde{\nu}}$ (la transmittance du milieu de 0 à s) tel que :

$$Tr_{\tilde{\nu}}(s, 0) = \exp(-\tau_{\tilde{\nu}}(s, 0)) \quad (2.12)$$

Le second terme traduit la contribution à l'intensité au point s de toutes les couches élémentaires situées entre 0 (la surface) et s . L'émission d'une couche d'épaisseur ds' est atténuée d'un facteur $Tr_{\tilde{\nu}}(s, s')$ qui donne l'absorption en s' et s de la luminance émise en s' :

$$Tr_{\tilde{\nu}}(s, s') = \exp(-\tau_{\tilde{\nu}}(s, s')) \quad (2.13)$$

En dérivant par rapport à s et s' l'expression générale de la transmittance :

$$Tr_{\tilde{\nu}}(s, s') = \exp(-\int_{s'}^s \alpha_{\tilde{\nu}}(s'')ds'') \quad (2.14)$$

On obtient :

$$\frac{dTr_{\tilde{\nu}}(s,s')}{ds} = -\alpha_{\tilde{\nu}}^{abs} Tr_{\tilde{\nu}}(s,s') \quad (2.15)$$

$$\frac{\partial Tr_{\tilde{\nu}}(s,s')}{\partial s'} = \alpha_{\tilde{\nu}}^{abs} Tr_{\tilde{\nu}}(s,s') \quad (2.16)$$

La forme intégrée de l'équation du transfert radiatif pour un rayonnement infrarouge émis par la surface terrestre ($s = 0$) vers le haut de l'atmosphère en s peut alors s'écrire :

$$L_{\tilde{\nu}}(s) = L_{\tilde{\nu}}(0)Tr_{\tilde{\nu}}(s,0) + \int_0^s B_{\tilde{\nu}}(T_{s'}) \frac{\partial Tr_{\tilde{\nu}}(s,s')}{\partial s'} ds' \quad (2.17)$$

L'équation du transfert radiatif a une validité générale couvrant les cas où les phénomènes d'émission et d'absorption doivent être simultanément considérés. Cependant, selon le domaine spectral et la géométrie utilisés il est possible que le premier ou le second des deux termes de l'équation soit prépondérant. Dans le premier cas, on parlera de phénomène d'absorption, dans le second cas de phénomène d'émission.

En supposant que la contribution de la surface de la Terre au rayonnement mesuré est négligeable par rapport à celle de l'atmosphère [Rodgers, 2000] (cas d'émission) et en considérant que le sommet de l'atmosphère est à l'infini, on peut négliger le premier terme de l'équation 2.17 et noter:

$$L_{\tilde{\nu}}(s = \infty) = \int_0^s B_{\tilde{\nu}}(T_{s'}) \frac{\partial Tr_{\tilde{\nu}}(s,s')}{\partial s'} ds' \quad (2.18)$$

Cette équation (2.18) montre que la luminance dépend d'un premier terme décrivant la distribution verticale de la température et d'un deuxième terme décrivant la distribution verticale des constituants atmosphériques. En connaissant le profil vertical de concentration d'un constituant atmosphérique on peut en principe déterminer le profil vertical de température, et inversement.

2.2.3 Interaction rayonnement-matière

L'absorption d'un photon par un constituant dans l'atmosphère a lieu si l'énergie du photon correspond à l'écart entre deux niveaux d'énergie de ce constituant. Le processus d'absorption va faire passer une molécule de son état fondamental à son état excité. Dans l'atmosphère terrestre, les photons du domaine spectral du visible sont peu ou pas absorbés (légère absorption par

l'ozone), dans ce domaine spectral les molécules vont changer de configuration électronique. Un constituant sera "transparent" à tous les autres photons dont l'énergie ne correspondent pas à cet écart spécifique entre deux niveaux d'énergie de la molécule, et il n'y aura pas d'interaction entre elle et ce photon. Dans l'UV-visible on observe des transitions entre niveaux d'énergie électronique. Dans le domaine UV on trouve certaines molécules absorbantes et d'autres molécules qui sont dissociées par les UV. Dans le cas d'une **dissociation** on utilise la notion de section efficace de photodissociation. Dans les micro-ondes on va parler de spectre de **rotation** (ou même de rotation pure). Dans l'infrarouge on considère que les processus radiatifs qui décrivent le rayonnement sont l'émission et l'absorption puisque la diffusion est considérée comme négligeable. Ces processus sont dus aux constituants atmosphériques tout le long du trajet traversé par le rayonnement. Nous allons donc nous intéresser aux interactions entre les différents constituants qui peuvent absorber le rayonnement infrarouge. Dans l'infrarouge l'absorption des photons est due à une transition depuis un état rotationnel de l'état vibrationnel fondamental vers un rotationnel d'un niveau vibrationnel excité de la molécule. On reste dans le même état électronique et on parle alors de transition de **vibration-rotation**. Les états de **vibration** et les niveaux de **rotation** associés dépendent de la molécule étudiée. Pour une même molécule, on pourra observer plusieurs bandes d'absorption selon la structure de ses niveaux vibro-rotationnels.

L'énergie interne d'une molécule dans l'atmosphère est caractérisée par son énergie cinétique E_c due à l'agitation thermique [Delmas, 2005], son énergie électronique associée au mouvement des électrons E_e , son énergie de vibration E_v qui correspond à la vibration des noyaux autour de leur position d'équilibre, et son énergie de rotation E_r , qui correspond à la rotation de la molécule autour de son centre de masse de sorte que :

$$E = E_c + E_e + E_v + E_r \quad (2.19)$$

On ne va considérer, en première approximation que les 3 derniers termes. Ces termes dépendent de la molécule d'intérêt et l'énergie du photon émis ou absorbé est déterminée par l'écart d'énergie entre le niveau inférieur et le niveau supérieur de la molécule entre lesquels se fait la transition. Cette énergie est liée à la longueur d'onde du photon absorbé. On va alors noter l'écart d'énergie entre l'état fondamental et l'état excité d'une molécule :

$$\Delta E = \Delta E_e + \Delta E_v + \Delta E_r = h/\lambda \quad (2.20)$$

Avec $\lambda = \frac{1}{\tilde{\nu}}$ et $\tilde{\nu}$ le nombre d'onde.

On a donc, selon le domaine spectral étudié, différents types de spectres :

- Dans le domaine du visible et de l'UV on observe principalement des spectres électroniques.
- Dans le domaine infrarouge, avec $\Delta E_e = 0$, on observe des spectres de vibration-rotation.
- Dans le domaine des micro-ondes on observe des spectres de rotation.

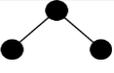
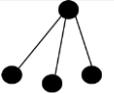
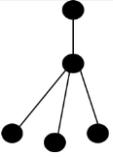
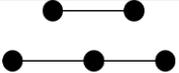
Lorsqu'il est dans un état excité, un constituant retourne spontanément (au bout d'un certain temps) à son état électronique ou vibrationnel fondamental et la population des états rotationnels de cet état suit la loi de Boltzmann pour la température cinétique du milieu. D'après la loi de Kirchhoff cette désexcitation va émettre un photon d'une énergie égale à l'écart d'énergie entre le niveau excité et l'état fondamental, ce qui explique les signatures spectrales en émission ou en absorption.

Dans le cadre de cette thèse, nous nous intéresserons aux spectres infrarouges, domaine dans lequel la mission IASI/Metop mesure, et particulièrement aux interactions entre les molécules atmosphériques et les photons dans l'infrarouge.

2.2.4 Famille de molécules et absorption

Il existe différents types d'atomes ou de molécules. Les constituants les plus simples sont les atomes de gaz rares. Parmi les molécules qui nous intéressent plus particulièrement dans le cadre de ce travail, on considère 4 catégories de molécules polyatomiques dont la classification est basée sur des propriétés de symétrie de leur configuration d'équilibre qui détermine l'ellipsoïde d'inertie de la molécule et donc son comportement rotationnel. On distingue alors les toupies (ou rotateurs) asymétriques, les toupies (ou rotateurs) sphériques et les toupies (ou rotateurs) symétriques, et les molécules (ou rotateurs) linéaires (voir tableau 2.1)

Tableau 2.1 : Classification des atomes et molécules atmosphériques selon leur comportement rotationnel.

Types de Atome constituant	Toupies asymétrique (3 moments d'inertie différents)	Toupies symétrique (2 moments d'inertie égaux)	Toupies Sphérique (3 moments d'inertie égaux)	Molécules linéaires (1 axe de symétrie d'ordre infini)
Exemple de molécules	Ar, Ne, He, O H ₂ O, O ₃ , HNO ₃ , NO ₂ , CH ₃ OH, SO ₂ , H ₂ S, C ₂ H ₄	NH ₃	CH ₄ , SF ₆	HCN, OCS, N ₂ O, O ₂ , CO, CO ₂ , C ₂ H ₂
Schéma structurel (pas de spectre de rotation ni de vibration)				

Les molécules diatomiques hétéro-nucléaires et linéaires, comme le monoxyde de carbone, possèdent des spectres de rotation relativement simples. Cependant plus le nombre d'atomes est grand, plus le spectre devient complexe avec des raies qui peuvent plus ou moins se superposer selon les types de transitions. Pour décrire le mouvement de rotation d'une molécule diatomique linéaire telle que CO, on utilise la notation J qui caractérise le nombre quantique de rotation. On dit que lors de l'émission ou l'absorption d'un photon, la transition entre niveaux de rotation implique une variation de J d'une unité. Cette règle de sélection pour les transitions de rotation de type dipolaire électrique s'écrit:

$$\Delta J = J' - J'' = \pm 1 \quad (2.21)$$

Ici J'' indique le niveau d'énergie le plus bas et J' le niveau d'énergie le plus haut. Dans la figure 2.5 on peut observer en haut la simulation de la bande d'absorption $1 \leftarrow 0$ du monoxyde de carbone et en bas la simulation de la bande d'absorption ν_3 du dioxyde de soufre avec Atmosphit, dans une atmosphère standard. Dans un spectre de vibration-rotation, les raies observées sont créées par la transition d'un niveau d'énergie à un autre, et on peut observer la branche P due à des transitions avec $\Delta J = -1$ et la branche R due à des transitions avec $\Delta J = +1$, de part et d'autre du centre de bande vers 2142 cm^{-1} dans le cas de CO. La branche Q (lettre entre P et R)

correspond à des transitions pour lesquelles le nombre quantique J reste inchangée tel que $\Delta J = 0$. Une branche Q ne sera visible que pour certaines molécules polyatomiques (voir figure 2.5 en bas). Enfin, la profondeur des raies va dépendre de la distribution des molécules dans les différents niveaux (déterminée par la température du milieu) et de la probabilité de transition entre les deux niveaux d'énergie.

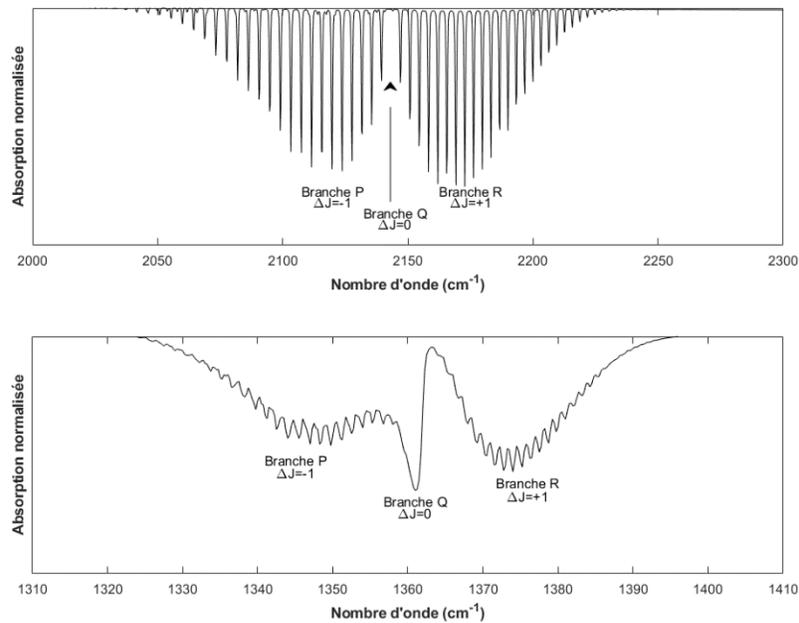


Figure 2.5 : En haut : Spectre d'absorption de la bande ν_1 de monoxyde de carbone dans une atmosphère standard (US Standard) simulé avec Atmosphit. En bas : Spectre d'absorption de la bande ν_3 de dioxyde de soufre dans une atmosphère standard (US Standard) simulé avec Atmosphit.

Dans une molécule on peut définir les distances entre atomes dans la configuration d'équilibre. La mécanique quantique permet de décrire le mouvement des noyaux autour de cette configuration d'équilibre. En ce qui concerne la rotation, on notera que plus J augmente, (plus la fréquence de rotation est élevée dans un langage classique) plus la force centrifuge est importante. Ce phénomène appelé distorsion centrifuge, fait varier la longueur des liaisons entre les atomes et induit une légère augmentation du moment d'inertie qui va se traduire par un resserrement des niveaux d'énergie de rotation. [Herzberg, 1950 ; Hollas 1996, 2002]

Pour d'autres type de molécule non-linéaires, comme les toupies symétriques, les règles de sélection sont modifiées. En résumé, on peut noter que la forme du spectre sera déterminée par

la structure géométrique de la configuration d'équilibre de la molécule et par les nombres quantiques qui décrivent ses états de rotation, de vibration et son état d'excitation électronique.

2.2.5 Profils de raie

La restitution de la température ou de la concentration d'un constituant atmosphérique à partir d'un spectre de luminance nécessite de connaître la position spectrale des raies d'absorption de la molécule mais aussi les autres paramètres tels que l'intensité des raies et leur forme.

La forme d'une raie d'absorption est en théorie un pic de Dirac à un nombre d'onde spécifique cependant dans les observations une raie n'est pas définie selon un seul nombre d'onde précis mais est élargie sur un intervalle spectral.

- Lorentz [1906] a été le premier à calculer l'élargissement et la forme dus aux collisions entre molécules, le profil de Lorentz est encore utilisé largement aujourd'hui pour représenter les largeurs de raies [Mayerhöfer et al., 2019].
- Une autre cause d'élargissement est dû à l'effet Doppler causé par la vitesse d'agitation thermique des molécules absorbant le rayonnement dans l'infrarouge. L'élargissement de la raie sera alors proportionnel à la racine carrée de la température [Delmas, 2005].

Le profil de Lorentz a un effet marqué sur les ailes (bord) de raies tandis que le profil Doppler a un effet marqué sur le sommet de raie. On appelle profil de Voigt une combinaison des profils de type Doppler et Lorentz. Ce profil est utilisé lorsque les élargissements dû à l'agitation thermique et aux collisions entre molécules sont du même ordre de grandeur, ce qui est le cas dans la troposphère.

D'autres paramètres sont à prendre en compte pour la restitution de paramètres géophysiques, en effet, le phénomène moléculaire appelé continuum d'absorption ou d'émission (phénomène qui fait encore l'objet de travaux expérimentaux et théoriques) va directement impacter les luminances infrarouges observées. Il est relatif à la contribution à l'absorption ou à l'émission d'infrarouge de molécules comme H₂O sur l'ensemble du domaine spectral ou dans certaines régions spectrales pour le CO₂ (notamment vers 2400 cm⁻¹). D'après Anisman et al. [2022], le continuum serait dû à deux mécanismes qui ne s'excluent pas mutuellement. En effet il serait causé par la contribution des ailes lointaines des raies les plus intenses due aux collisions ... différent du type Lorentz ainsi que la contribution des dimères de H₂O qui serait caractérisée par un spectre

d'absorption complexe. En première approximation, la forme des ailes lointaine d'une raie intense élargie par les collisions est décrite par un profil non lorentzien.

2.3 Contribution spectrale des molécules

Afin de mieux comprendre les spectres de luminance, l'utilisation de bases de données telles que HITRAN (High-Resolution Transmission molecular absorption database) [Gordon et al., 2017, 2022] et GEISA (Gestion et Etudes des Informations Spectroscopiques Atmosphériques) [Jacquinet-Husson et al., 2016] permet d'accéder aux différents paramètres spectroscopiques de position et d'intensité des raies et les propriétés des aérosols, ou les sections efficaces pour une grande quantité de molécules et leurs isotopes. Une section efficace d'absorption décrit la probabilité d'interaction d'une particule (la molécule d'intérêt) avec le rayonnement (ici un rayonnement infrarouge) et correspond donc à la capacité d'une molécule à absorber un photon infrarouge.

En parallèle de l'utilisation de ces bases données spectroscopiques, j'ai réalisé des simulations de transfert radiatif pour comprendre le comportement des spectres d'absorption (et d'émission) infrarouges selon différentes conditions atmosphériques. Cela m'a servi à analyser la contribution spectrale de certaines molécules, étape essentielle pour le développement de la méthode de détection et la compréhension de ses résultats (cf. chapitre 3).

Pour ce faire j'ai utilisé un code de transfert radiatif: le logiciel Atmosphit [Barret et al., 2005 ; Coheur et al., 2005] développé à l'ULB, avec les paramètres spectraux de molécules issus de HITRAN2012 [Rothman et al., 2013].

2.3.1 Simulations Atmosphit

J'ai utilisé le logiciel Atmosphit afin de comprendre la contribution de différentes espèces dans les spectres infrarouges simulés de IASI. En effet Atmosphit permet de simuler des spectres d'absorption de différentes molécules en prenant en compte plusieurs paramètres liés à l'instrument tels que :

- Les paramètres orbitaux (type de visée et orbite)
- Le domaine spectral et l'échantillonnage instrumental
- Le type de spectre en entrée des simulations (transmittance / luminance)

En entrée, Atmosphit nécessite des paramètres géophysiques liés au système Terre-Atmosphère tels que l'émissivité de surface et les conditions atmosphériques : profils verticaux de température, pression et de gaz. Les simulations sont possibles pour 39 gaz (tableau 2.2) et six différentes conditions d'atmosphères sont disponibles dans Atmosphit.

Tableau 2.2 : Molécules disponibles pour les simulations Atmosphit.

Formule	Espèce		
H_2O	Eau	H_2CO	Méthanal (Formaldéhyde)
CO_2	Dioxyde de Carbone	$HOCl$	Acide Hypochloreux
O_3	Ozone	N_2	Diazote
N_2O	Protoxyde d'Azote	HCN	Cyanure d'Hydrogène
CO	Monoxyde de Carbone	CH_3Cl	Chlorométhane
CH_4	Méthane	H_2O_2	Peroxyde d'Hydrogène
O_2	Dioxygène	C_2H_2	Acétylène
NO	Monoxyde d'Azote	C_2H_6	Éthane
SO_2	Dioxyde de Soufre	PH_3	Phosphine
NO_2	Dioxyde d'Azote	COF_2	Fluorure de Carbonyle
NH_3	Ammoniac	SF_6	Hexafluorure de Soufre
HNO_3	Acide Nitrique	H_2S	Sulfure d'Hydrogène
OH	Hydroxyde	$HCOOH$	Acide Formique
HF	Fluorure d'Hydrogène	HO_2	Hydropéroxyde
HCl	Acide Chlorhydrique	O	Oxygène
HBr	Bromure d'Hydrogène	$ClONO_2$	Chlorine Nitrate
HI	Iodure d'Hydrogène	NO^+	Nitrosonium
ClO	Hypochlorite	$HOBr$	Bromure de Nitrosyle
OCS	Oxysulfure de Carbone	C_2H_4	Éthylène
		CH_3OH	Méthanol

Les profils verticaux de température, pression et de concentrations sont issues de différentes atmosphères représentatives de différentes bandes de latitudes définie sur le tableau 2.3.

Tableau 2.3 Les différents modèles d'atmosphère inclus dans Atmosphit

Modèle d'atmosphère	Intervalle de latitudes
Tropics	Entre -30° et 30°
Midlatitude summer	Entre 30° et 60°
Midlatitude winter	Entre -60° et -30°
Subarctic summer	Entre 60° et 90°
Subarctic winter	Entre -90° et -60°
US standard	Entre -90° et 90°

Un exemple de profils verticaux de température et d’ozone pour les différents modèles d’atmosphère qui servent en entrée d’Atmosphit est illustré sur la figure 2.6. On voit clairement la dépendance de la température avec la latitude : la température de surface est plus élevée aux tropiques (300 K) qu’aux pôles (<260 K) mais diminue plus fortement dans la troposphère. Quant à l’ozone, on observe une plus grande concentration de l’ozone stratosphérique aux basses latitudes, ce qui est dû à l’ensoleillement plus important entraînant une plus forte photochimie. A l’inverse les concentrations d’ozone les plus faibles dans la stratosphère se situent dans les hautes latitudes en hiver, ce qui est lié à l’ensoleillement plus faible. La production d’ozone troposphérique étant lié à la fois à l’ensoleillement et à la présence de précurseurs (NO_x , CO et COV), les concentrations d’ozone seront les plus élevées l’été et aux moyennes latitudes.

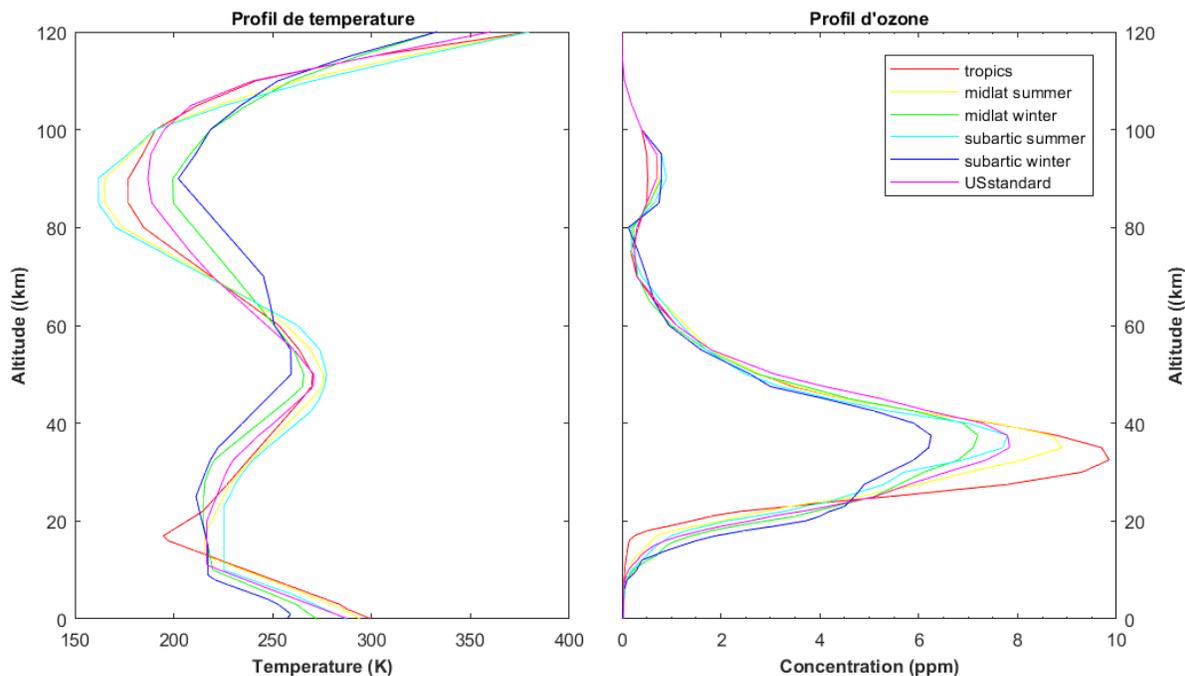


Figure 2.6 : Profils de température (gauche) et de concentration d’ozone (à droite) selon différentes conditions atmosphériques entre la surface et 120 km d’altitude.

La figure 2.7 illustre des simulations de spectres en atmosphère standard pour différentes espèces chimiques à l’état de trace dans l’atmosphère réalisées avec Atmosphit. Ces simulations ont été obtenus en retirant la contribution des autres espèces dans l’atmosphère afin d’isoler la contribution de la molécule d’intérêt.

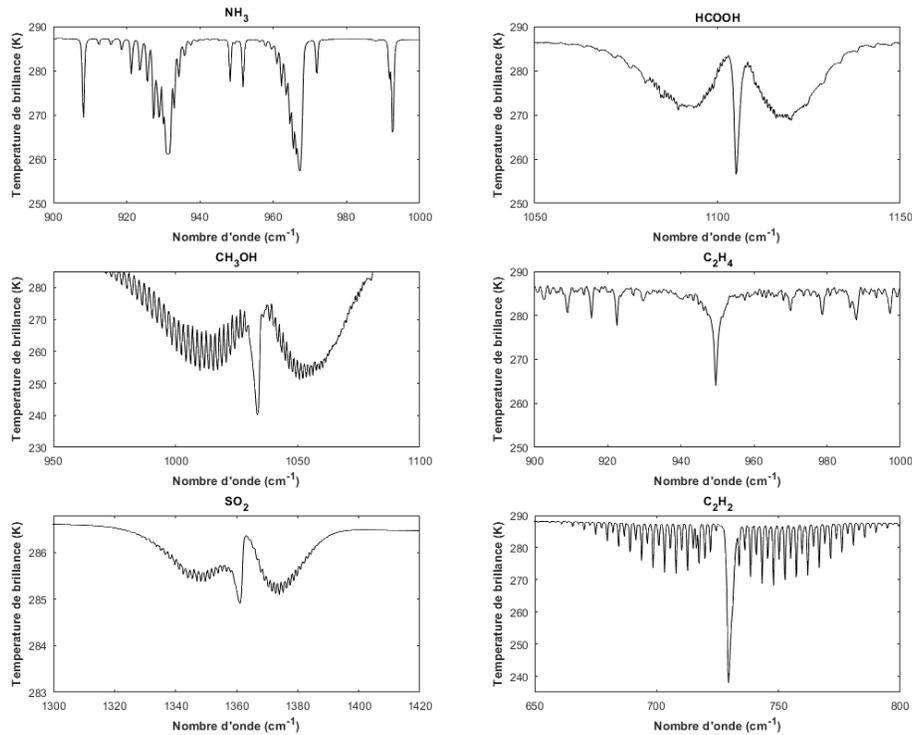


Figure 2.7 : Contribution de différentes espèces chimiques traces en absorption dans l'infrarouge dans une atmosphère standard (US Standard) simulée avec Atmosphit.

Dans le cas d'instruments satellitaires mesurant dans le domaine de l'infrarouge thermique, le contraste thermique est un paramètre critique pour l'observation des basses couches de la troposphère, région directement impactée par les activités anthropiques. Ce paramètre est défini par la différence de température entre la surface et la première couche atmosphérique [Boynard, 2009] et va impacter la sensibilité de mesure de l'instrument IASI (voir figure 2.8). En effet, on peut voir dans Boynard et al. [2014] que le contraste thermique entre la surface et le sommet de la couche limite atmosphérique détermine jusqu'à quel point l'instrument satellitaire peut détecter les constituants émis près de la surface. J'ai réalisé des simulations de TR à partir d'un modèle d'atmosphère standard (US standard) en faisant varier le contraste thermique de -20 K à +20 K. On remarque qu'en cas de contraste thermique nul ou positif (spectres vert, bleu et noir), les spectres sont caractérisés principalement par des raies en absorption. L'intensité de raies augmente avec le contraste thermique. En revanche, en cas de contraste thermique fortement négatif (spectres magenta), le spectre est principalement caractérisé par des raies en émission. Ce type de phénomène est plutôt observé la nuit en hiver, et résulte d'une température de surface plus froide

que la température dans la couche juste au-dessus. Ces conditions sont favorables à la fois à une hauteur de couche limite faible, et d'un fort contraste thermique ce qui a par exemple permis la détection de pollution industrielle au-dessus de la Chine [Boynard et al., 2014]. Ces résultats montrent qu'un contraste thermique élevé (en valeur absolue) permet une plus grande sensibilité de l'instrument au niveau des basses couches de la troposphère.

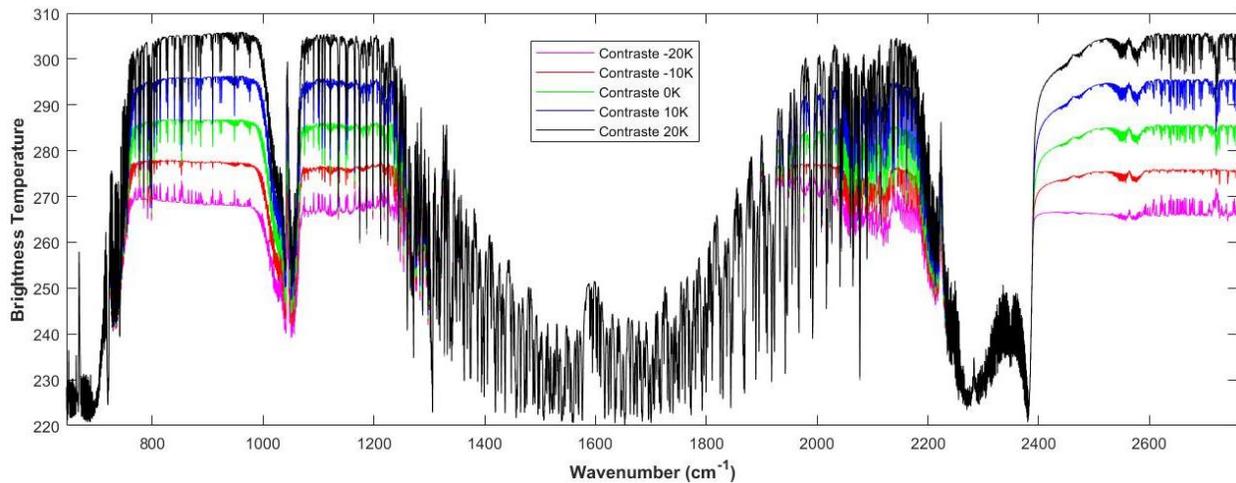


Figure 2.8: Simulations de spectres IASI selon le contraste thermique réalisées en utilisant un profil d'atmosphère standard (US Standard) avec Atmosphit.

De manière générale, pour simuler le spectre d'absorption d'une molécule absorbante dans l'infrarouge, il faut connaître non seulement les paramètres spectroscopiques mais également son profil de concentration dans l'atmosphère. Or dans l'air ambiant, les gaz à l'état de trace à courtes durée de vie (exemple : le C_2H_4) ne sont pas présents, et les profils verticaux de ces espèces ne sont donc pas disponibles dans les climatologies. J'ai dû, pour ces espèces, créer un profil vertical de concentration à partir de celui défini pour une autre espèce et des données retrouvées dans la littérature pour une concentration extrême d'un constituant d'intérêt (tableau 2.4).

Tableau 2.4 : Molécules d'intérêt pour cette étude dont de profil concentration n'est pas disponible dans les climatologies.

Molécules	Sources	Couche atmosphériques	Exemple de concentrations	Bibliographie
COF_2	Anthropique CFCs et HCFCs	Stratosphère principalement	97 ppbv	[Rinsland et al., 1990 ; Harrison , 2014]
SF_6	Anthropique	Haute troposphère et basse stratosphère	9 pptv	[Rinsland et al., 1990, Kovács et al., 2017]
H_2S	Volcans	Troposphère principalement	75 ppbv	[McGee et al., 2001]
$HCOOH$	Feux	Troposphère principalement	109 ppbv	[Trentmann et al., 2005]
$ClONO_2$	Naturelle	Stratosphère	2 ppbv	[Brown et al., 2011 : Von Clarmann et al. 2018]
$HOBr$	Volcans, Feux	Troposphère et stratosphère	26 pptv	[Gutmann et al., 2018 ; Chen et al. 2016]
C_2H_4	Feux	Troposphère principalement	91 ppbv	[Trentmann et al., 2005]
CH_3OH	Feux	Troposphère principalement	86 ppbv	[Trentmann et al., 2005]

Le profil de NH_3 disponible dans les climatologies disponibles dans Atmosphit sera choisi comme base de création des profils non existants des molécules telles que C_2H_4 . En effet, il s'agit aussi d'une molécule émise par les feux, à courte durée de vie (voir tableau 1.2), et présente essentiellement dans la troposphère (voir figure 2.9).

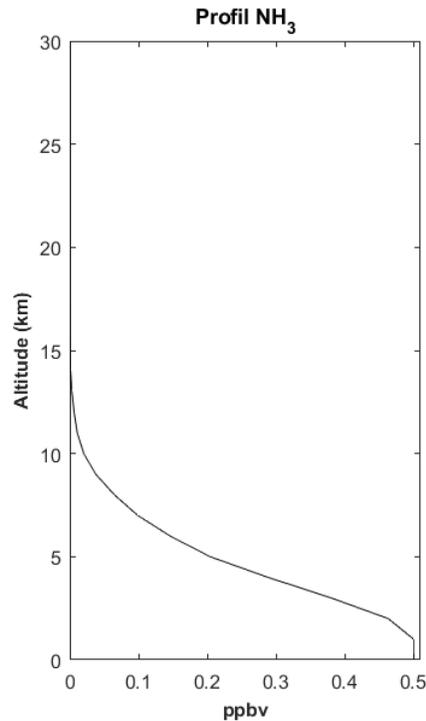


Figure 2.9 : Profil vertical d'ammoniac de 0 à 30 km issu des climatologies disponibles dans Atmosphit

La figure 2.10 illustre des spectres d'absorption de C₂H₄ montrant la contribution de cette molécule autour de 949 cm⁻¹ pour différentes conditions atmosphériques : non polluées, moyennement et très polluées les rapports de mélange de 0.32 ppbv (en vert), 35 ppbv (en bleu) et 91 ppbv (en rouge). Nous observons que les variations de l'absorption dépendent bien de la concentration de C₂H₄ avec une augmentation de l'intensité des pics d'absorption lorsque la concentration augmente. Lorsque la concentration est très faible (en vert), on n'observe pas d'absorption au niveau du pic d'absorption principal autour de 949 cm⁻¹ dans le spectre infrarouge. Lorsque la concentration est plus importante (en bleu) plus on peut observer le pic principal ainsi que l'apparition de pics secondaires autour de 922, 970 et 978 cm⁻¹, que l'on voit d'autant plus pour la simulation de spectre avec la plus forte concentration.

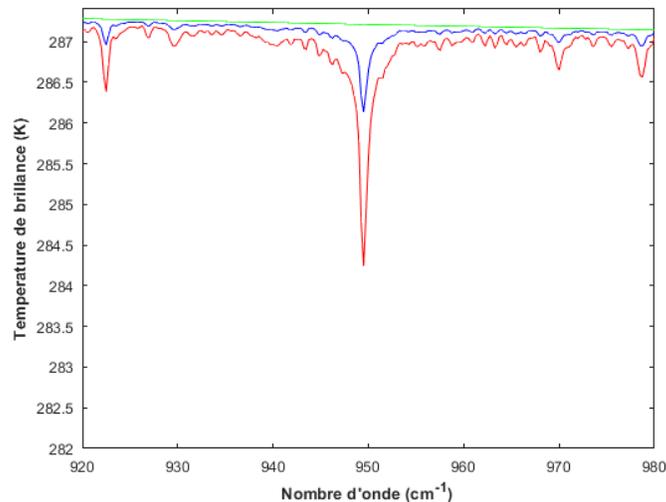


Figure 2.10 : Contribution de C_2H_4 pour différentes conditions atmosphériques avec des rapports de mélange à la surface de 0.32 ppbv (vert), 35 ppbv (bleu) et 91 ppbv (rouge).

L'utilisation d'Atmosphit m'a permis de bien comprendre les contributions spectrales de différentes espèces dans les spectres infrarouges simulés de IASI. Cependant la version actuelle d'Atmosphit est limitée à 39 molécules et ne permet de simuler les spectres d'absorption pour certaines autres molécules. Il existe des bases de données disponibles comprenant les paramètres spectroscopiques de nombreuses molécules, telles que la base de données HITRAN (<https://hitran.org/>) que je présente dans la section suivante.

2.3.2 HITRAN

Une multitude de paramètres spectroscopiques sont disponibles dans la base de données HITRAN. J'ai analysé les contributions spectrales des molécules que l'on peut trouver dans les feux ou dans les panaches émis par les éruptions volcaniques à partir des sections efficaces issues de HITRAN. Cette étape est nécessaire pour définir les canaux d'intérêt utilisés dans l'outil de détection d'événements extrêmes développé au cours de mes travaux de thèse. Dans cette partie, j'analyse les sections efficaces des molécules émises par les volcans et les feux. La présence de ces molécules sera discutée dans les chapitres 5, 6 et 7. Les figures 2.11 et 2.12 illustrent les sections efficaces issues de la base de données spectroscopique HITRAN pour différentes espèces émises respectivement lors d'éruptions volcaniques et de feux. On voit clairement que les molécules n'ont pas toutes la même intensité d'absorption.

2.3.2.1 Sections efficaces des molécules volcaniques

Le principal composé volcanique est le dioxyde de soufre (figure 2.11a) qui absorbe dans trois régions spectrales de l'infrarouge thermique, à savoir :

- La bande ν_1 située dans la région 1100-1200 cm^{-1} avec un maximum d'absorption autour de 1136 cm^{-1} et un autre maximum autour de 1166 cm^{-1} .
- La bande ν_3 , la plus intense, située dans la région 1310-1390 cm^{-1} avec 3 pics d'absorption autour de 1347 cm^{-1} , 1361 cm^{-1} , et 1374 cm^{-1} .
- La bande $\nu_1 + \nu_3$ d'absorption beaucoup plus faible située dans la région 2450-2530 cm^{-1} avec un maximum d'absorption autour de 2512 cm^{-1} .

Comme l'illustre la figure 2.11b, H_2S absorbe dans l'infrarouge entre 1000 et 1500 cm^{-1} et possède une bande de vibration fondamentale ν_2 centrée autour de 1182 cm^{-1} avec un maximum d'absorption autour de 1293 cm^{-1} . On peut noter que cette bande spectrale se situe dans la région spectrale d'absorption du SO_2 avec la bande ν_1 centrée autour de 1136 cm^{-1} et la bande ν_3 centrée autour de 1361 cm^{-1} . Les interférences avec SO_2 peuvent constituer une limite quant à l'observation de la contribution de H_2S à savoir que les bandes d'absorption de SO_2 peuvent rapidement saturer, l'atmosphère alors opaque ne permet plus l'absorption du rayonnement par H_2S . Aussi, la faible intensité de l'absorption de H_2S et les interférences avec la vapeur d'eau rendent la détection de cette molécule difficile dans cette région spectrale. Il reste important de noter que malgré ces difficultés, deux canaux ont été retenus par Clarisse et al. [2011] à 1234.5 et 1234.75 cm^{-1} pour la restitution de H_2S car ils sont situés dans une région spectrale où le SO_2 et la vapeur d'eau n'interfèrent pas avec l'absorption de H_2S .

L'oxysulfure de carbone (OCS) montre son absorption autour de 2062 cm^{-1} dans sa bande fondamentale ν_3 . Cependant, sa contribution autour de 2062 cm^{-1} (cf. figure 2.11c) se trouve dans un domaine d'interbande de IASI dans lequel le bruit instrumental (cf. figure 2.15) est important et interfère avec le CO , sa détection dans les feux peut être difficile à attribuer.

On peut voir trois autres composés caractérisés par des raies bien précises : le chlorure d'hydrogène (HCl) et le bromure d'hydrogène (HBr) absorbant le plus fortement respectivement à 2752 cm^{-1} et 2560 cm^{-1} . Il est à noter, cependant, que les régions d'absorption de HCl et HBr sont

caractérisés par un bruit instrumental élevé, leur détection est donc difficile. D'ailleurs, HBr, faisant partie des principaux halogènes retrouvés dans les panaches volcaniques, n'a encore jamais été détecté par satellite.

L'acide nitrique fait partie des composés émis par les volcans [Mather et al., 2004]. La figure 2.11g montre deux bandes de forte absorption autour de 1325 cm^{-1} et 1725 cm^{-1} et deux plus faibles autour de 763 cm^{-1} et dans la région spectrale $860 - 900\text{ cm}^{-1}$ (bandes d'absorptions ν_5 et $2\nu_9$ du HNO_3). Il est intéressant de noter qu'il existe un produit IASI de niveau 2 permettant d'avoir accès aux concentrations et au profil vertical de HNO_3 [Hurtmans et al., 2012]. La restitution des concentrations de HNO_3 se fait autour de $860 - 900\text{ cm}^{-1}$, région spectrale caractérisée par un bruit radiométrique faible (0.2 K) et se situant dans la « fenêtre atmosphérique » [Ronsmans et al., 2016]. C'est aussi dans cette région spectrale que l'on trouve l'absorption la plus intense de HNO_3 de l'infrarouge thermique associée à une faible interférence avec d'éventuels autres gaz à l'état de trace [Wespes et al., 2009]. La signature spectrale située vers 1325 cm^{-1} n'a pas été retenue pour l'inversion de HNO_3 du fait de la forte présence dans ce domaine de raies de H_2O ou de CH_4 .

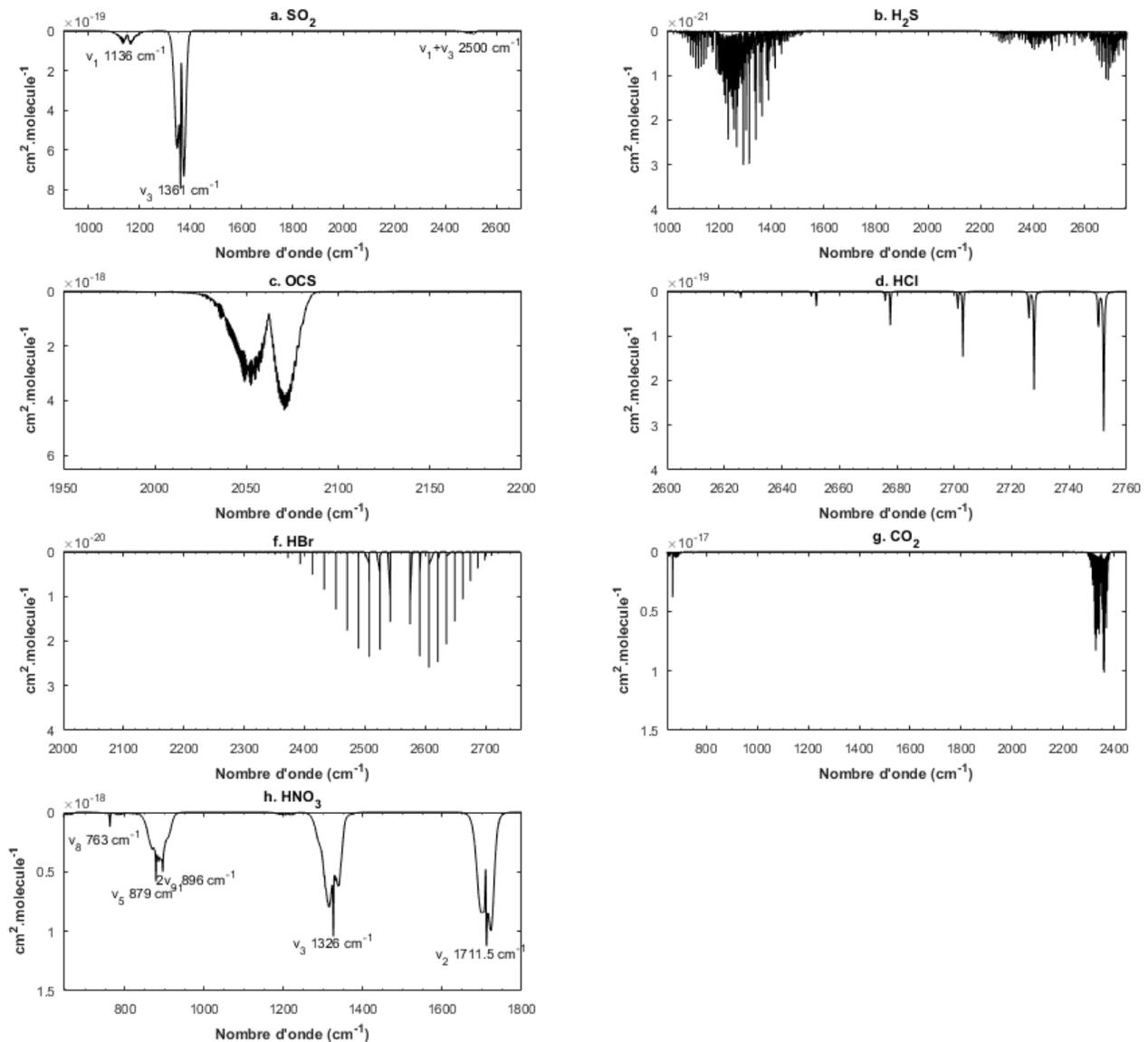


Figure 2.11 : Sections efficaces d'absorption de (a) SO_2 , (b) H_2S , (c) OCS , (d) HCl , (e) HBr , (f) CO_2 et (g) HNO_3 issues de la base de données spectroscopique HITRAN.

2.3.2.2 Sections efficaces des molécules de feux

Le monoxyde de carbone est la molécule principale émise dans les feux de biomasse. Dans l'infrarouge, on trouvera une absorption forte de CO autour de 2050-2200 cm^{-1} comme observé sur la figure 2.12.a.

Avec son faible bruit instrumental dans la région de 950 cm^{-1} (0.2 K autour de 950 cm^{-1} à 280 K) [Clerbaux et al., 2009], IASI arrive à mesurer NH_3 même si les faibles concentrations

atmosphériques conduisent à des absorptions peu intenses. Les sections efficaces d'absorption de l'ammoniac illustrées sur la figure 2.12.b montre un nombre important de raies d'absorption entre 800 et 1200 cm^{-1} .

Plusieurs composés organiques volatils (COV) sont également émis par les feux, en particulier l'acide formique (HCOOH), l'acétylène (C_2H_2) et l'éthylène (C_2H_4) dont les bandes de forte absorption se trouvent respectivement vers 1105, 729.5 et 949 cm^{-1} . L'acide acétique (CH_3COOH) est aussi un COV émis par les feux, et absorbe dans différentes bandes spectrales (voir figure 2.12.i).

Trois autres composés sont émis par les feux : le cyanure d'hydrogène (HCN), le méthanol (CH_3OH) et le furane ($\text{C}_4\text{H}_4\text{O}$), absorbant respectivement autour de 712.5, 1033.5 et 744.5 cm^{-1} . La contribution du furane est caractérisée par un pic à 744.5 cm^{-1} qui est proche mais distinguable de certains pics secondaires caractéristiques de l'absorption de C_2H_2 .

Enfin, on trouve OCS non seulement dans les panaches volcaniques [Belviso et al., 1986] mais également dans les panaches de feux [Stinecipher et al., 2019].

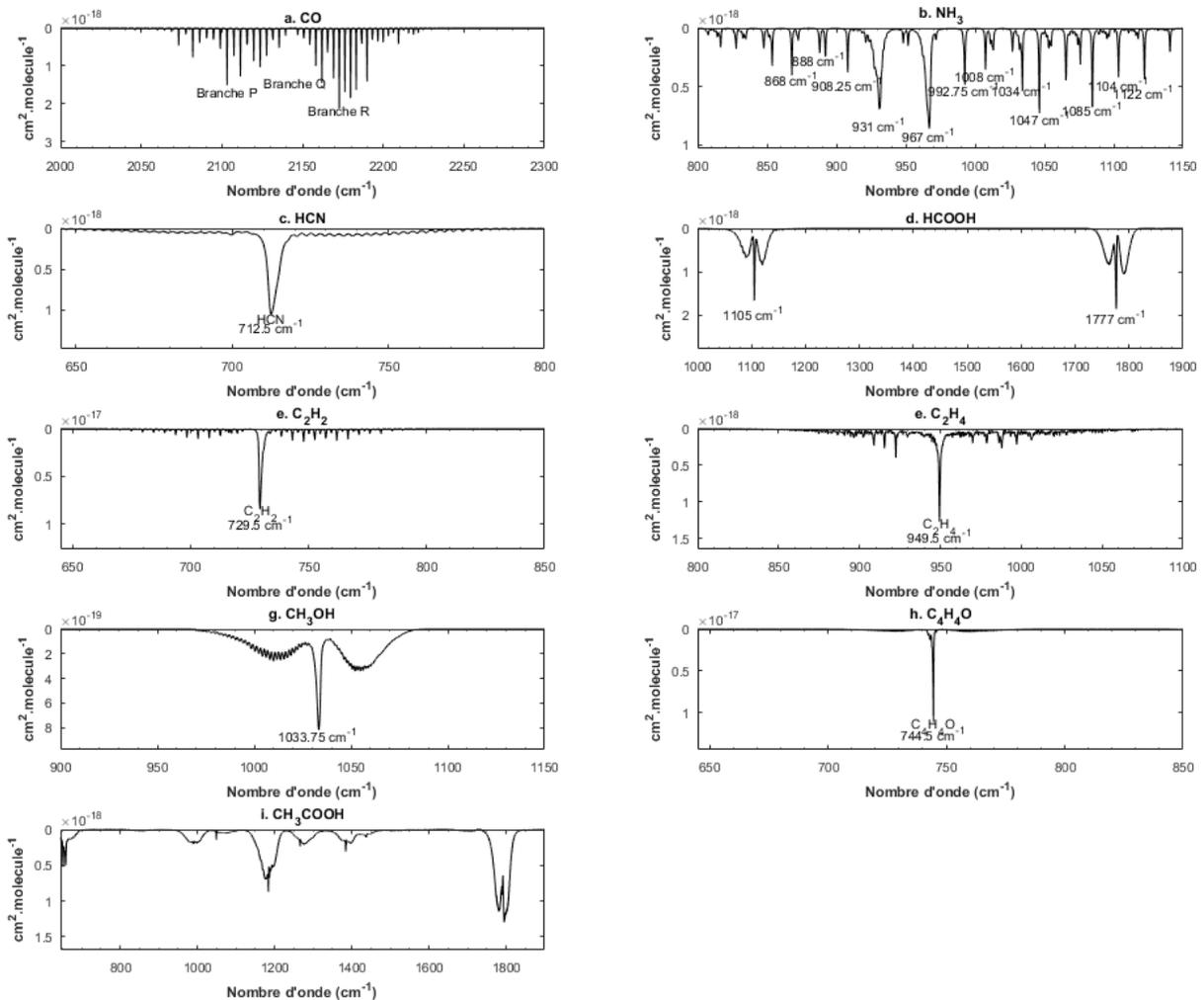


Figure 2.12 : Sections efficaces d'absorption de (a) CO, (b) NH₃, (c) HCN, (d) HCOOH, (e) C₂H₂, (f) C₂H₄, (g) CH₃OH, (h) C₄H₄O et (i) CH₃COOH issues de la base de données spectroscopique HITRAN.

2.4 La mission IASI/Metop

La mission IASI/Metop, développé par le CNES en coopération avec EUMETSAT est en vol depuis plus de 15 ans [Clerbaux et al., 2009]. IASI a été conçu dans le but d'observer la troposphère et la basse stratosphère pour la prévision météorologique opérationnelle et le suivi de la composition atmosphérique et du climat. Les instruments IASI ont été lancé à bord des satellites Metop-A, -B et -C respectivement en 2006, 2012 et 2018. Les trois instruments ont fourni des mesures de façon simultanée et opérationnelle entre décembre 2019 et octobre 2021 correspondant à la fin de vie de IASI-A.

2.4.1 L'interféromètre IASI

Les satellites Metop embarquent chacun un instrument IASI ainsi qu'une douzaine d'instruments dont huit servent à la météorologie. IASI est un spectromètre infrarouge à transformation de Fourier (FTS) utilisant un interféromètre de Michelson. Ce dernier va acquérir des interférogrammes bruts et c'est après un traitement numérique réalisant la transformée de Fourier inverse et la calibration radiométrique que l'on obtient des spectres infrarouges. Sur l'interféromètre de Michelson embarqué dans IASI (voir figure 2.13), les miroirs plats ont été remplacés par des miroirs en coin rétro-réfléchissants qui servent à réduire la sensibilité aux erreurs de positionnement angulaire lors du balayage de la différence de marche (ou chemin optique). L'un des miroirs est mobile tandis que l'autre est fixe créant une variation du chemin optique de ± 2 cm.

Aussi, lorsqu'un rayon entre dans l'instrument, il est divisé par une lame semi-réfléchissante (« beamsplitter ») en deux faisceaux dirigés vers l'un et l'autre des miroirs (« corner cube »). Ils sont ensuite réfléchis et se propagent vers le détecteur après avoir traversé une nouvelle fois la lame séparatrice. Ces deux faisceaux, provenant du même rayon et ayant parcouru un chemin optique différent, vont interférer l'un avec l'autre. On aura une interférence d'intensité maximale lorsque les deux faisceaux seront en phase, et une interférence nulle lorsque les deux faisceaux seront en opposition de phase. C'est cette intensité, fonction de la différence de chemin optique induite entre les deux faisceaux, qui est mesurée par le détecteur pour former un interférogramme.

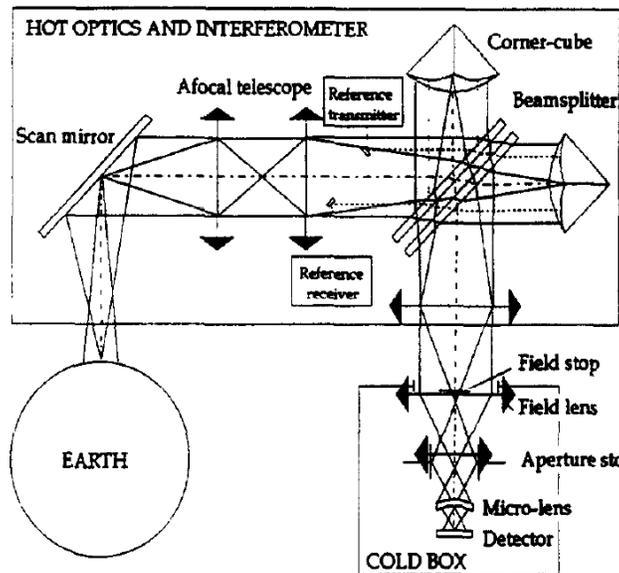


Figure 2.13 : Schéma illustratif du chemin optique dans IASI. D'après Siméoni et al. [1997].

→ Pour une source monochromatique en entrée de l'instrument, le déplacement limité du miroir mobile réfléchissant l'un des faisceaux va conduire dans le spectre à un pic ou une fonction sinus cardinal appelée « fonction d'appareil » (voir figure 2.14) présentant des lobes secondaires non négligeables pouvant se mélanger avec les pics associés à des raies plus faibles. Afin d'éviter ce problème, une fonction de poids, appelée fonction d'apodisation, est appliquée sur les interférogrammes et permet de diminuer l'amplitude des lobes secondaires autour d'une raie intense. Elle a l'inconvénient de dégrader la résolution spectrale de l'instrument, la faisant passer de 0.25 cm^{-1} avant apodisation et de 0.5 cm^{-1} après apodisation, mais permet de diminuer les pieds de la fonction d'appareil.

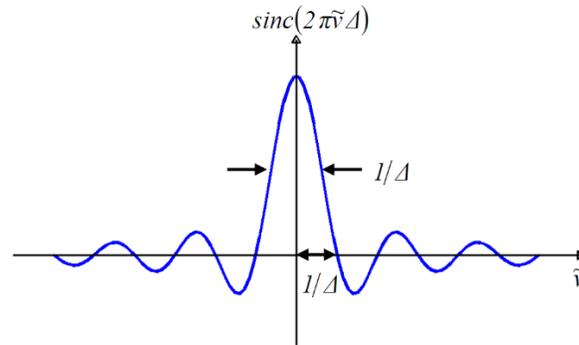


Figure 2.14 : Fonction d'appareil d'un interféromètre (sinus cardinal) caractérisée par ses lobes secondaires d'après Boynard [2009].

2.4.2 Caractéristiques instrumentales de IASI

Afin d'optimiser les performances de l'instrument, le rayonnement sortant de l'interféromètre a été divisé en trois bandes spectrales, avec un détecteur pour chaque bande. Les caractéristiques spectrales de l'instrument dépendent donc de chaque bande et correspondent entre autre à la résolution spectrale et la précision radiométrique (spécifiée en termes d'écart de température équivalent au bruit - en anglais Noise Equivalent Temperature Difference, NedT) comme illustré sur le tableau 2.5.

Tableau 2.5 : Caractéristiques et bandes spectrales de l'instrument IASI [Clerbaux et al., 2009].

Bande	Domaine spectral	Résolution spectrale (cm^{-1})	Précision radiométrique (K) à 280 K
1	645 - 1210 cm^{-1} 8.26 - 15.50 μm	0.25	0.1 - 0.2
2	1210 - 2000 cm^{-1} 5.00 - 8.26 μm	0.45	0.1 - 0.2
3	2000 - 2760 cm^{-1} 3.62 - 5.00 μm	0.55	0.2 - 0.4

Un exemple de spectre IASI en température de brillance sur l'ensemble de son domaine spectral, ainsi que le bruit instrumental IASI sont illustrés sur la figure 2.15. La ligne de base du spectre se situe un peu en dessous de 290 K, les températures inférieures correspondent aux absorptions des

espèces présentes dans l'atmosphère. Les lignes verticales en pointillés séparent les bandes 1, 2 et 3.

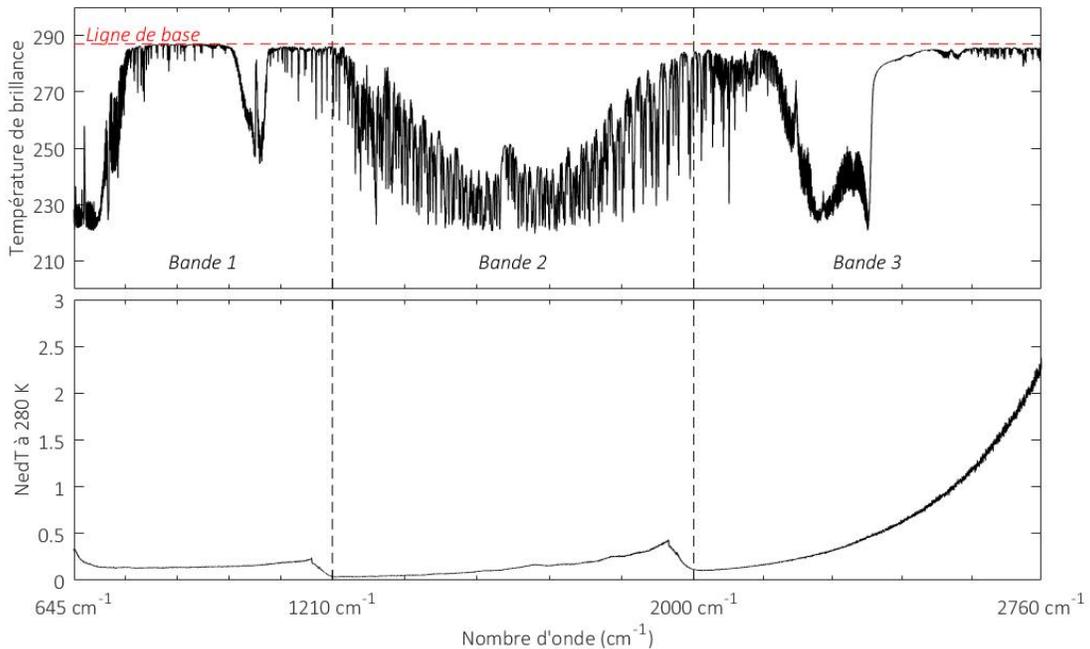


Figure 2.15 : En haut un exemple de spectre IASI en température de brillance pour un ciel clair. En bas le bruit (NedT) instrumental IASI à 280 K. Les lignes verticales en pointillés noirs représentent les 3 bandes spectrales IASI et la ligne horizontale en pointillés rouges représente la ligne de base du spectre IASI.

2.4.3 Caractéristiques géométriques de IASI

IASI est embarqué à bord de Metop qui vole en orbite quasi-polaire à une altitude de 817 km environ. La durée d'une orbite étant de 101 minutes environ, Metop fait environ 14 révolutions par jour. C'est un instrument stable sur le long terme avec plus de 15 ans de données [Saunders et al., 2021].

IASI possède un capteur mobile qui utilise un balayage dans un plan perpendiculaire à la trace au sol du satellite Metop. Comme observé dans la figure 2.16, la ligne de mesure comprend 15 visées symétriques de chaque côté du nadir, espacées d'environ 3.3°. L'angle de scan de IASI va jusqu'à 48.3° de part et d'autre du nadir, ce qui correspond à une fauchée de 2200 km environ (2 x 1100 km) avec un total de 120 pixels. IASI a un champ de vision instantané (FOV) au nadir avec une

résolution spatiale de 50 km x 50 km, composé de 2 x 2 pixels circulaires, chacun correspondant à une empreinte au sol de 12 km de diamètre au nadir [Clerbaux et al. 2009]).

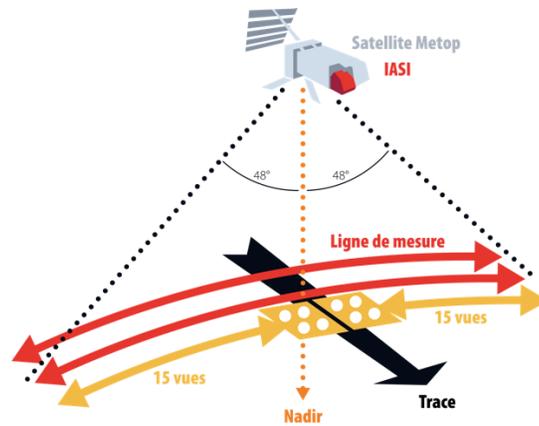


Figure 2.16 : Schéma du champ de vue de l'instrument IASI et caractéristiques du balayage.

IASI permet d'obtenir une couverture globale de la terre, deux fois par jour, avec une heure locale de passage à l'équateur à 9:30 et 21:30. Le tableau 2.6 décrit les caractéristiques du satellite Metop et de l'instruments IASI.

Tableau 2.6 : Caractéristiques du satellite Metop et de l'instrument IASI.

<i>Caractéristiques</i>	
<i>Altitude</i>	~817 km
<i>Orbite</i>	Héliosynchrone polaire
<i>Inclinaison</i>	98.7° à l'équateur
<i>Heure de passage (heure locale)</i>	~9:30 (orbite descendante) ~21:30 (orbite montante)
<i>Durée d'une orbite</i>	101 min (14 orbites par jour)
<i>Cycle de répétition</i>	29 jours (412 orbites)
<i>Taille et poids</i>	1.7 m ³ , 236 kg
<i>Intervalle</i>	645 - 2760 cm ⁻¹
<i>Résolution spectrale</i>	0.3-0.5 cm ⁻¹ (0.5 cm ⁻¹ apodisé)
<i>Bruit radiométrique</i>	<0.1-0.2 K (650-1750 cm ⁻¹) 0.2-0.4 K (1750-2500 cm ⁻¹)
<i>Champ de vue</i>	50 km au nadir (3.33°) avec 4 pixels simultanés de 12 km de diamètre
<i>Largeur de la fauchée</i>	~2200 km de large au sol (48.3°) permet une mesure tous les 25 km, 120 pixels par fauchée
<i>Acquisition des données</i>	480 granules par jour. Un granule contient 22 ou 23 fauchées/scans IASI) soit 2640 ou 2760 pixels/spectres.
<i>Débit de données</i>	120 spectres de luminance toutes les 8 secondes ~1 300 000 observations par jour.
<i>Durée de vie prévue</i>	5 ans

2.4.4 Les données IASI de niveau 1 (L1)

Les interférogrammes sont mesurés par l'instrument IASI et la donnée est ensuite traitée à bord du satellite pour diminuer le taux de transmission IASI de 45 Mbits/s à 1,5 Mbits/s. Depuis l'observation jusqu'à la mise à disposition des données IASI, cette dernière va passer par différentes étapes de calibration et de niveaux de traitement avec comme objectifs le décodage, la correction des défauts de non-linéarité du détecteur et la calibration radiométrique, ainsi que la datation et la géolocalisation (commune avec AVHRR pour *Advanced Very High Resolution Radiometer*) [Boynard, 2009]. Cela passe par un traitement direct de la donnée avant son envoi sur Terre. Les données IASI sont réceptionnées par les stations au sol du système EPS pour les envoyer au système de traitement de niveau 1 transformant les données brutes de IASI (niveau 0) en données de niveau 1A, 1B et 1C. Les différents niveaux de données IASI sont décrits ci-dessous :

- Niveau 1A : consiste en un décodage de la donnée reçue (niveau 0), la post-calibration radiométrique et une calibration spectrale.
- Niveau 1B : les spectres IASI L1A sont rééchantillonnés avec un pas constant en nombre d'onde constante (0.25 cm^{-1}), puis sont interpolés sur une nouvelle grille spectrale.
- Niveau 1C : les spectres IASI L1B sont apodisés avec une résolution spectrale de 0.5 cm^{-1} afin que la fonction de réponse spectrale soit unique sur tout le spectre. Les données IASI L1C sont diffusées via EUMETCast dans des fichiers couvrant une période de 3 minutes (appelé « granule » dans la suite) moins de 1.5 heure après le temps d'acquisition. Chaque granule contient 22 ou 23 lignes de balayage IASI avec 120 pixels par ligne et sont stockés dans des fichiers au format BUFR (Binary Universal Form for the Representation of meteorological data).

2.4.5 Les données IASI de niveau 2 (L2)

Les spectres IASI L1C passent par une procédure d'inversion pour en déduire un certain nombre de variables géophysiques (profils verticaux de température, humidité, concentrations des gaz à l'état de trace, propriétés de surface et des nuages, etc.) appelées données de niveau 2 (L2).

Plusieurs produits IASI de niveau 2 (IASI L2) incluant les profils de température et de pression ainsi que les profils verticaux de différents gaz à l'état de trace (CO , O_3 , SO_2 , HNO_3) sont distribués via la

plateforme de dissémination automatique des données sols et satellites en quasi temps réel d'EUMETSAT appelée EUMETCast [Murphy, 2013]. Le produit IASI de niveau 2 de HCOOH (IASI L2 HCOOH) [Pommier et al., 2016] est disponible en quasi temps réel mais il ne s'agit pas d'un produit opérationnel EUMETSAT.

D'autres produits IASI L2 sont disponibles sur AERIS mais ne sont pas encore disponibles en temps quasi réel : NH_3 [Van Damme et al., 2017]. Finalement certains produits de niveau 2 sont générés en mode recherche et donc pas disponible en quasi temps réel : HCN [Dufлот et al., 2015], C_2H_2 [Dufлот et al., 2015], C_2H_4 [Coheur et al., 2009], CH_3OH [Franco et al., 2018], PAN [Franco et al., 2018], CH_3COOH [Coheur et al., 2009], H_2S [Clarisse L. et al., 2011], CO_2 [Crevoisier et al., 2009], CH_4 [Crevoisier et al., 2013].

Ces différents produits IASI L2 (nommés par la suite IASI L2 XX avec XX le nom de l'espèce), seront utilisés dans ce travail de thèse pour évaluer les détections obtenues avec la méthode ACP.

Chapitre 3

3 La méthode d'analyse en composantes principales

L'analyse en composante principale, aussi appelée méthode de décomposition par vecteurs propres, est une méthode classique d'analyse statistique pour une sélection efficace des informations dans des cas de volumes de données importants [Joliffe, 2002]. Cette méthode a un double intérêt :

- (1) La réduction du volume de données satellitaires comme IASI ou AIRS avec plus de 14 Gigabits de données par jour [García-Sobrino et al., 2017 ; Goldberg et al., 2003]. En effet il a été montré avec les données IASI que seule une centaine de vecteurs propres, appelés « composantes principales », est nécessaire pour reconstruire la quasi-totalité du spectre brut. En principe, comme les vecteurs propres sont connus, on aurait pu faire du traitement PCA à bord et n'envoyer au sol que les coefficients associés, c'est-à-dire les m composantes principales, au lieu de 8461 canaux initiaux [Matricardi et al., 2010]. Cette méthode est donc bien adaptée pour représenter efficacement la petite quantité d'informations contenues dans des milliers de canaux IASI.
- (2) La réduction du bruit dans les spectres reconstruits. Cependant un inconvénient non négligeable réside en l'apparition d'erreurs de reconstruction. Certaines signatures peuvent ainsi être mal ou non reconstruites, ce qui peut fausser une étude quantitative. Cependant la comparaison des spectres bruts et reconstruits peut alors permettre de détecter de événements atmosphériques extrêmes, ce qui sera décrit dans ce chapitre.

Il est intéressant de noter que la méthode ACP est utilisée à la fois pour le stockage mais aussi pour transmission des données entre centres opérationnels. Avec des missions futures telles que IRS à bord de MTG il devient essentiel de recourir à des choix spécifiques et limités dans le nombre de canaux effectivement utilisés ou d'utiliser des méthodes telles que l'ACP [Coopmann et al., 2022].

3.1 Concept de base

La méthode ACP appliquée à des sondeurs à haute résolution spectrale tel que IASI, est décrite dans Atkinson et al. [2008]. Elle repose sur l'utilisation d'une base de données de plusieurs milliers de spectres, représentant la variabilité des conditions atmosphériques possibles, à partir desquels on va pouvoir calculer les composantes principales. On va alors créer ce qu'on appelle la base d'apprentissage.

Soit \mathbf{Y} la matrice $m \times n$ représentant l'ensemble des spectres de luminance (avec m le nombre de canaux et n le nombre d'observations) et $\bar{\mathbf{y}}$ sa moyenne. On pourra alors noter la matrice de covariance \mathbf{S}_ϵ ($m \times m$) des spectres normalisés par le bruit de la façon suivante :

$$\mathbf{S}_\epsilon = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \mathbf{y}_i \mathbf{N}^{-1} \mathbf{y}_i^T - \bar{\mathbf{y}} \mathbf{N}^{-1} \bar{\mathbf{y}}^T \quad (\text{Eq. 3.1})$$

Où \mathbf{N} ($m \times m$) est la matrice de covariance du bruit instrumental. L'ACP est basée sur la décomposition de la matrice \mathbf{S}_ϵ en éléments propres :

$$\mathbf{S}_\epsilon = \mathbf{E} \boldsymbol{\lambda} \mathbf{E}^T \quad (\text{Eq. 3.2})$$

Où \mathbf{E} est la matrice $m \times m$ des vecteurs propres et $\boldsymbol{\lambda}$ la matrice diagonale formée par les m valeurs propres associées.

La projection d'un spectre brut \mathbf{y} sur l'espace propre \mathbf{E} est réalisée de la manière suivante :

$$\mathbf{p} = \mathbf{E}^T \mathbf{N}^{-1} (\mathbf{y} - \bar{\mathbf{y}}) \quad (\text{Eq. 3.3})$$

avec \mathbf{p} , de dimension m , à la fois le vecteur des composantes principales et la représentation de \mathbf{y} dans l'espace propre. Puisqu'une grande partie du signal atmosphérique est contenu dans un nombre relativement faible de vecteurs propres (les vecteurs de haut rang contenant essentiellement du bruit instrumental), il est possible de retirer ces vecteurs propres et alors de représenter le spectre en utilisant un espace de dimension réduite par un vecteur tronqué \mathbf{p} (les composantes principales) tout en conservant le signal atmosphérique.

On notera ce vecteur des composantes principale tronqué, p^* de rang m^* (avec $m^* < m$). p^* est alors une représentation compressée de y . Le spectre reconstruit \tilde{y} (de dimension m) est alors calculé par :

$$\tilde{y} = \bar{y} + NE^*p^* \quad (\text{Eq. 3.4})$$

Où E^* est la matrice des m^* premiers vecteurs propres ou composantes principales. On définit le résidu de reconstruction normalisé (par le bruit instrumental) appelé r par un vecteur (de dimension m) calculé par :

$$r = N^{-1}(y - \tilde{y}) \quad (\text{Eq. 3.5})$$

Par définition si m^* est égal à m , alors $\tilde{y} = y$ et le résidu est un vecteur nul. Dans le cas nominal, si un haut rang est choisi pour la troncature, r contiendra essentiellement du bruit. Plusieurs techniques existent pour estimer le nombre optimal de composantes principales à conserver pour la troncature afin de garder l'essentiel du signal atmosphérique tout en éliminant les vecteurs propres contenant essentiellement du bruit [Antonelli et al., 2004 ; Atkinson et al., 2010].

3.2 Applications de l'ACP

3.2.1 Utilisation des composantes principales

L'utilisation principale des données IASI pour les applications opérationnelles est l'assimilation des radiances (c'est un terme qui remplace de temps en temps le terme luminance) au niveau L1C par les centres de prévision météorologique (NWP en anglais pour Numerical Weather Prediction). Il est possible d'assimiler directement les composantes principales (des données quelques fois dites de niveau L1D) comme cela a été étudié et testé par ECMWF [Collard et al., 2010; Matricardi et al., 2014; Guedj et al., 2015] et par Météo-France avec ARPEGE [Bouyssel et al., 2022]. De façon opérationnelle, EUMETSAT procède à un suivi des radiances et à la distribution à la fois des radiances et par composantes principales (PCC). Une sélection de 314 canaux IASI spécifiques (voir tableau 3.1) sur les 8461 canaux IASI a été faite pour pouvoir assimiler un nombre limité de radiances. Environ 123 canaux (ce nombre peut être différent selon les centres) contiennent l'information sur les profils verticaux de température et d'humidité, ainsi que sur les paramètres liés à la surface et aux nuages (pression, émissivité, température) [Guedj et al., 2015].

Tableau 3.1 : Sélection de canaux par EUMETSAT selon les bandes IASI pour l'assimilation des luminances dans les modèles de prévisions météorologiques.

	Nombre de canaux
Bande 1 (B1)	165
Bande 2 (B2)	104
Bande 3 (B3)	45

Dans son algorithme, EUMETSAT utilise l'ACP de façon routinière pour compresser les données IASI-A et -B (<https://www.eumetsat.int/changes-pc-compressed-iasi-l1c-data>). L'objectif principal pour EUMETSAT quant à l'utilisation de cette méthode réside dans la réduction du volume des données et la bonne reconstruction des spectres IASI pour une transmission plus rapide (en transmettant un nombre réduit de composantes principales plutôt que le spectre complet reconstruit ou non).

Lorsque l'on reconstruit les spectres IASI à partir des composantes principales, on obtient à priori des spectres identiques aux spectres originaux pour l'étape de quantification. On peut alors utiliser ces spectres non bruités pour restituer, comme avec les spectres bruts, les concentrations des gaz, les profils de températures, la température de la surface, l'émissivité ou encore les propriétés des nuages.

La méthode étant très dépendante de la base de données d'apprentissage permettant la reconstruction des spectres, la base utilisée doit alors représenter l'ensemble des variations des spectres observables sur Terre dans toutes les conditions.

Dans son algorithme, EUMETSAT a choisi de séparer l'étude des 3 bandes IASI. Trois bases de données d'apprentissage différentes ont donc été générées à partir de 74 jours de données de mesure IASI-A L1C retraitées (entre le 9 août 2008 au 1er juillet 2019) et 48 jours de données de mesure IASI-B L1C (choisies dans la période du 1er mars 2013 au 1er juillet 2019). Ainsi, pour la création des différentes bases de données, un total de 152 911 164 spectres (excluant les spectres IASI-C) sont utilisés comprenant la variabilité la plus large possible de conditions atmosphériques observables sur Terre.

Il est expliqué dans Guedj et al. [2015] que pour les canaux assimilés par les modèles météorologiques à EUMETSAT, l'utilisation des températures de brillance reconstruites à la place des températures de brillance brutes, n'introduisaient pas de biais significatifs dans les analyses statistiques et prévisions météorologiques de 6h. Cependant une différence est observée pour la détection de nuages. En effet, en analysant les fractions nuageuses détectées avec chaque jeu de données (brutes ou reconstruites) on trouve une tendance positive allant de 2 à 4 % dans la fraction nuageuse pour les données reconstruites par rapport aux données brutes. Aussi, il est montré que lorsque l'on applique une méthode de diagnostic *a posteriori*, on peut observer que les déviations standards liées aux erreurs d'observations pour les canaux des bandes B2 et B3 sont similaires entre les données brutes et reconstruites, mais pour les canaux de la bande B1 les luminances reconstruites donnent des déviations standards très inférieures à celles que l'on peut obtenir sur les données brutes. Ce résultat en faveur des données reconstruites laisse à penser que ces données sont beaucoup moins bruitées que les données brutes. Cependant dans l'analyse des erreurs d'observation, il est montré que cette plus faible déviation standard est liée à une augmentation de la corrélation entre les canaux IASI introduite par la méthode ACP et observable dans la matrice de corrélation.

Malgré des différences observées dans certaines conditions atmosphérique (nuages), inhérentes aux erreurs numériques dans les fichiers BUFR (dans le prétraitement ACP à Météo-France), ou inhérente à la méthode ACP elle-même (corrélation entre les canaux), Guedj et al. [2015] ont montré que les spectres reconstruits sont en accord avec les données brutes et peuvent être utilisés et distribués par EUMETSAT pour l'assimilation dans les modèles numériques de prévisions météorologiques. La capacité de la méthode PCC pour la bonne reconstruction de spectre de luminances est donc établie.

3.2.2 Détection d'événements extrêmes

Comme indiqué dans la section précédente, l'ACP permet d'obtenir des spectres reconstruits associés à un bruit aléatoire fortement réduit. Cependant, il se peut qu'un spectre soit peu ou pas représenté dans la base de données initiale. Ce spectre est appelé « outlier » car il est en dehors de la variabilité atmosphérique couverte par la base d'apprentissage. Une anomalie de ce type, est en général observée lors d'un événement rare (par exemple une éruption volcanique) ayant une

influence sur un paramètre tel que la concentration d'un gaz trace (exemple : le dioxyde de soufre) dans l'atmosphère et donc sur le comportement des spectres de par l'interaction entre le rayonnement infrarouge et les molécules absorbantes de l'atmosphère (Chapitre 2).

Chefdeville [2010] a utilisé la base données ACP utilisée par EUMETSAT dans le but de rechercher des « outliers ». Malgré la surreprésentation de certains évènements comme les éruptions volcaniques, des signaux liés à la mauvaise reconstruction des spectres sont retrouvés pour des évènements de feux et de volcans. Aussi, Chefdeville [2010] observe que la méthode ne permet pas de reconstruire des spectres dans la bande 3 de IASI au-dessus de régions comme le Sahara, le Moyen-Orient, l'Asie Centrale, l'Est de la Chine et associe cela à des effets de saturation. En effet IASI est capable de mesurer des températures de brillances de 4 K à 315 K [Blumstein et al., 2004] cependant des températures autour supérieures à 315 K (~320-330 K) peuvent être observées dans ces régions. La perturbation des spectres, et les mauvaises reconstructions associées peuvent alors donner des fausses détections de outliers avec la méthode ACP. Cette observation a aussi été faite dans le cadre de cette thèse et sera discutée dans le chapitre 5.

La méthode PCC ne peut reconstruire correctement un spectre qui est en dehors de la variabilité couverte par sa base d'apprentissage et dans le cas de l'utilisation opérationnelle des données L1D fournies par EUMETSAT cela pourrait impacter les données assimilées dans les modèles. Afin d'éviter ce type de problème, deux approches ont été proposées par Hultberg et al. [2017]:

- La méthode globale est la méthode choisie de manière routinière par EUMETSAT. Elle consiste à mettre à jour la base de données de référence les spectres « outliers », c'est-à-dire des spectres dans lesquels des caractéristiques spectrales observées sont non présentes dans la base initiale. L'ajout de spectres représentatifs de conditions extrêmes (exemple des feux) permet de créer un ensemble plus représentatif de la variabilité atmosphérique et permet une meilleure reconstruction spectrale lorsque l'on rencontre des évènements similaires.
- La deuxième approche dite locale, consiste à créer une base spectrale de référence associée à une zone géographique. Cela permettrait en théorie de diminuer le nombre de composantes principales nécessaires pour capturer les variations atmosphériques.

Cependant il est montré que cette méthode ne permet pas d'augmenter la compression du signal et amène à perdre du signal atmosphérique en augmentant le bruit.

Une troisième approche, hybride, permet de combiner les deux approches globale et locale. En ajoutant 5 directions locales (comme les nomme T. Hultberg) ou 5 vecteurs propres locaux, elle permet de mieux représenter les tendances au long terme dans l'atmosphère ainsi que les variations dues à des évènements exceptionnels.

L'intérêt principal de la méthode ACP réside dans sa capacité à réduire le volume de données nécessaires à l'étude des informations contenues dans les spectres IASI avec des traitements efficaces en termes de temps de calcul. L'utilisation de la méthode PCC pour la compression et la reconstruction de spectres IASI proposée par EUMETSAT ou Hultberg et al. [2017] permet de souligner un point majeur : en cas de spectres anormaux ou non représentés dans la base de données de référence, la reconstruction du spectre par la méthode ACP est possible mais le spectre sera alors mal reconstruit. La bonne reconstruction d'un spectre est alors fortement dépendante de la base de référence utilisée pour la création des vecteurs propres. De la même façon la mauvaise reconstruction d'un spectre par la ACP signifie que le spectre brut étudié contient des caractéristiques spectrales en dehors de la variabilité atmosphérique observée et naturelle. On peut alors s'intéresser à la méthode ACP dans un objectif de recherche de ce type de spectres appelés « outliers ». Aussi, les caractéristiques spectrales en dehors de la variabilité atmosphérique sont associables à des évènements géophysiques extrêmes tels que des concentrations anormales de différents constituants atmosphériques. L'utilisation de la méthode PCC développée par EUMETSAT est possible, mais elle ne permet pas de reconstituer certains évènements extrêmes.

3.3 La méthode IASI-PCA

Dans le cadre d'un projet CNES « Maquette de chaîne de traitement de données IASI pour la détection automatique et la caractérisation d'évènements atmosphériques extrêmes » initié en 2017, une méthode IASI-PCA a été développée conjointement par SPASCIA et HYGEOS avec l'aide scientifique du LATMOS en partant des spectres IASI résultant du processus de compression-reconstruction mis en place à EUMETSAT. Les points importants du cahier des charges sont alors :

- D'exploiter l'ACP sur la donnée IASI à la fois sur IASI-A et IASI-B
- Exploiter la méthode de manière automatique pour aller vers une utilisation opérationnelle.
- Tester en condition réelles la maquette logicielle.
- Valider des études de cas réels représentatifs et déjà analysés, démonstration sur 1 an de données IASI globales.
- Etablir des produits fournis régulièrement par ce traitement.

Mes travaux de thèse s'inscrivent dans le cadre de ce projet dont l'objectif final est de mettre en place un outil de détection opérationnel. Il a donc été important pendant la thèse de rester à jour avec la version de l'algorithme développé par SPASCIA notamment au niveau de base de données de référence avec laquelle sont calculés les vecteurs propres utilisée par SPASCIA pour travailler sur une base commune.

3.3.1 Score de reconstruction

Pour estimer la corrélation entre un spectre brut et son spectre reconstruit, on définit le score de reconstruction (en anglais « reconstruction score » - RS) comme la moyenne quadratique du résidu spectral normalisé :

$$RS = \sqrt{\frac{1}{m} \sum_{i=0}^m r_i^2} \quad (\text{Eq. 3.6})$$

où m est le nombre de canaux et r est le résidu.

Par définition un résidu est défini comme l'anomalie de reconstruction d'un spectre brut. Un résidus issu d'une bonne reconstruction sera donc à priori proche de 0, cependant dans la réalité les résidus contiennent toujours un bruit (figure 3. 1) sur l'ensemble du domaine spectral IASI tandis qu'un résidu contenant un signal fort (figure 3.2) contiendra des erreurs de reconstruction due à une anomalie géophysique.

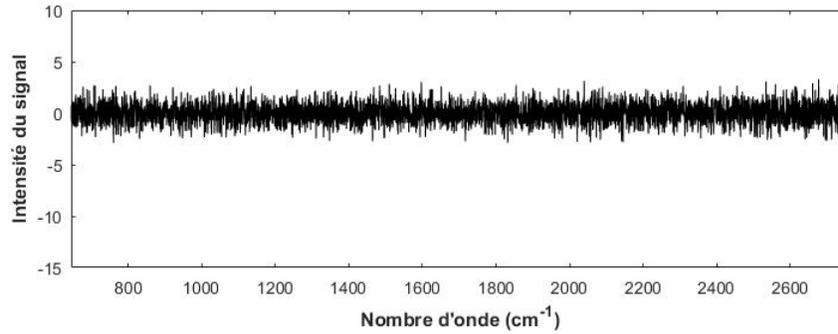


Figure 3.1 : Exemple de résidu ne contenant pas d'anomalie de reconstruction.

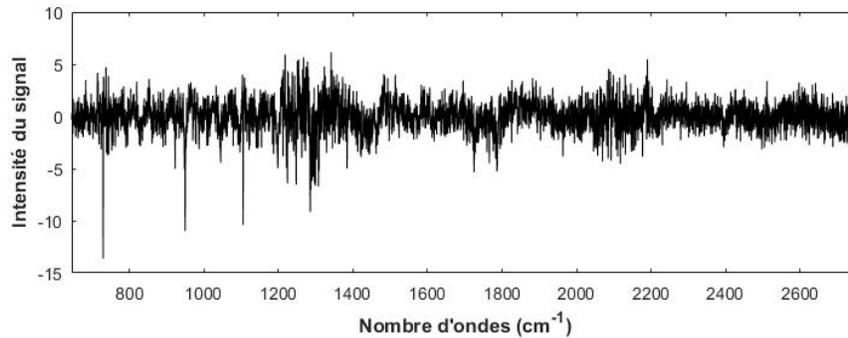


Figure 3.2 : Exemple de résidu contenant des anomalies de reconstruction.

Une valeur anormale est détectée lorsque la différence entre le spectre brut et le spectre reconstruit associé montre un signal d'intensité significative (sans unité).

En prenant en compte un large ensemble de spectres, la moyenne de RS est proche de 1 avec un faible écart type. Un spectre dont le RS est très supérieur à 1 révèle que soit le bruit est important soit l'erreur de reconstruction est non négligeable reflétant une signature spectrale sous-représentée dans la base de données d'apprentissage. Dans ce cas, les résidus présentent des valeurs anormales autour des signatures spectrales des constituants responsables de l'anomalie. Le calcul des RS est fait selon des bandes spectrales particulières, définies comme « indicateurs spectraux ».

Des valeurs seuils ont été définies pour détecter les valeurs des résidus dites anormales ou de type « outlier » (en anglais), au-delà desquelles l'erreur de reconstruction peut ne pas être négligeable. Dans cette approche, plus de 60 « indicateurs spectraux » ont été définis pour lesquels des scores de reconstruction ont été calculés pour le domaine spectral cible du résidu. A chaque indicateur

sont associées deux valeurs de seuil de détection (jour et nuit). D'après le tableau 3.2 illustrant ces différents indicateurs, les valeurs seuils sont quasiment toutes supérieures à 1.

On peut noter qu'en plus des indicateurs associés à des molécules, certains autres indicateurs tels que Min_1, Min_2, Min_3 ou Max_1, Max_2, Max_3, sont associés à des larges bandes spectrales dans le but d'enregistrer des scores de reconstruction sur les trois bandes B1, B2 et B3 du domaine spectral couvert par l'instrument IASI pour des recherches d'outliers « à l'aveugle ». De même, l'indicateur Total permet d'observer un score de reconstruction calculé sur l'ensemble du domaine spectral IASI.

Tableau 3.2: Définition des indicateurs IASI-PCA et des valeurs seuils associées pour l'études des scores de reconstruction pour des conditions de jour ou de nuit.

Indicateur	Bande spectrale (cm^{-1})	Seuil jour	Seuil nuit						
<i>SO2_1</i>	1138.50	1148.00	1.54	1.53	<i>CH3OH_1</i>	1030.00	1040.00	1.41	1.41
<i>SO2_2</i>	1320.00	1338.00	1.44	1.34	<i>PAN_1</i>	770.00	810.00	1.39	1.34
<i>SO2_3</i>	1338.25	1355.00	1.36	1.32	<i>PAN_2</i>	1130.00	1170.00	1.34	1.30
<i>SO2_4</i>	1371.00	1371.75	1.83	1.85	<i>CF4_1</i>	1275.00	1290.00	1.63	1.46
<i>SO2_5</i>	1376.00	1376.75	1.67	1.69	<i>SF6_1</i>	904.75	956.00	1.32	1.24
<i>SO2_6</i>	1344.75	1345.25	1.71	1.68	<i>HNO3_1</i>	862.00	882.00	1.50	1.38
<i>N2O_1</i>	1153.75	1163.50	1.64	1.61	<i>HNO3_2</i>	1313.00	1332.00	1.35	1.29
<i>N2O_2</i>	2191.00	2199.25	1.65	1.50	<i>OCS_1</i>	2045.00	2056.00	1.98	1.63
<i>CO2_1</i>	758.00	766.75	1.67	1.63	<i>OCS_2</i>	2058.00	2064.00	2.00	1.76
<i>CO2_2</i>	788.00	793.00	1.70	1.69	<i>H2S_1</i>	1130.00	1135.00	1.63	1.64
<i>CO2_3</i>	968.25	975.25	1.56	1.54	<i>H2S_2</i>	1140.00	1145.00	1.67	1.68
<i>CO2_4</i>	2048.25	2057.50	2.00	1.69	<i>H2S_3</i>	1192.00	1204.00	1.86	1.95
<i>CO2_5</i>	2380.00	2400.00	1.56	1.37	<i>C2H4_1</i>	940.00	958.00	1.43	1.42
<i>CO2_6</i>	2064.50	2065.50	2.23	2.14	<i>H2O_1</i>	907.00	927.00	1.38	1.35
<i>CO2_7</i>	2077.25	2078.25	2.26	2.24	<i>H2O_2</i>	945.00	955.00	1.59	1.59
<i>NH3_1</i>	961.00	971.00	1.67	1.46	<i>Surf_1</i>	829.25	834.00	1.67	1.66
<i>NH3_2</i>	925.00	935.00	1.67	1.46	<i>Surf_2</i>	860.50	863.25	1.76	1.76
<i>CO_1</i>	2143.00	2181.00	1.67	1.35	<i>Surf_3</i>	1109.00	1110.00	1.64	1.63
<i>CO_2</i>	2150.00	2159.25	1.80	1.56	<i>Surf_4</i>	1194.25	1194.75	0.89	0.89
<i>CO_3</i>	2178.50	2191.00	1.65	1.44	<i>Surf_5</i>	1204.50	1205.25	1.39	1.45
<i>CH4_1</i>	1190.00	1214.25	1.91	1.92	<i>Surf_6</i>	1231.00	1232.50	2.09	2.06
<i>CH4_2</i>	1200.00	1230.00	2.04	1.97	<i>Surf_7</i>	1234.25	1235.25	1.93	1.93
<i>CH4_3</i>	1230.25	1270.00	1.60	1.39	<i>Surf_8</i>	1978.50	1979.75	2.23	2.08
<i>CH4_4</i>	1300.00	1320.00	1.35	1.29	<i>Surf_9</i>	2132.50	2134.00	2.08	1.93
<i>HCl_1</i>	2696.50	2705.75	2.28	1.68	<i>Total</i>	645.00	2760.00	1.34	1.11
<i>HCl_2</i>	2717.75	2730.25	2.13	1.65	<i>Max_1</i>	800.00	1130.00	4.77	4.62
<i>HCl_3</i>	2744.75	2753.75	2.42	1.74	<i>Max_2</i>	1300.00	1900.00	4.77	4.65
<i>HCN_1</i>	711.00	715.00	1.88	1.85	<i>Max_3</i>	2100.00	2400.00	5.43	4.82
<i>C2H2_1</i>	728.00	732.00	1.90	1.83	<i>Min_1</i>	800.00	1130.00	-5.21	-4.63
<i>HCOOH_1</i>	1103.00	1109.00	1.61	1.61	<i>Min_2</i>	1300.00	1900.00	-4.79	-4.66
					<i>Min_3</i>	2100.00	2400.00	-5.43	-4.83
					<i>CO_pq</i>	2150.75	2176.25	1.15	1.15

3.3.2 Choix des vecteurs propres

Des études précédentes [Huang et al., 1992 ; Antonelli et al., 2004] montrent que le nombre d'informations indépendantes nécessaires pour caractériser la variabilité atmosphérique est significativement inférieur au nombre de canaux IASI. Pour un spectre IASI cela signifie que le nombre de composantes principales nécessaires pour accéder aux différentes informations relatives à l'atmosphère pour la reconstruction du spectre, sera inférieur à 8641. L'analyse en composantes principales permet alors de réduire à la fois la taille de la donnée, le temps de calcul [Goldberg et al., 2003] mais aussi de réduire le bruit aléatoire présent dans les observations infrarouges et contenu dans les composantes principales d'ordre élevé. En effet, à chaque composante principale est associée une valeur propre représentant la variance expliquée par ce dernier. Ces composantes principales sont alors classées dans l'ordre décroissant des valeurs propres et l'on peut alors distinguer les premières composantes principales contenant l'information atmosphérique des composantes principales de rangs élevés contenant essentiellement du bruit instrumental. Les premières composantes principales sont illustrées dans la figure 3.3.

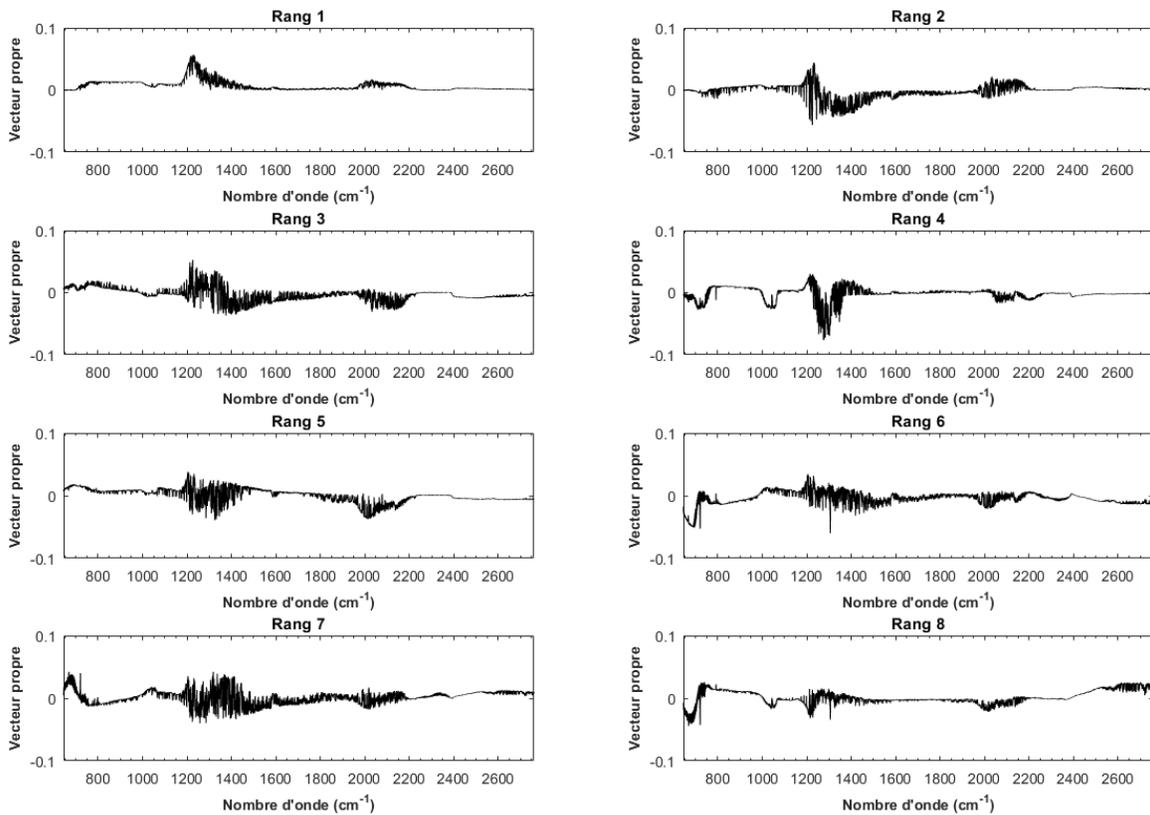


Figure 3.3 : Les 8 premiers vecteurs propres caractérisant la variabilité atmosphérique calculés dans la méthode IASI-PCA.

Il est aussi montré que pour éviter de perdre une partie de l'information en cas de spectres anormaux (outliers) on choisit un nombre de composantes principales supérieur à celui qui permet de caractériser la variabilité atmosphérique. En conservant un nombre plus important de composantes principales, on optimise la conservation de l'information tout en permettant la réduction du bruit aléatoire. De plus, il est proposé de diviser les spectres par le bruit IASI afin d'utiliser des résidus normalisés (donc sans dimension et du même ordre de grandeur sur tout le domaine couvert par l'instrument, même si le signal et le bruit varient de plusieurs ordres de grandeur entre le début de la bande B1 et la fin de la bande B3).

Le choix du nombre de vecteurs propres utilisés dans cette étude, comme il est montré dans Atkinson [2010], est d'utiliser les 150 premiers vecteurs propres comme illustré sur la figure 3.4. En effet, cette gamme de vecteurs propres suffit à représenter 99.99% de la variabilité atmosphérique. Aussi, on s'attend, de par la troncature et l'élimination des composantes

principales de haut rang, à ce que le bruit dans les spectres reconstruits soit réduit d'un facteur 0.13 à 0.18 [Atkinson et al., 2008]. Par conséquent, on suppose que les spectres fournis par EUMETSAT après le processus PCC (de compression et reconstruction) sont directement utilisables et présentent un bruit réduit par rapport au spectre initial L1C. Le nombre de vecteurs propres utilisés par la méthode est essentiel quant à la bonne représentation de la variabilité expliquée par les spectres de la base de données ainsi que la réduction du bruit aléatoire IASI et donc la bonne reconstruction des spectres. Le choix des 150 premiers vecteurs propres permet alors de réduire le bruit aléatoire mais aussi de minimiser la perte d'information [Huang et al., 1992 ; Antonelli et al., 2004].

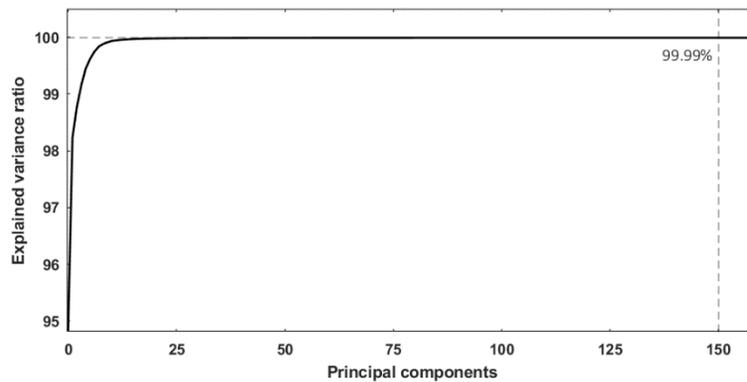


Figure 3.4 : Evolution du ratio de variance expliquée en fonction du rang des composantes principales. 99,99% de l'atmosphère est représentée par les 150 premières composantes principales parmi les 8461 calculées à partir de la base d'apprentissage.

Aussi pour une bonne reconstruction des spectres, il est important que la base de données soit représentative de la variabilité atmosphérique. En effet la méthode de sélection des spectres pour la base de données d'apprentissage déterminera la bonne représentation de la variabilité atmosphérique dans les vecteurs propres calculés. La méthodologie associée à cette sélection est présentée dans le chapitre 3 (section 3.3.3).

3.3.3 Création de la base d'apprentissage

Environ 120 000 spectres IASI/Metop-A L1C ont été sélectionnés par HYGEOS/SPASCIA pour une année complète (2013), pour différentes conditions d'acquisition à l'échelle globale. L'année 2013 a été choisie pour éviter d'importantes occurrences d'événements exceptionnels tels que les feux

ou les éruptions volcaniques. La base de données contient des spectres associés à un flag de bonne qualité acquis indifféremment de jour comme de nuit, sur terre et sur mer, et quelle que soit la couverture nuageuse. Pour chaque mois de l'année 2013, les spectres ont été sélectionnés tous les cinq jours (1, 6, 11, 16, 21 et 26 de chaque mois). Afin de ne pas surreprésenter les hautes latitudes (en raison des passages fréquents au-dessus de cette zone en raison de l'orbite polaire) un découpage spatial a été réalisé sur les différentes latitudes. Les latitudes ont été découpées en 6 bandes de 15° de latitude de la même manière dans l'hémisphère nord et l'hémisphère sud. Le nombre de spectre sélectionnés par bande de latitudes est indiqué dans le tableau 3.3 :

Tableau 3.3 : Nombre de spectres sélectionnés par bandes de latitudes (pour chacun des 5 jours de chaque mois) pour la base d'apprentissage dans l'hémisphère nord. La sélection des spectres est faite de la même manière dans l'hémisphère sud.

Latitudes	Nombre de spectres sélectionnés
75 – 90 °N	1
60 – 75 °N	2
45 – 60 °N	3
30 – 45 °N	4
15 – 30 °N	5
0 – 15 °N	6

Ensuite, une sélection aléatoire a également été appliquée pour représenter toutes les conditions d'acquisition en termes de lignes de balayage IASI, de chaque champ de vue directionnel (FOR = Field Of Regard) dans la fauchée et de chaque champ de vue instantané (IFOV = Instantaneous Field Of View).

3.3.4 Avantages et limitations de la méthode IASI-PCA.

Grâce à sa base d'apprentissage et la sélection d'un ensemble de composantes principales, la méthode PCA permet d'enregistrer toute la variabilité naturelle d'un ensemble d'observations dans ses premiers vecteurs propres. Elle va alors trouver un avantage quant à la détection d'anomalies atmosphérique traduits par les signaux présents dans les résidus.

Tout comme les données d'inversion, l'ACP peut se réaliser en temps quasi réel et permettre la localisation précise des détections. Ainsi, la caractérisation de signatures spectrales spécifiques dans les résidus permet de détecter la présence de différentes molécules non inversées en quasi-temps réel telles que C_2H_2 ou C_2H_4 . Cette approche basée sur l'étude spectroscopique des signatures spectrales permet de caractériser la composition des panaches (si on peut les identifier ou des zones de forte concentration) en examinant la valeur du score de reconstruction (global ou par domaine d'indicateur) qui traduit un écart par rapport à la variabilité atmosphérique naturelle et qui est donc un proxy de l'intensité de l'évènement détecté.

La capacité de l'ACP pour la détection (sans avoir besoin de passer par une étape d'inversion requérant des paramétrisations particulières) est un gain de temps et de ressources de calcul pour une approche préliminaire de détection d'évènements exceptionnels. On peut observer dans la figure 3.5 que les panaches détectés au-dessus de l'Espagne et du Portugal pendant les feux du Portugal en 2017, avec les données (en bas) d'inversion de CO , NH_3 et $HCOOH$. Ces molécules qui sont régulièrement observées dans les feux de biomasse [Pommier et al., 2016 ; Whitburn et al., 2017] sont aussi détectés dans les résultats de IASI-PCA. On montre ici que les produits issus de la PCA permettent d'observer les mêmes panaches avec les indicateurs associés à NH_3 et $HCOOH$ que les 2 différents produits inversé (niveau L2) correspondants.

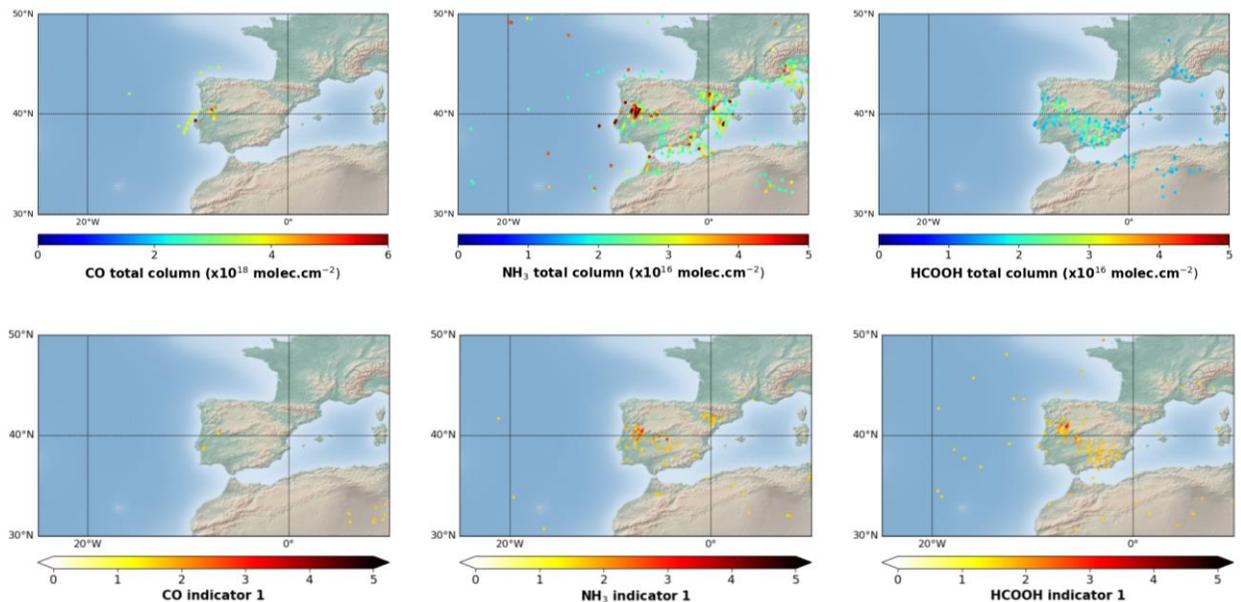


Figure 3.5 : En haut : Distribution spatiale des concentration (en colonne totale) de CO , NH_3 et $HCOOH$ pendant les feux du Portugal le 18/06/2017 avec les données d'inversion L2 IASI-B de jour. En bas : Distribution spatiale des RS pour des indicateurs de CO , NH_3 et $HCOOH$ de la méthode IASI-PCA pendant les feux du Portugal le 18/06/2017 avec les données IASI-B de jour.

L'avantage de la PCA par rapport aux données L2 peut s'observer dans la figure 3.6 lors de l'études des feux de brousse d'Australie en 2020. En effet il est alors permis d'accéder à des détections de molécules dont l'inversion n'est pas disponible en quasi temps réelles comme HCN , C_2H_2 ou C_2H_4 .

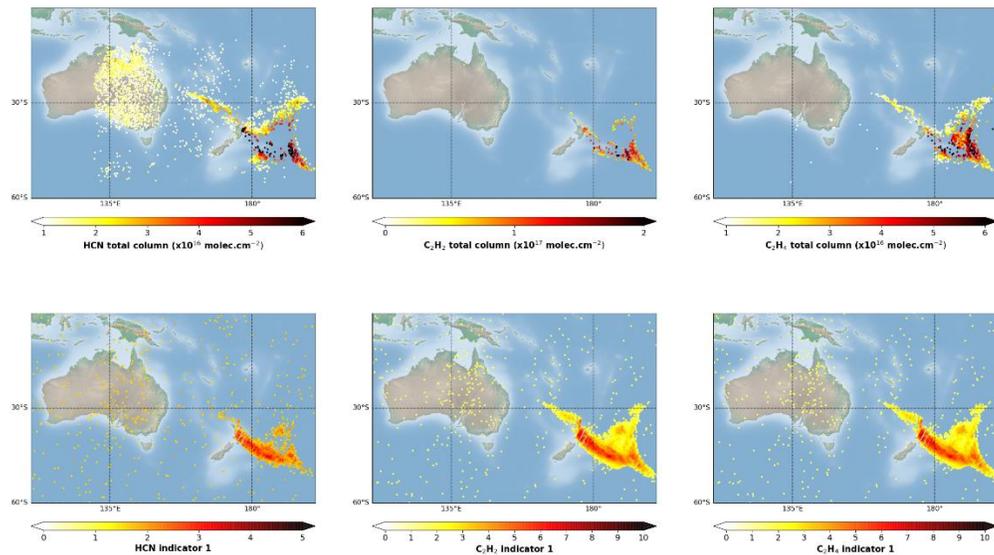


Figure 3.6 : En haut : Distribution spatiale des concentration (en colonne totale) de HCN , C_2H_2 et C_2H_4 pendant les feux d'Australie le 01/01/2020 avec les données d'inversion L2 IASI-B de jour. En bas : Distribution spatiale des RS pour des indicateurs de HCN , C_2H_2 et C_2H_4 de la méthode IASI-PCA pendant les feux d'Australie le 01/01/2020 avec les données IASI-B de jour.

De plus en cas de forte fraction nuageuse la restitution de concentration n'est pas possible tandis qu'avec la méthode ACP, si l'anomalie de concentration d'une molécule est située au-dessus d'une couche nuageuse, elle sera alors détectable et permettra d'obtenir plus d'informations que les données d'inversion.

D'un autre coté la méthode IASI-PCA repose sur la définition d'indicateurs spectraux qui sont quelques fois trop larges : un indicateur peut inclure l'absorption de plusieurs molécules ou encore plusieurs indicateurs peuvent se superposer. Aussi, dans d'autres cas, elle ne permet pas de

caractériser de façon précise les évènements qui perturbent l'ensemble du spectre. En effet la figure 3.7 montre que dans le cas de l'éruption du volcan Raikoke en 2019 [De Leeuw et al., 2021], le panache de SO₂ émis par le volcan est bien observé par IASI-B lors de son passage de jour avec une détection avec l'exemple de l'indicateur 3 (1338.25 - 1355.00 cm⁻¹) associé à l'absorption du SO₂ dont les concentrations sont illustrées dans la figure 3.8. Cependant, on remarque qu'une grande partie des indicateurs dépassent leur seuil, dont certains comme les indicateurs associés à la détection de CO, NH₃, CF₄ ou SF₆ ne sont pas attendus dans ce type d'évènement. Ces fausses détections pour un certain nombre d'indicateurs peuvent être dues à la fois au mélange des raies de plusieurs espèces dans les domaines couverts par les différents indicateurs.

Une autre limitation dans des cas extrêmes telle qu'observé dans la figure 3.7, est la diversité et les combinaisons de conditions géophysiques, intrinsèques aux différents évènements, pouvant causer des erreurs de reconstruction. En effet, on peut citer différentes causes telles que :

- La concentration anormale d'espèces chimiques, poussières ou aérosols volcaniques.
- Les températures importantes des panaches, notamment dans les cas de volcanisme [Delmelle et al., 2018].
- L'altitude auxquelles on peut retrouver les panaches.

Enfin, même si les résidus étudiés sont normalisés par le bruit IASI (dépendant des différentes bandes IASI, voir figure 2.14), l'approche IASI-PCA ne faisant pas de distinction dans la création de ses bases de vecteurs propres entre la bande 1, 2 et 3 de IASI, et il est possible qu'elle soit sensible à un bruit plus élevé dans les domaines des inter-bandes.

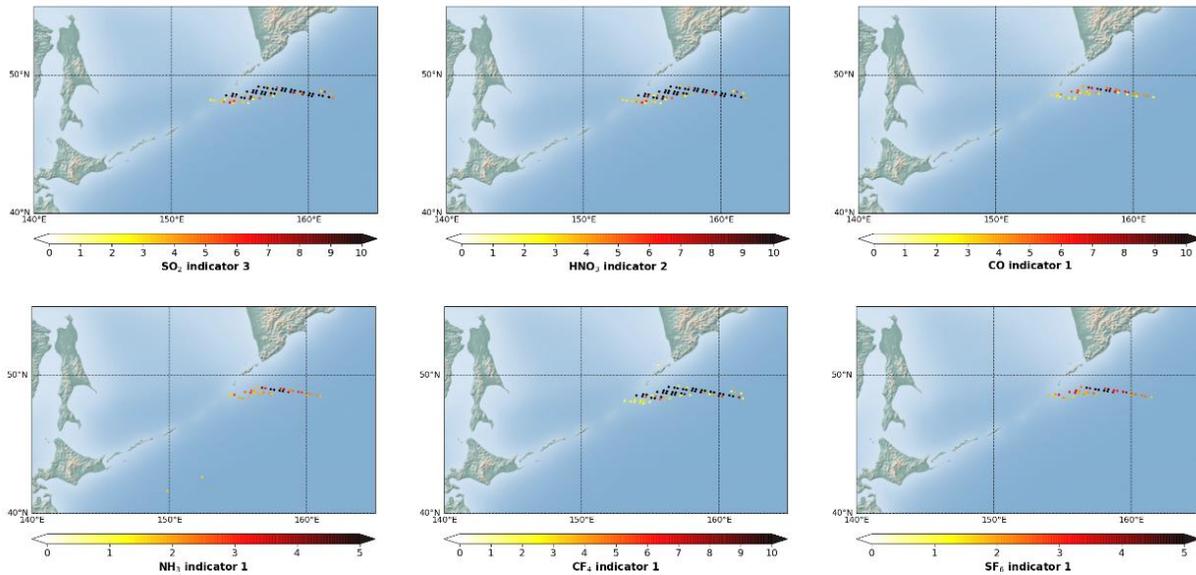


Figure 3.7 : Distribution spatiale des RS pour quelques indicateurs de la méthode IASI-PCA pendant l'éruption de Raikoke le 21/06/2019 avec les données IASI-B de jour.

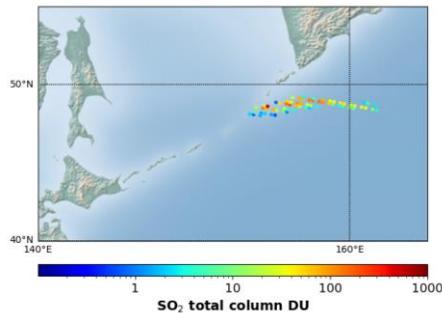


Figure 3.8: Distribution spatiale des concentration (colonne totale) de SO₂ pendant l'éruption de Raikoke le 21/06/2019 avec les données IASI-B de jour.

Enfin, le fait que la base d'apprentissage soit constituée de spectres de 2013 peut potentiellement constituer une limite. La composition chimique de l'atmosphère varie dans le temps et on peut citer certains gaz comme le CO₂, émis par les activités humaines et à longue durée de vie, dont la concentration est en constante augmentation. Cette augmentation de la concentration de fond peut alors impacter la qualité de la reconstruction ACP. En effet, lors de l'étude d'évènements récents, éloignées de 2013, il est possible que la concentration de fond puisse être mal représentée et fasse apparaître des erreurs de reconstruction qui pourrait à terme perturber les résidus.

Afin d'optimiser la méthode IASI-PCA, une idée est de définir des en se basant sur des domaines plus étroits pour les indicateurs ou même sur des canaux uniques et d'utiliser le domaine spectral IASI complet. Une évolution de la méthode IASI-PCA appelée IASI-PCA-GE est décrite dans le chapitre 4. Cette approche optimisée restera sensible aux limites inhérentes à la mauvaise reconstruction des spectres dans la méthode ACP. En effet, la même base de données, et le même choix de vecteurs propre seront utilisés. La mauvaise reconstruction des spectres causée par d'autres paramètres physiques ou géophysique tels que les limites d'observation des températures par le capteur IASI, le bruit associé aux inter-bandes, ou l'altitude d'émission des panaches, sera toujours présente. L'approche spectrale développée dans la méthode IASI-PCA-GE permettra néanmoins d'améliorer la détection et de mieux caractériser les outliers.

Chapitre 4

4 La méthode IASI-PCA-GE (Granule-Extrema)

Le chapitre précédent a montré certaines limitations de la méthode IASI-PCA, notamment dans la définition des domaines spectraux associés aux signatures d'espèces chimiques (appelés « indicateurs ») qui présentent certaines limitations. En effet, afin de caractériser précisément une détection, il est important d'étudier de façon ciblée les canaux associés à la contribution des molécules absorbantes dans l'atmosphère plutôt que de calculer des moyennes quadratiques dans des domaines spectraux plus ou moins larges. Une façon plus spécifique de caractériser les signatures spectrales des molécules est de définir des indicateurs spectraux plus fins, c'est-à-dire en définissant une combinaison de raies spectrales les plus intenses ou de bandes d'absorption fines de 0.50 cm^{-1} à 2.00 cm^{-1} de largeur, selon les pics d'absorption des molécules. Pour cela, une analyse approfondie des contributions des différentes molécules absorbantes issues de simulations de transfert radiatif ou bien de bases de données spectroscopiques est essentielle (cf. chapitre 2). Les résidus, c'est-à-dire la différence entre le spectre brut et son spectre reconstruit, sont alors comparés à ces indicateurs spectraux. Par ailleurs, afin d'utiliser le maximum d'information contenue dans les spectres, une approche reposant sur l'étude de l'ensemble du domaine spectral IASI est également nécessaire.

Ce chapitre décrit la méthodologie que j'ai développée pour extraire le maximum d'information dans les résidus spectraux, et donc optimiser la détection d'outliers. Une première section définit les nouveaux indicateurs spectraux associés aux signatures spectrales de nombreuses espèces chimiques.

4.1 Définition d'indicateurs spectraux

Les simulations Atmosphit et la base de données des sections efficaces d'absorption HITRAN [Gordon et al., 2017, 2022] (cf. chapitre 2) ont été utilisées pour caractériser les molécules responsables des événements et de définir de nouveaux indicateurs spectraux. Le tableau 4.1 donne les régions spectrales correspondant à l'absorption de différentes molécules, pour lesquelles des indicateurs ont été définis principalement à l'aide de la base de données HITRAN2016 et HITRAN2020 [Gordon et al., 2017 ; Gordon et al., 2022]. Pour la plupart des molécules (C_2H_2 , C_2H_4 , C_4H_4O , HCN, HONO, CH_3OH), seul un pic d'absorption intense est conservé mais pour d'autres, plusieurs signatures spectrales sont intéressantes à observer et peuvent aider pour l'attribution d'une détection, ce que j'explique dans la suite.

D'après la figure 2.11 (cf. chapitre 2), le dioxyde de soufre absorbe dans trois régions spectrales de l'infrarouge (autour 1150, 1350 et 2510 cm^{-1}). Cependant, lors d'une éruption volcanique suffisamment intense, de grandes quantités de cendres peuvent être émises simultanément avec le SO_2 ou des aérosols dans l'atmosphère. En effet, autour de 1149.4 et 1369.8 cm^{-1} dans les bandes ν_1 et ν_3 du SO_2 on peut trouver la contribution des cendres volcaniques. Ceci est surtout observé dans la bande la bande ν_1 du SO_2 pouvant mener à des surestimations dans les mesures du SO_2 [Corradini et al., 2009]. En tenant compte du fait que l'absorption de SO_2 est la plus intense dans sa bande ν_3 [Clarisse et al., 2008, 2012], j'ai défini 3 « indicateurs fins » de la bande ν_3 de SO_2 (autour de 1345, 1371.5 and 1376 cm^{-1}).

Pour l'acide nitrique, une combinaison de quatre raies spectrales/bandes d'absorption dans les bandes 1 et 2 de IASI a été identifiée. En effet on y trouve les bandes d'absorption de HNO_3 ν_8 , ν_5 , $2\nu_9$, ν_3 , avec des pics autour de 763 cm^{-1} , 879 cm^{-1} , 897 cm^{-1} et 1325 cm^{-1} (cf. figure 2.12, chapitre 2). Un cinquième indicateur aurait pu être défini autour de 1711.5 cm^{-1} dans la bande ν_2 , cependant dû à la forte interférence avec l'absorption de la vapeur d'eau dans ce domaine spectral je ne l'ai pas inclus dans la combinaison d'indicateurs.

Pour l'acide formique ($HCOOH$), la figure 2.12 (chapitre 2) montre la présence de deux pics d'absorption, un pic principal se situant dans sa bande ν_6 autour de 1105 cm^{-1} et un pic secondaire se situant autour de 1777 cm^{-1} . Même s'il est peu probable d'obtenir un signal de $HCOOH$ pour le

2^{ème} indicateur qui est perturbé par les raies de la vapeur d'eau, cet indicateur a été conservé, car un signal a pu apparaître dans un cas d'étude (cf. chapitre 6). J'ai ainsi défini deux indicateurs correspondant à ces deux domaines spectraux.

Dans la méthode IASI-PCA, des indicateurs liés à la détection du monoxyde de carbone ont été définis sur une large bande spectrale autour de 2050-2200 cm^{-1} . Cependant, la bande 3 de IASI est plus bruitée avec une contribution du rayonnement solaire réfléchi [Clerbaux et al., 2009]. J'ai donc choisi de définir des indicateurs fins à partir d'une sélection de canaux précédemment utilisés pour l'étude du CO par Hadji-Lazaro [1999] afin de ne conserver que les pics d'absorptions caractéristiques du CO, tout en diminuant les possibles interférences avec d'autres espèces absorbantes dans cette région spectrale. Cependant, je montrerai dans le chapitre 6 que la détection et la caractérisation de CO à partir des résidus de reconstruction restent encore difficiles. Il est intéressant de noter que le produit IASI L2 CO, disponible en temps quasi réel sur AERIS (<https://iasi.aeris-data.fr/co/>), est généré en utilisant une région spectrale plus réduite (2143–2181.25 cm^{-1}) [Hurtmans et al., 2012]. Ce produit sera utilisé dans ce travail pour évaluer la méthode développée au cours de cette thèse.

Grâce à son faible bruit instrumental dans la région spectrale autour de 950 cm^{-1} (0.2 K à 280 K) [Clerbaux et al., 2009], IASI est bien adapté pour l'étude des anomalies autour des raies d'absorption de NH_3 . Les indicateurs associés à l'absorption du NH_3 que j'ai définis sont nombreux via les différents pics d'absorption observés autour de 900 cm^{-1} . Je montrerai dans le chapitre 6 que de nombreux canaux de NH_3 apparaissent dans les résultats de la méthode IASI-PCA-GE et que le pic observé autour de 967 cm^{-1} est le pic d'absorption le plus intense. Ce résultat est concordant avec les résultats de Clarisse et al. [2010] qui montrent que le pic à 967.25 cm^{-1} est le canal la plus sensible à l'ammoniac.

Les paramètres spectroscopiques de l'acide nitreux (HONO) présent dans les feux et de l'acide nitreux (HONO) qu'on trouve dans les panaches volcaniques n'étant pas disponibles dans HITRAN, je me suis basé sur des publications pour définir des indicateurs. Barney et al. [2000] montrent les absorptions de HONO autour de ses *trans*- ν_3 (1263 cm^{-1}), *cis*- ν_4 (852 cm^{-1}), and *trans*- ν_4 (790 cm^{-1}). Cependant de par le mélange des raies de la bande à 852 cm^{-1} avec l'absorption de NH_3 et le bruit

important dû à l'inter-bande IASI autour de 1280 cm^{-1} et l'absorption de différents aérosols, seule la bande à 790 cm^{-1} est conservée comme indicateur de HONO.

Pour l'acide sulfurique (H_2SO_4), le maximum d'absorption de l'aérosol H_2SO_4 est à $8.5\text{ }\mu\text{m}$, soit 1176 cm^{-1} [Grainger et al., 1993]. Cependant, la définition d'indicateurs pour cette espèce n'a pas été possible du fait de la largeur de la bande d'absorption de H_2SO_4 ainsi que des divers constituants absorbant comme les cendres ou le SO_2 . La contribution des cendres est par ailleurs discutée dans Clerbaux et al. [2011], avec un large domaine d'absorption large autour de $800\text{ à }1200\text{ cm}^{-1}$ et la bande ν_1 d'absorption du SO_2 autour de $8.6\text{ }\mu\text{m}$ (1162 cm^{-1}) sera elle aussi affectée par la présence des cendres volcaniques. D'après Sellitto et al. [2016] les aérosols sulfatés ont aussi une signature spectrale caractéristique dans une large bande spectrale entre $700\text{ et }1400\text{ cm}^{-1}$, avec deux maxima d'absorption centrés à environ $905\text{ et }1170\text{ cm}^{-1}$. Ce domaine spectral est affecté au niveau de la ligne de base du spectre, par un continuum d'absorption dû à la présence d'aérosols. Les cendres volcaniques sont détectables dans la région spectrale entre $8\text{ and }12\text{ }\mu\text{m}$, soit entre $833\text{ et }1250\text{ cm}^{-1}$ [Karagulian et al., 2010], comprenant une partie de la fenêtre atmosphérique. Ces mélanges de différentes contributions induisent alors des surestimations des mesures du SO_2 [Prata et al., 2001; Corradini et al., 2009] et rendant la restitution conjointe de SO_2 et des aérosols volcaniques difficiles. Tout comme le H_2SO_4 , lors de l'étude des résidus spectraux, l'attribution d'une signature spectrale spécifique à ces différents composés caractérisés par de larges bandes spectrales ainsi que de nombreuses interférences est alors difficilement réalisable.

Pour certains constituants précédemment observés avec IASI, dont l'absorption est caractérisée par de larges bandes spectrales ou avec des interférences importantes avec d'autres constituants, comme le nitrate de peroxyacétyl (PAN), l'acide sulfurique (H_2SO_4) ou encore les aérosols, leur détection ne pourra pas être associée à un indicateur fin et sera discutée au cas par cas dans les parties résultats (cf. chapitre 5, 6).

Tableau 4.1: Nouveaux indicateurs spectraux définis grâce à la base de données HITRAN et utilisés dans la méthode IASI-PCA-GE.

Bande spectrale de définition (cm ⁻¹)	Largeur de bande (cm ⁻¹)	Molécule	Principaux pics dans l'infrarouge	Bibliographie
711.50 - 713.50	2.00	HCN	712.5 cm ⁻¹ (Branche Q)	[Lahuis et al., 2000]
729.25 - 730.00	0.75	C ₂ H ₂	729.25 cm ⁻¹ (Branche Q bande v ₅)	[Vinatier, 2007]
744.25 - 744.75	0.50	C ₄ H ₄ O	744.5 cm ⁻¹ (bande v ₁₃)	[Pankoke et al., 1993; Gordon et al., 2017, 2022]
763.00 - 763.75	0.75	HNO ₃	763 cm ⁻¹ (Branche Q bande v ₈)	[Rothman et al., 2009]
790.25 - 790.75	0.50	HONO	790 cm ⁻¹ (Branche Q bande trans-v ₄)	[Barney et al., 2000]
853.50 - 854.25	0.75	NH ₃	854 cm ⁻¹ (Branche Q)	[Gordon et al., 2017, 2022]
867.75 - 868.75	1.00	NH ₃	868 cm ⁻¹ (Branche Q)	[Gordon et al., 2017, 2022]
878.50 - 880.00	1.50	HNO ₃	879 cm ⁻¹ (Branche Q bande v ₅)	[Gordon et al., 2017, 2022]
887.25 - 888.25	1.00	NH ₃	888 cm ⁻¹ (Branche Q)	[Gordon et al., 2017, 2022]
891.75 - 892.25	0.50	NH ₃	892 cm ⁻¹ (Branche Q)	[Gordon et al., 2017, 2022]
895.50 - 896.75	1.25	HNO ₃	896 cm ⁻¹ (Branche Q bande 2v ₉)	[Gordon et al., 2017, 2022]
908.00 - 909.00	1.00	NH ₃	908.25 cm ⁻¹ (Branche Q)	[Gordon et al., 2017, 2022]
931.75 - 933.75	2.00	NH ₃	930 cm ⁻¹ (Branche Q)	[Gordon et al., 2017, 2022]
949.00 - 950.50	1.50	C ₂ H ₄	949 cm ⁻¹ (Branche Q bande v ₇)	[Vinatier, 2007]
966.00 - 968.00	2.00	NH ₃	967 cm ⁻¹ (Branche Q)	[Gordon et al., 2017, 2022]
991.75 - 993.50	1.75	NH ₃	992.75 cm ⁻¹ (Branche Q)	[Gordon et al., 2017, 2022]
1007.75 - 1008.25	0.50	NH ₃	1008 cm ⁻¹ (Branche Q)	[Gordon et al., 2017, 2022]
1033.00 - 1033.75	0.75	CH ₃ OH	1033.5 cm ⁻¹ (Branche Q)	[Razavi et al., 2011]
1034.00 - 1034.25	0.25	NH ₃	1034 cm ⁻¹ (Branche Q)	[Gordon et al., 2017, 2022]
1046.25 - 1047.25	1.00	NH ₃	1047 cm ⁻¹ (Branche Q)	[Gordon et al., 2017, 2022]
1065.75 - 1066.25	0.50	NH ₃	1066 cm ⁻¹ (Branche Q)	[Gordon et al., 2017, 2022]
1075.75 - 1076.25	0.50	NH ₃	1076 cm ⁻¹ (Branche Q)	[Gordon et al., 2017, 2022]
1084.50 - 1085.75	1.25	NH ₃	1085 cm ⁻¹ (Branche Q)	[Gordon et al., 2017, 2022]
1103.00 - 1104.25	1.25	NH ₃	1104 cm ⁻¹ (Branche Q)	[Gordon et al., 2017, 2022]
1104.50 - 1105.75	1.25	HCOOH	1105 cm ⁻¹ (Branche Q bande v ₆)	[Rinsland et al., 2004]
1121.50 - 1122.75	1.25	NH ₃	1122 cm ⁻¹ (Branche Q)	[Gordon et al., 2017, 2022]
1325.75 - 1326.25	0.50	HNO ₃	1326 cm ⁻¹ (v ₃ bande)	[Gordon et al., 2017, 2022; Perrin et al., 2012]
1344.50 - 1346.50	1.00	SO ₂	1345 cm ⁻¹ (v ₃ bande)	[Gordon et al., 2017, 2022]
1370.50 - 1372.00	1.50	SO ₂	1371 cm ⁻¹ (v ₃ bande)	[Gordon et al., 2017, 2022]
1375.75 - 1377.00	1.25	SO ₂	1376 cm ⁻¹ (v ₃ bande)	[Gordon et al., 2017, 2022]
1776.75 - 1777.25	0.50	HCOOH	1777 cm ⁻¹ (v ₃ bande)	[Perrin et al., 2009]
2111.00 - 2112.25	1.25	CO	2111.50 cm ⁻¹ (Branche P)	[Hadji-Lazaro, 1999]
2123.00 - 2124.25	1.25	CO	2123.75 cm ⁻¹ (Branche P)	[Hadji-Lazaro, 1999]
2130.00 - 2132.25	2.25	CO	2131.75 cm ⁻¹ (Branche P)	[Hadji-Lazaro, 1999]
2157.75 - 2158.75	1.00	CO	2158.00 cm ⁻¹ (Branche R)	[Hadji-Lazaro, 1999]
2164.75 - 2166.00	1.25	CO	2165.75 cm ⁻¹ (Branche R)	[Hadji-Lazaro, 1999]

4.2 La méthode des « Granule-Extrema » (GE)

Les données IASI de niveau 1 (L1C) sont diffusées sous forme de granule toutes les 3 minutes, contenant 22 ou 23 scans IASI (soit 2640 ou 2760 spectres). C'est donc la forme la plus adaptée à une détection en quasi-temps réel. De plus, l'analyse par granule permet de couvrir une zone géographique délimitée dans laquelle nous pouvons supposer que les conditions atmosphériques sont relativement homogènes. La méthode que j'ai développée s'intéressant aux valeurs extrêmes des résidus d'un granule donné, il est préférable que la sensibilité de l'instrument soit homogène (par exemple un contraste thermique peu variable dans la bande de latitude limitée du granule) pour ne pas surestimer certaines anomalies par rapport à d'autres lors de la sélection des canaux d'intérêt (cf. section 4.4.2). Dans la réalité au sein d'un granule on peut trouver à la fois des pixels au-dessus de la mer et au-dessus des continents, avec des conditions où la fraction nuageuse peut varier. La sensibilité de l'instrument sera donc variable mais la base de données de référence étant représentative de la variabilité naturelle, on peut supposer que la reconstruction des spectres ne sera pas affectée par ces variations.

La méthode IASI-PCA est appliquée à tous les spectres d'un granule donné. Ensuite, pour chaque spectre IASI, un résidu spectral est calculé. Ensuite, les paramètres statistiques tels que le minimum, le maximum, la moyenne et l'écart type des résidus contenus dans un granule sont calculés. Deux pseudo-résidus, appelés « Granule MAXima » (GMA) et « Granule MINima » (GMI) contenant, pour chaque canal spectral IASI, les valeurs maximale (Eq. 4.1) et minimale (Eq. 4.2) des résidus respectivement sont créés et s'écrivent:

$$GMA_i = \max(\mathbf{R}_i) \quad (\text{Eq. 4.1})$$

$$GMI_i = \min(\mathbf{R}_i) \quad (\text{Eq. 4.2})$$

où \mathbf{R} est la matrice des résidus de dimension $n \times m$ avec n le nombre de spectres contenus dans le granule, m le nombre de canaux spectraux et i un canal spectral IASI ($i = 1 \dots m$).

Ces deux pseudo-résidus GMA et GMI incluant, respectivement, les valeurs extrêmes positives et négatives des résidus contenus dans un granule pour un canal donné, j'ai choisi d'appeler cette méthode IASI-PCA « Granule-Extrema » (IASI-PCA-GE).

La figure 4.1 (gauche) illustre un exemple de pseudo-résidus GMA et GMI calculés pour un granule de données L1C enregistrées par IASI-B lors d'un épisode de feux en Australie ayant eu lieu le 1^{er} janvier 2020. Dans cet exemple, les *GMA* et *GMI* sont caractérisés par des forts pics montrant des contributions de différents constituants atmosphériques autour de 700, 950, 1100 ou 1300 cm^{-1} . Ce cas d'étude spécifique est discuté dans le chapitre 6, avec la détection simultanée et non ambiguë de molécules comme C_2H_2 , C_2H_4 , HCOOH dont les domaines spectraux caractéristiques ont permis de définir les indicateurs associés (tableau 4.1) respectivement autour de 729.25 cm^{-1} , 949.5 cm^{-1} et 1105 cm^{-1} . Comme le montre la figure, des pics d'intensité plus élevés sont observés dans le GMI (plot du bas) par rapport au GMA (plot du haut). De manière générale, pour la majorité des événements détectés, nous retrouvons plus d'informations dans le GMI que le GMA. Nous associons les outliers dans le GMI à des anomalies d'absorption tandis que la partie négative GMA sera plutôt associée à des anomalies en émission observable selon certaines conditions. En effet, il existe des événements extrêmes qui ont lieu dans des conditions atmosphériques particulières, par exemple avec un contraste thermique négatif [Clarisse et al., 2010; Van Damme et al., 2013; Boynard et al., 2014; Bauduin et al., 2014]. Dans ces cas-là, on trouve un signal plus intense dans le pseudo-résidu GMA (figure 4.1 à droite).

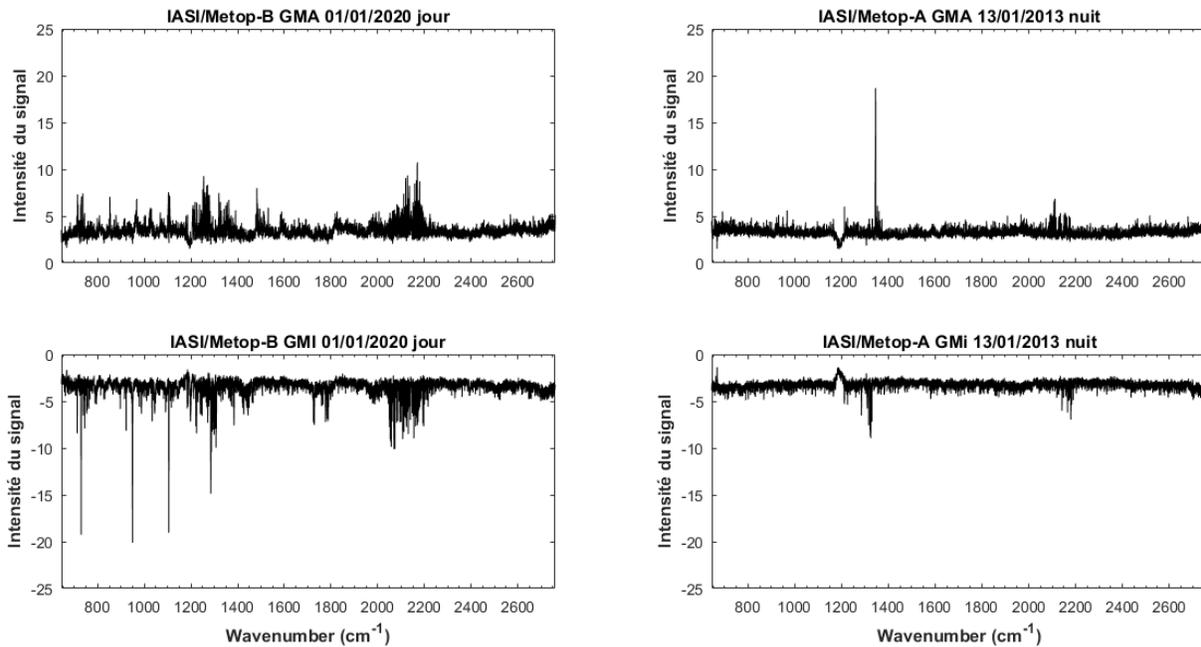


Figure 4.1 : Exemple de GMA (en haut) et GMI (en bas) pour deux événements extrêmes à savoir les feux de brousse en Australie le 01/01/2020 observés de jour avec les données L1C de IASI-B (à gauche) et un pic de pollution en Chine le 13/01/2013 observés de nuit avec les données L1C de IASI-A (à droite).

4.3 Caractérisation des molécules

La caractérisation d'une molécule émise lors d'un événement extrême peut être déduite spectralement à l'aide du GMI ou du GMA. En effet, en comparant les pics obtenus dans le GMI ou le GMA avec les indicateurs spectraux que j'ai définis dans le tableau 4.1 une identification des espèces est possible.

D'après les sections efficaces d'absorption illustrées dans les figures 4.2, et 4.3, on peut voir que certaines molécules comme le NH_3 (figure 4.2), absorbent dans un domaine spectral spécifique et d'autres molécules ont des signatures spectrales dans plusieurs domaines spectraux (exemple du CH_3COOH figure 2.11). En conséquence, certaines détections sont faites à partir d'une combinaison de plusieurs domaines spectraux fins caractérisés par l'absorption d'une molécule. Il faut noter que l'apparition de plusieurs signatures d'une même molécule permet de caractériser plus sûrement une détection.

La figure 4.2, illustrant les sections efficaces d'absorption de l'ammoniac extraite de la base de données spectroscopique HITRAN, montre que certaines molécules comme le NH_3 absorbent dans un large domaine spectral. Ainsi pour cette molécule, 16 domaines fins ont été définis dans sa branche Q d'absorption.

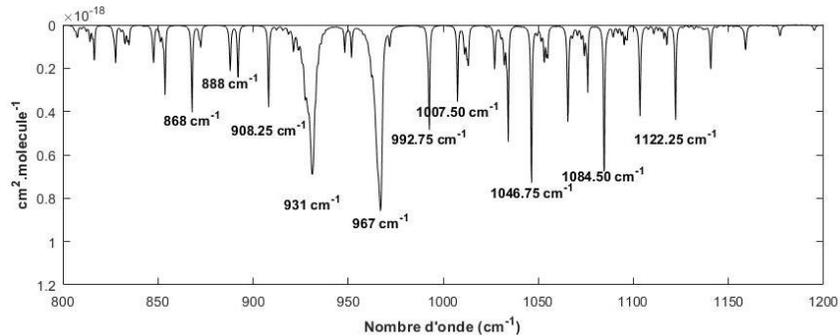


Figure 4.2 : Sections efficaces d'absorption de l'ammoniac extraite de la base de données spectroscopique HITRAN dans des conditions de température de 297 K et 1 atm.

Cependant, un problème majeur pour l'identification des molécules sont les mélanges des contributions de différentes espèces. En effet, plusieurs espèces peuvent être observées dans les spectres IR dans une même région spectrale. Par conséquent, afin d'éviter une mauvaise caractérisation de la présence de telle ou telle molécule, certains pics identifiés dans les résidus n'ont pas été retenus (ainsi donc que le domaine pour l'indicateur associé) afin d'éviter l'impact potentiel des molécules interférentes. C'est par exemple le cas des pics HONO à 852cm^{-1} ou à 1262cm^{-1} dus à des interférences avec NH_3 . C'est aussi le cas de H_2S vers 1200cm^{-1} dues à des interférences avec de nombreuses espèces absorbantes entre 1200 et 1350cm^{-1} comme CH_4 , H_2O ou des espèces bromées comme CH_3Br (figure 4.3) ce qui ne facilite pas l'observation des pics caractéristiques de cette espèce entre 1200 et 1300cm^{-1} .

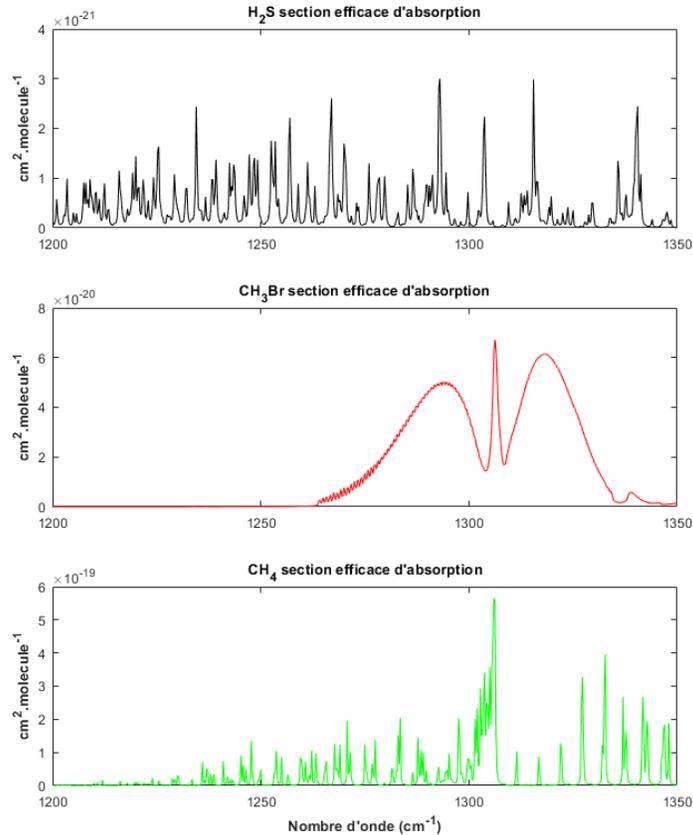


Figure 4.3 : Sections efficaces d'absorption de H₂S, CH₃Br et CH₄ extraites de la base de données HITRAN dans des conditions de température de 297 K et 1 atm [Gordon et al., 2017 ; Gordon et al., 2022].

4.4 Seuils de détection statistiques.

Afin d'optimiser la détection des outliers, des seuils statistiques sont définis sur le *GMI* ou le *GMA* en se basant sur les granules d'intérêt, les canaux d'intérêts et les pixels d'intérêts.

4.4.1 Sélection de granules

Un ensemble d'environ 43 000 granules IASI/Metop-B a été choisi aléatoirement le premier jour de chaque mois pour la période avril 2013 – avril 2021 (ce qui correspond à la période IASI-B disponible au moment du calcul). Cet ensemble de granules inclut 21 500 granules contenant des données de jour et 21 500 granules contenant des données de nuit. Ce choix large permettra de retenir différentes conditions atmosphériques à savoir des granules contenant à la fois des spectres anormaux et d'autres réguliers afin d'étudier la variabilité des signaux observés dans les canaux. Aussi il permettra de faire apparaître les possibles variabilités de signal dans certains

canaux due à l'augmentation de la concentration de fond de composants peu variables dans l'atmosphère comme CH₄ ou CO₂. A partir de ces 43 000 granules, 43 000 *GMI/GMA* sont calculés.

La figure 4.4 illustre la distribution statistique de la valeur maximale (en absolu) calculée pour chaque pseudo-résidus *GMA* et *GMI*, tous canaux confondus, pour les conditions de jour et de nuit. La partie supérieure et inférieure des boîtes bleues représentent graphiquement la valeur du 75^{ème} percentile celle du 25^{ème} percentile, respectivement. La médiane est illustrée par la ligne rouge entre ces deux valeurs. Enfin, on retrouve de part et d'autre du 25^{ème} et 75^{ème} percentile les valeurs frontières supérieures et inférieures (ligne noire). Ces frontières représentent un seuil statistique calculé à partir de l'équation 4.3, qui permet de considérer comme outliers toutes les valeurs respectivement inférieures ou supérieures à 1.5 fois l'écart interquartile.

$$Seuil = Q3 + W * (Q3 - Q1) \quad (Eq\ 4.3)$$

Avec $W = 1.5$ un seuil probabiliste [Le Guen, 2001], $Q3$ le 75^{ème} percentile et $Q1$ le 25^{ème} percentile.

Enfin, les croix rouges représentent alors les outliers statistiques. Les résultats statistiques associés à la répartition des valeurs extrêmes sont donnés dans le tableau 4.2. En termes de médiane et percentiles, on observe des valeurs très proches pour les *GMI* et *GMA*, autour de 5 le jour et la nuit. Par ailleurs, les valeurs maximales des *GMI* sont plus élevées que celles des *GMA* (165-170 versus 116-117). De plus le *GMI* est caractérisé par un plus grand nombre d'outliers par rapport au *GMA*. Ce résultat illustre la plus grande sensibilité du *GMI* pour la détection d'extrêmes. En outre, les *GMA* traduisent des outliers en émission, ce qui arrive notamment dans des cas de contraste thermique négatif, ce qui correspond généralement à une inversion thermique près de la surface. Les conditions favorables à un contraste thermique négatif sont des conditions de nuit l'hiver [Clarisse et al., 2010]. On s'attend donc à ce que le *GMA* soit caractérisé par une plus grande quantité d'outliers la nuit plutôt que le jour. Cependant le nombre d'outliers statistiques dans les *GMA* de jour et de nuit restent très similaires (~2300).

Tableau 4.2 Résultats statistiques obtenus sur l'ensemble de granules IASI/Metop-B de jour et de nuit sélectionnés pour la période 2013 - 2021. Le calcul a été fait sur les valeurs absolues du GMI et GMA.

Résultats statistiques	GMI jour	GMI nuit	GMA jour	GMA nuit
Nombre de points	21500	21500	21500	21500
Nombre d'outliers	2748	2553	2385	2330
Médiane	5.29	5.18	5.31	5.19
Maximum	164.83	170.79	116.63	117.99
Minimum	2.72	2.88	2.93	3.06
Q3 : 75 ^{ème} percentile	5.86	5.56	5.84	5.54
Q1 : 25 ^{ème} percentile	4.99	4.93	5.00	4.93
Adjacent supérieur Q3 + W*(Q3-Q1)	7.17	6.52	7.10	6.46

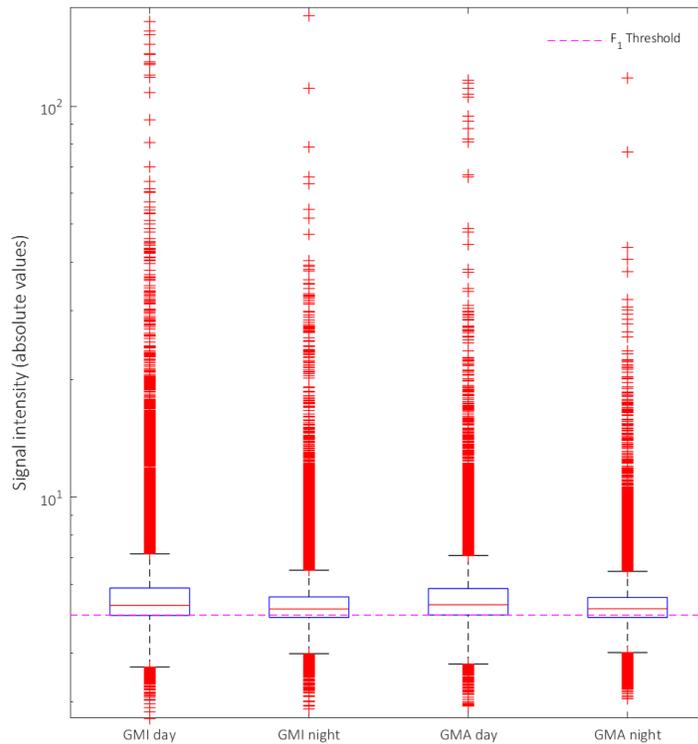


Figure 4.4 : Distribution des extrema (en valeur absolue) calculés dans les GMI et GMA à partir de 43 000 granules (~21 500 le jour et ~21 500 la nuit). La ligne pointillée en magenta correspondant au 25^{ème} percentile observable dans chaque condition se trouve à une intensité de 5.

Le premier seuil appelé F_1 , ($F_{1(jour)}$ et $F_{1(nuit)}$ selon que le granule contient des mesures de jour ou de nuit) est volontairement choisi à 5 pour être peu restrictif. Ce choix d'un seuil proche du

25^{ème} quartile pour l'ensemble des conditions (ligne pointillée en magenta) permettra alors d'appliquer la méthode sur un grand nombre de granule pour maximiser les détections.

Nous supposons que cette valeur est un compromis entre filtrer un nombre suffisant de granules considérés comme « normaux » et sélectionner un maximum de granules contenant des outliers.

4.4.2 Sélection de canaux

Pour un granule donné sélectionné avec F_1 , un second seuil est appliqué afin de sélectionner les canaux spectraux associés à une mauvaise reconstruction dans le *GMI* ou le *GMA*. La moyenne m du *GMI* ou *GMA* et la déviation standard associée σ sont calculées. Tous les canaux caractérisés par un seuil supérieur à $F_2 = abs(m) + 1 * \sigma$ sont alors sélectionnés. La figure 4.5 illustre un exemple de *GMI* considéré comme outlier par le seuil F_1 . Sa moyenne et sa déviation standard sont de 3.88 ± 6.62 . Dans ce cas, on s'intéressera donc à la valeur $F_2 = -5.50$ (cf. ligne magenta sur la figure 4.5). Le seuil permet de sélectionner des canaux présentant des erreurs de reconstructions importantes. On peut par exemple observer les signatures de HCN autour de 712 cm^{-1} , différents pics caractéristiques de l'absorption de NH_3 autour de $800 - 1200 \text{ cm}^{-1}$, ou encore le CO autour de $2000-2200 \text{ cm}^{-1}$.

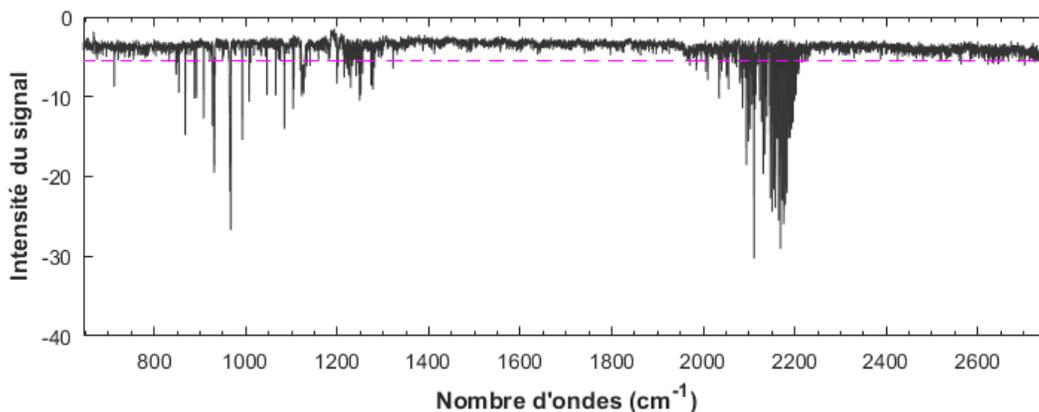


Figure 4.5 : Exemple de *GMI* calculé dans un granule pendant les feux de Sibérie avec IASI-B le 2010/08/03 en condition de jour. La valeur du seuil de sélection des canaux F_2 est illustré en pointillés magenta.

4.4.3 Sélection de pixels

Une fois les canaux d'intérêts sélectionnés, un troisième seuil F_3 intervient. Comme le montre la figure 4.6, illustrant le 99^{ème} percentile calculé à partir des 21 500 GMI/GMA le jour et la nuit, l'amplitude du GMI/GMA varie d'un canal spectral à l'autre. On pourrait imaginer définir un seuil différent à chaque canal IASI. Cependant, comme les indicateurs spectraux associés aux différentes molécules d'intérêts sont des bandes spectrales fines ou des combinaisons de bandes spectrales, j'ai choisi d'associer un seuil unique à chaque indicateur. Ce seuil unique est basé sur la valeur du 99^{ème} percentile calculé pour le canal le plus sensible à une molécule donnée. Par exemple, pour NH_3 c'est le canal à 967 cm^{-1} où l'absorption est la plus intense (figure 4.2) et en s'intéressant à la distribution des valeurs extrêmes des *GMI* et *GMA* pour ce canal, on retiendra comme seuil de détection de l'ammoniac, la valeur du 99^{ème} percentile. Pour chacune des conditions on obtiendra alors à 967 cm^{-1} :

- Dans un GMI de jour, $F_3 = 8.1$.
- Dans un GMI de nuit, $F_3 = 4.60$.
- Dans un GMA de jour, $F_3 = 4.46$.
- Dans un GMA de nuit, $F_3 = 4.70$.

Cependant la figure 4.6 montre que certaines régions spectrales sont très bruitées. On peut notamment observer que cette variabilité est intense autour de $1200\text{-}1350 \text{ cm}^{-1}$. Cela est dû à un bruit élevé dans ce domaine spectral car les domaines autour de 1200 cm^{-1} comme autour de 2000 cm^{-1} sont situés au niveau des interbandes IASI dans lesquels le bruit instrumental est maximal. Cela peut aussi être dû potentiellement à la présence d'aérosols [Guermazi, 2019]. La variabilité observée dans la bande B3 de IASI autour de $1950\text{-}2100 \text{ cm}^{-1}$ peut (en plus de l'interbande), être associée à des saturations du détecteur dues à des températures de surface trop importantes [Chefdeville, 2010].

La valeur du seuil F_3 dans ces régions spectrales sera donc élevée de par le bruit important ou la sensibilité à d'autres paramètres géophysiques. Ces différents biais ne permettent pas le choix d'un seuil peu restrictif, ce qui ne permettra des détections que dans des cas particulièrement anormaux.

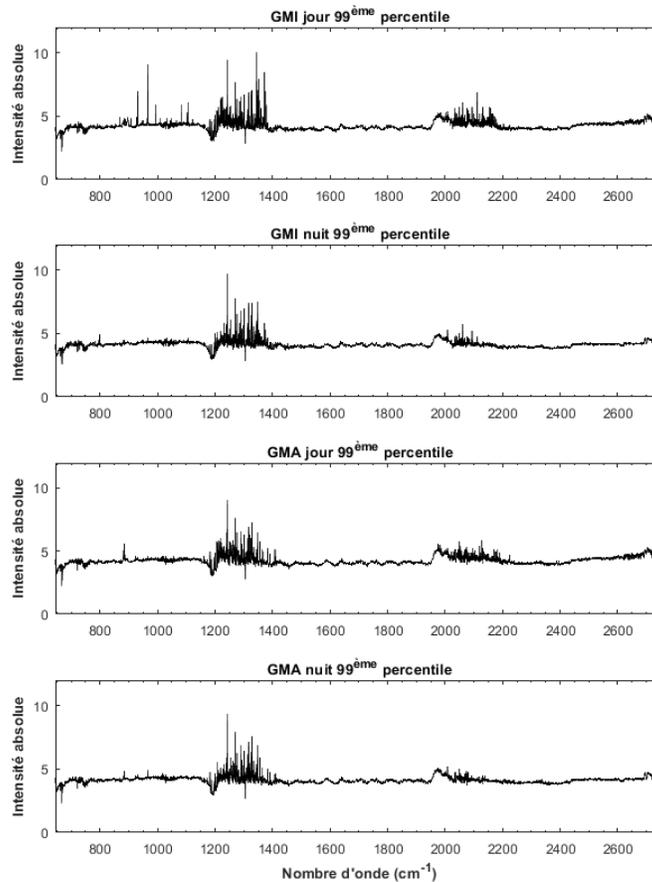


Figure 4.6 : Variabilité de la valeur du 99^{ème} percentile calculé à partir de 21500 GMI et GMA pour chaque canal IASI dans des conditions de jour et de nuit.

Pour les indicateurs caractérisés par une combinaison d'indicateurs fins (pour la détection de différentes signatures spectrales) comme pour NH_3 , SO_2 , CO ou encore HCOOH , on observe que certains pics/raies ont une plus ou moins grande capacité à produire des pics dans les résidus (dans un sens ou dans l'autre). On appelle ces pics, les pics principaux autour desquels on peut retrouver différents pics secondaires (selon les molécules) dont l'absorption est moins intense. Dans le cas du SO_2 , la sensibilité est plus importante dans la bande ν_3 à savoir autour de $1310 - 1390 \text{ cm}^{-1}$. Trois indicateurs ont donc été définis et servent à la détection de SO_2 autour de 1345 cm^{-1} , 1371 cm^{-1} et 1376 cm^{-1} . Dans le cas particulier du SO_2 , comme le pic à 1345 cm^{-1} est retrouvé à la fois dans des cas d'éruptions volcaniques intenses et dans les cas de dégazage de volcans (voir chapitre 5), j'ai choisi de définir le seuil F_3 de l'indicateur SO_2 en utilisant la valeur du 99^{ème} percentile à

1345 cm^{-1} . En appliquant le même principe de définition de F_3 pour autres indicateurs, on obtient le tableau 4.3.

Enfin, certains canaux non associés à un indicateur spectral, peuvent parfois être sélectionnés avec le seuil F_2 . Il peut s'agir d'un canal anormal associé à des artefacts de reconstruction (bruit instrumental, saturation du détecteur) de la méthode IASI-PCA mais il est aussi possible que ces détections soient dues à la contribution de molécules non détectées avec la méthode à ce jour. Un seuil de 10 est défini afin de conserver les détections les plus anormales. Je choisis un seuil de 10 car il correspond à la valeur la plus élevée retrouvée dans la distribution du 99^{ème} percentile du GMI jour (figure 4.6) et permet de définir un seuil très restrictif.

Tableau 4.3: Définition des seuils F_3 , en valeur absolues pour la sélection de pixels outliers. Le seuil pour chaque indicateur est calculé à partir de la valeur du 99^{ème} percentile issus de la distribution statistique des canaux de l'ensemble des GMI et GMA sélectionnés, dans des conditions de jour et de nuit. Le canal le plus sensible à la détection de chaque indicateur est décrit dans la deuxième colonne.

Molécule	Canal (cm^{-1})	GMI jour	GMI nuit	GMA jour	GMA nuit
HCN	712.50	4.42	4.41	4.10	4.06
C ₂ H ₂	729.25	4.01	3.92	3.94	3.88
C ₄ H ₄ O	744	4.13	4.10	3.77	3.76
HONO	790	4.09	4.08	4.18	4.06
NH ₃	967	8.01	4.60	4.46	4.70
C ₂ H ₄	949	4.41	4.39	4.29	4.25
CH ₃ OH	1034	4.35	4.27	4.40	4.30
HCOOH	1105	6.06	4.69	4.47	4.26
HNO ₃	1326	6.93	6.43	6.01	6.38
SO ₂	1345	7.52	4.92	4.38	4.46
CO	2111	6.89	4.72	4.58	4.28
NON DEFINIE	645 - 2760	10	10	10	10

Nous pouvons noter que certains seuils F_3 pour la sélection de pixels outliers sont inférieurs au seuil F_1 et sélectionnent donc en général un granule contenant des signaux "outliers". En effet nous observons que les signaux outliers peuvent être très intenses et dépasser d'un ordre de grandeur les seuils présentés ici. Les seuils F_3 vont plus spécifiquement déterminer le nombre de

pixels enregistrés dans les fichiers de sorties pour la réalisation de cartes. Ces seuils bas permettront par exemple d'observer plus précisément la forme d'un panache.

4.5 Alertes en quasi-temps réel

Un des objectifs de cette thèse est de mettre en place un outil de détection opérationnel. La méthode IASI-PCA-GE est appliquée à l'échelle d'un granule pour permettre la détection en temps quasi réel. En cas de détection d'outliers un envoi de mails d'alerte automatique est mis en place.

Pour l'alerte en quasi-temps réel, deux ensembles d'indicateurs sont définis pour distinguer les alertes de type « feux » et celle de type « évènements volcaniques » (dégazage, éruption). Certaines molécules qui pourraient potentiellement être émises par des complexes industriels ou des évènements autres que les feux et les volcans, peuvent alors être mal catégorisées mais une alerte sera bien envoyée.

Dans un objectif d'optimisation du temps de calcul et de réduction du nombre d'alerte, nous avons choisi d'appliquer de façon automatique et systématique la méthode sur la partie négative des résidus, à savoir le *GMI*. En effet les cas de détection d'outliers en absorption sont plus fréquents et plus intenses (figures 4.1 et 4.3).

Après réception des granules, avec un délai de 2 heures 15 minutes [IASI Level 1: Product Guide, 2019], la méthode est donc appliquée avec les mêmes seuils F_1 , F_2 et F_3 définis dans la section 4.4.

Enfin, la création des différentes cartes associées aux molécules détectées se fait dans un intervalle de 3 minutes, permettant d'envoyer un mail d'alerte contenant alors une illustration du *GMI*, et des cartes de détection des différents absorbants détectés comme montré dans la figure 4.5, illustrant un exemple de détection reçue le 04/09/2022 au-dessus des états Unis.

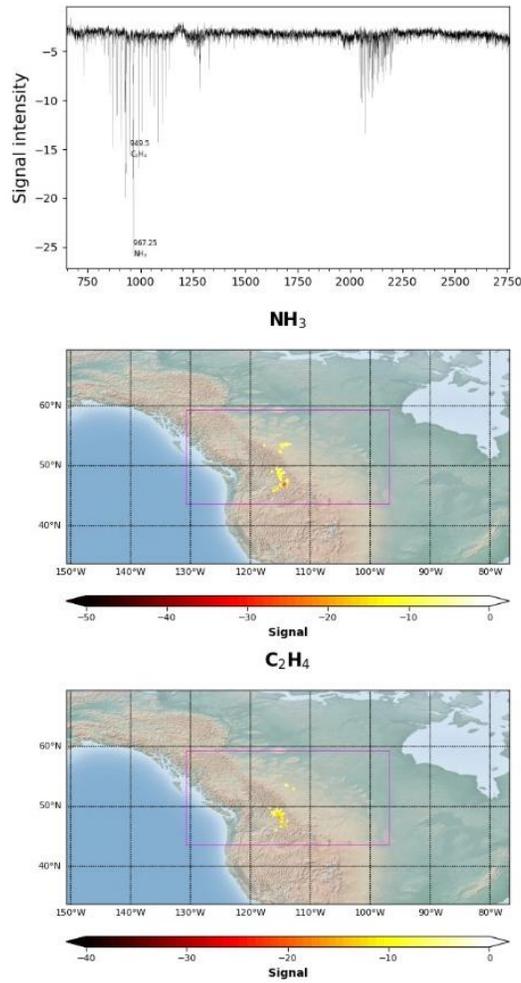


Figure 4.5 : Exemple d'alerte reçue le 04/09/2022, correspondant à un cas de feux observée par IASI/Metop-B au-dessus des Etats-Unis et du Canada. En haut le GMI calculé dans le granule délimité par le rectangle en magenta ; au milieu et en bas la distribution spatiale des indicateurs de NH_3 et C_2H_4 .

Chapitre 5

5 Les éruptions volcaniques

Les éruptions volcaniques peuvent être terrestre ou sous-marines et sont causées par la dynamique des plaques tectoniques ou par les points chauds. On parle de volcanisme effusif lorsque l'éruption est caractérisée par des coulées de laves et de volcanisme explosif lorsque l'éruption est caractérisée par des projections de matériaux solides et des émissions de gaz en grande quantité. L'importance du suivi des éruptions volcaniques et en particulier des éruptions explosives, vient de l'émission de gaz et éléments solides dangereux comme les cendres pouvant être transportées sur de longues distances (figure 1.3). En effet, outre la toxicité des gaz émis vis-à-vis des populations, les cendres volcaniques présentent un danger pour le trafic aérien. Elles peuvent endommager les surfaces et composants métalliques comme les réacteurs d'avion pouvant alors causer des pertes de puissance allant jusqu'à l'arrêt total des turbines [Hirtl et al., 2020]. La détection rapide et le suivi des éruptions volcaniques est donc un enjeu majeur en termes de santé humaine et d'aviation civile.

Dans ce chapitre, après avoir introduit une méthode de classification des éruptions volcaniques, je présente deux cas d'éruption volcanique pour lesquels j'ai appliqué la méthode IASI-PCA-GE aux luminances IASI/Metop-B:

- L'éruption de forte intensité de l'Ubinas (Pérou) qui a eu lieu en juillet 2019 ;
- L'éruption de faible intensité du Popocatépetl (Mexique) qui a eu lieu en août 2016.

Les résultats présentés seront validés par différents produits de SO_2 à savoir les données de concentrations de SO_2 de IASI-B (données de niveau L2) disponible sur AERIS (<https://www.aeris-data.fr/>) pour les cas de fortes concentrations, au-dessus de 0.5 DU (à savoir que $1 \text{ DU} = 2.6867 \times 10^{24} \text{ molec. cm}^{-2}$) et 5 km [Clarisse et al., 2012] et les données HRI SO_2 avec une sensibilité maximale à 5 km, qui caractérisent l'intensité du signal de SO_2 dans les mesures IASI avec une sensibilité dans la basse troposphère et permettent à la fois d'observer la présence

d'anomalies de SO_2 liées à des éruptions intenses et aux cas d'émissions d'industrielles en basse troposphère [Bauduin et al., 2016].

5.1 Intensité des éruptions volcaniques

L'intensité d'une éruption volcanique est caractérisée par différentes échelles dont l'une d'entre elles est l'échelle VEI (Volcanic Explosivity Index) [Newhall et al., 1982]. Cette échelle caractérise le volume de composés non gazeux émis par une éruption volcanique et est définie de 0 pour les volcans effusifs notamment, à 8 pour les plus volcans explosifs responsables des plus grandes éruptions explosives connues à ce jour (Tableau 5.1). Aussi, elle est dite « ouverte » car les éruptions ne sont pas toujours classées entre 0 et 8 et pourraient par exemple dépasser 8. Cependant, la plupart des éruptions observées depuis le lancement de la mission IASI en 2006 sont des éruptions dont le VEI est situé entre 0 et 3, avec plus rarement des événements extrêmes comme en 2010 les éruptions des volcans Eyjafjallajökull en Islande et Merapi en Indonésie avec des VEI de 4, en 2011 l'éruption du volcan Grímsvötn en Islande avec un VEI de 4 ou encore en 2018 l'éruption du volcan Kīlauea, à Hawaï avec un VEI estimé entre 3 et 4. Les informations associées aux différents volcans et événements volcaniques comme la localisation des volcans ou la classification VEI des éruptions sont disponibles dans des bases de données comme le Global Volcanism Program, Smithsonian Institution (<https://volcano.si.edu/>) mettant à disposition l'historique et des informations sur les différentes éruptions volcaniques observées sur Terre dans un passé récent.

Tableau 5.1 : Echelle VEI et estimation de la fréquence de chaque indice VEI (source USGS).

Indice	Type	Hauteur du nuage de cendre	Volume éjecté	Occurrence (source USGS)
0	Hawaïen non explosif	< 0.1 km	> 1 000 m ³	Fréquent
1	Hawaïen / Strombolien modéré	0.1 - 1 km	> 10 000 m ³	Fréquent
2	Strombolien / Vulcanien explosif	1 - 5 km	> 1 000 000 m ³	10 par an
3	Vulcanien catastrophique	3 - 15 km	> 10 000 000 m ³ par an	Plusieurs par an
4	Vulcanien cataclysmique	Plinien 10 - 25 km	> 0.1 km ³	10 par décennies
5	Plinien paroxysmique	> 25 km	> 1 km ³	1 par décennies
6	Plinien colossal	Ultra-Plinien > 25 km	> 10 km ³	Plusieurs par siècle
7	Ultra-Plinien méga-colossal	> 25 km	> 100 km ³	Plusieurs par millénaire
8	Ultra-Plinien apocalyptique	Super-volcan > 25 km	> 1 000 km ³	2 par 100 000 ans

En outre, les éruptions les plus régulières sont souvent difficiles à classer avec l'indice VEI et Houghton et al. [2013] montre que pour des éruptions volcaniques de type explosif mais peu intenses, l'indice VEI pourrait être étendu afin d'être plus cohérent. On compte parmi ces volcans dont les éruptions ou dégazages réguliers sont de faible intensité (entre 0 et 10 DU) des volcans comme :

- Le Nyiragongo au Congo avec des dégazages de SO₂ [Carn et al., 2004].
- Le volcan Popocatépetl au Mexique avec des émissions de fumerolles régulières [Varley et al, 2003 ; Grutter et al., 2008].
- Les volcans de la péninsule du Kamchatka en Russie [Kearney et al., 2008].
- L'Etna avec son dégazage périodique et ses fontaines de laves [Tamburello et al., 2013 ; Ganci et al., 2012.].

- Les volcans des Andes avec des activités régulières liées à plusieurs volcans dont l'Ubinas ou le Sabancaya dans le sud du Pérou, ainsi que d'autres volcans situés en Argentine, Equateur et Colombie. L'activité volcanique du centre des Andes avec des fumeroles qui ont été étudiées *in situ* et dans l'UV par Stebel et al. [2015] montrent des flux de SO₂ importants qui, en supposant une émission constante, émettrait jusqu'à 22 kT de SO₂ par an pour le volcan Putana. A l'activité volcanique dans la région des Andes qui libère du SO₂, on doit ajouter la contribution à ces émissions de fonderies ou usines métallurgiques dans les Andes centrales [Sagan et al., 2018]. Il y a donc dans cette région une combinaison des émissions d'origines anthropiques et naturelles de dioxyde de soufre qui rendent plus difficile l'attribution de certaines détections.

IASI a une sensibilité élevée pour sonder les altitudes entre 5 et 15 km, qui sont aussi les couches atmosphériques affectées par les émissions de gaz et de particules consécutives aux éruptions. C'est aussi l'altitude de croisière (~11 km) des avions long courrier [Clerbaux et al., 2011]. Par la suite, j'applique la méthode IASI-PCA-GE aux données IASI pour la détection d'émissions de SO₂ à la fois pour des éruptions de type explosif avec injection en haute altitude et pour les éruptions de type effusif (dégazages de volcans).

5.2 Cas de l'éruption Ubinas, Pérou (20 juin 2019)

5.2.1 Contexte

Une éruption volcanique s'est produite en juillet 2019 à Ubinas, au Pérou Venzke [2019]. D'après l'Instituto Geofísico del Perú (IGP), l'activité sismique a augmenté dès le 18 juin 2019 avec des signaux de fracturation de la roche. Après cette date, l'activité sismique est restée élevée pendant tout le mois de juillet. Le 19 juillet, trois éruptions explosives se sont produites avec des panaches s'élevant à 5,8 km d'altitude au-dessus du cratère pour atteindre ensuite une douzaine de km d'après les données satellitaires. Le niveau d'alerte a atteint le troisième niveau le plus élevé sur une échelle de 4 niveaux. Au cours du mois de juillet les émissions de cendres sont restées importantes et plusieurs centaines de personnes ont été évacuées des zones touchées par les chutes de cendres.

Cette éruption a également été observée par IASI les 19, 20 et 21 juillet 2019 comme le montre la figure 5.1 illustrant la distribution spatiale des colonnes totales de SO_2 qui peuvent atteindre 100 DU (Dobson Unit), notamment le 19 juillet 2019.

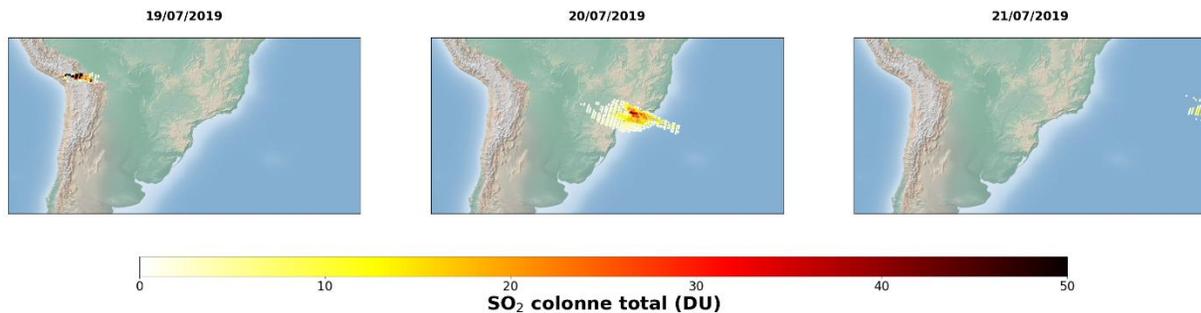


Figure 5.1 : Distribution spatiale des colonnes totales de SO_2 restituées à partir des données de jour IASI/Metop-B pendant l'éruption volcanique d'Ubinas au Pérou le 19, 20 et 21 juillet 2019.

5.2.2 Espèces détectées par la méthode IASI-PCA-GE

La figure 5.2 (en haut) illustre un des pseudo-résidus GMI calculé pour un granule (3 min d'observation IASI) pendant cette éruption volcanique. Sur cet exemple, nous voyons clairement un signal important vers $1300\text{-}1400\text{ cm}^{-1}$ qui correspond à la bande ν_3 du SO_2 comme le montre le tracé du bas illustrant les sections efficaces du SO_2 issues de la base spectroscopique HITRAN. Deux pics caractérisés par une forte intensité atteignant ~ 150 sont situés autour de 1371.5 et 1376 cm^{-1} . Ces canaux spectraux correspondent par ailleurs aux canaux utilisés pour la restitution des concentrations de SO_2 dans la haute troposphère/basse stratosphère ($\sim 14\text{ km}$, 150 hPa) [Clarisse L. et al., 2011], et ils font partie des indicateurs spectraux de SO_2 définis dans la méthode IASI-PCA-GE (cf. chapitre 4).

Une telle détection de SO_2 est bien sûr attendue dans ce cas en raison de la grande quantité de dioxyde de soufre émise par le volcanisme, mais certains autres pics dans le GMI présentent une forte intensité. En effet, nous pouvons également observer des signaux élevés autour de 763 cm^{-1} , 879 cm^{-1} , 896 cm^{-1} , 1325.75 cm^{-1} et 1711.50 cm^{-1} dans le pseudo-résidu GMI. Les sections efficaces d'absorption de HNO_3 dans ses bandes ν_8 , ν_5 , $2\nu_9$, ν_3 et ν_2 illustrées sur la figure 5.2 (plot du bas) semblent suggérer que ces signaux élevés sont liés à la présence d'acide nitrique durant cette éruption. Bien que plusieurs études aient montré la présence de l'acide nitrique dans des

panaches volcaniques [Mather et al., 2004 ; Oppenheimer et al., 2010 ; Voigt et al., 2014], jusqu'à présent les analyses des spectres IASI au-dessous des volcans n'ont jamais permis de détecter cette molécule. Une analyse approfondie a été nécessaire pour confirmer/infirmer la détection de HNO_3 à partir de la méthode IASI-PCA-GE, ce qui est présenté dans la section suivante (section 5.2.3).

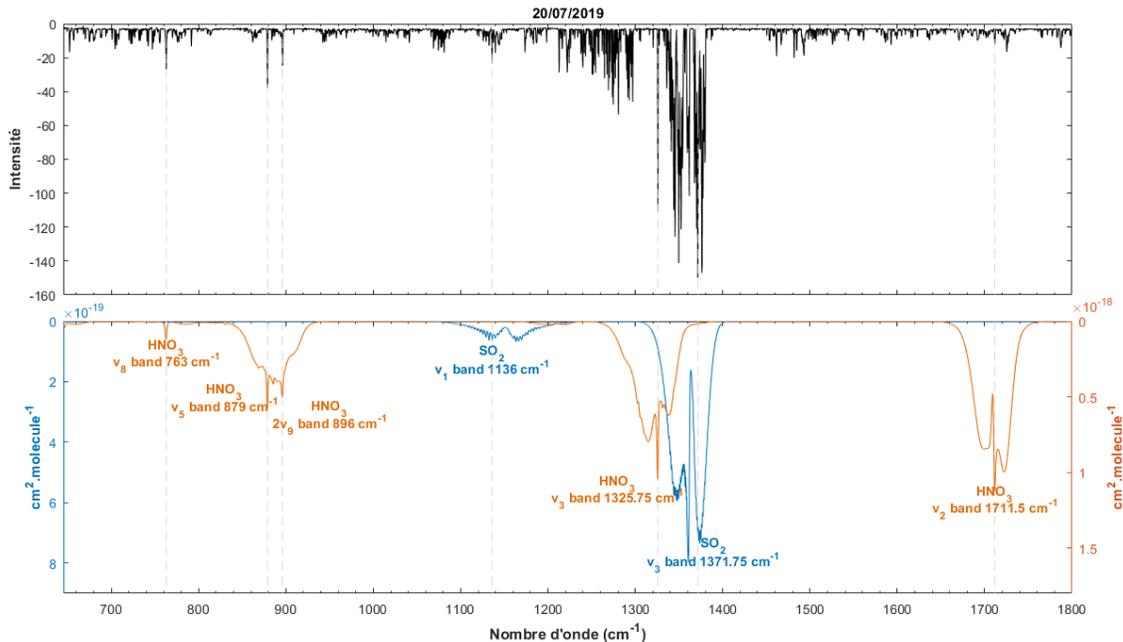


Figure 5.2 : Graphique du haut : Exemple d'un pseudo-résidu GMI calculé pendant une éruption volcanique intense de l'Ubinas au Pérou le 20 Juillet 2019. Données de jour de IASI/Metop-B L1C ; graphique du bas : sections efficaces HITRAN liées à l'absorption de HNO_3 en orange et celles de SO_2 en bleu.

La région spectrale autour de $1200\text{-}1300\text{ cm}^{-1}$ est caractérisée par des signaux d'intensité élevée variant de -25 à -50 dans le GMI suggérant la contribution d'autres espèces. Cependant il reste difficile d'associer des espèces à ces signaux en raison des nombreuses espèces qui contribuent potentiellement dans cette région spectrale. En effet, ces pics peuvent être liés à la contribution d'espèces volcaniques telles que le sulfure d'hydrogène (H_2S), des aérosols sulfatés [Karagulian et al., 2010], ou encore des cendres [Carn et al., 2005]. De plus cette région spectrale correspond au domaine de l'interbande entre la bande 2 et 3 de IASI qui est particulièrement bruité domaine de l'interbande entre les bandes B2 et B3 de IASI, domaine qui est particulièrement bruité.

5.2.3 Analyse approfondie des détections spectrales de HNO_3

Quatre indicateurs spectraux correspondant aux quatre pics observés dans la figure 2.11.h (chapitre 2), ont été définis dans la méthode IASI-PCA-GE pour la détection de HNO_3 (chapitre 4, tableau 4.1). La figure 5.2 montre que la bande ν_3 de HNO_3 et ν_3 de SO_2 se superposent, il est important de vérifier que la méthode IASI-PCA-GE détecte réellement du HNO_3 ou qu'il s'agit d'un artefact de reconstruction.

J'ai tout d'abord analysé deux spectres IASI/Metop-B, l'un mesuré dans le panache volcanique et l'autre en dehors du panache, ce qui est illustré sur la figure 5.3 (a et d). Ces deux spectres sont caractérisés par une ligne de base située autour de 285 K. Si l'on se focalise sur le cas situé en dehors du panache, le résidu est nul (plot en bas-droite), ce qui suggère qu'aucune détection n'est faite par la méthode IASI-PCA-GE. En revanche un IFOV situé dans le panache (figure 5.3 c) montre un résidu caractérisé par de forts signaux, notamment dans la fenêtre atmosphérique autour de 900 cm^{-1} mais également autour de 1300 cm^{-1} , régions spectrales correspondant à l'absorption de HNO_3 . Par ailleurs, il est surprenant de noter la présence de raies en émission vers 900 cm^{-1} dans le spectre reconstruit (figure 5.3.b) alors qu'elles ne sont pas visibles dans le spectre brut (figure 5.3.a). Ce résultat suggère la présence de ces pics est causée par la méthode elle-même et qu'il s'agirait d'artefacts de reconstruction.

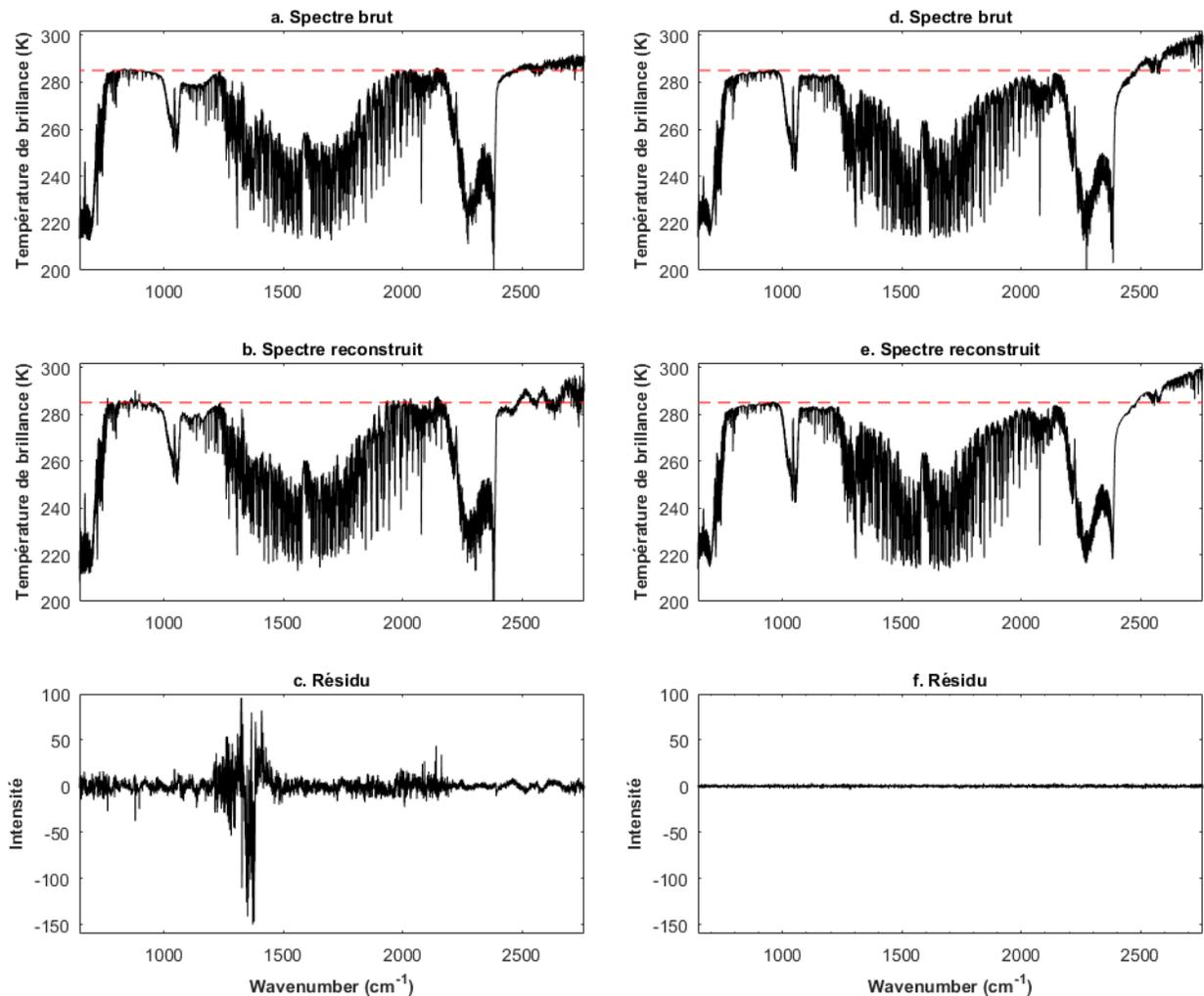


Figure 5.3 : A gauche : exemple de spectre outlier capturé avec IASI-B pendant la journée du 20 Juillet 2019 dans le panache émis par le volcan Ubinas avec (a) le spectre brut, (b) le spectre reconstruit et (c) le résidu associé. A droite : même chose pour un spectre capturé en dehors du panache avec (d) le spectre brut, (e) le spectre reconstruit et (f) le résidu associé.

Pour mieux comprendre les anomalies spectrales observées dans le domaine spectral d'absorption de HNO_3 , j'ai appliqué la méthode développée par De Longueville et al. [2021] sur le spectre localisé dans le panache afin de vérifier qu'une méthode indépendante détecte du HNO_3 . Cette méthode repose sur la création d'une matrice de covariance générée à partir d'un grand nombre de spectres représentatifs de l'atmosphère dans différentes conditions météorologiques. La matrice de covariance sert à représenter le fond de l'atmosphère et peut être interprétée comme une matrice de bruit où la concentration de fond est considérée comme du bruit. La différence

majeure avec la méthode PCA appliquée sur les données IASI est que la méthode de blanchiment s'intéresse à l'ensemble des canaux spectraux (sans normalisation par le bruit instrumental), mais les pondère proportionnellement à leur poids dans la matrice de covariance.

En utilisant la matrice de covariance complète de De Longueville et al. [2021] qui a été construite dans une seule partie du domaine spectral IASI à savoir $645\text{-}1445\text{ cm}^{-1}$, la contribution de HNO_3 est observée dans le spectre blanchi calculé (lignes verticales en pointillés sur la figure 5.4 en bas). En effet, nous observons simultanément quatre pics de forte intensité dans les régions spectrales autour de 763 cm^{-1} , 879 cm^{-1} , 896 cm^{-1} , 1325.75 cm^{-1} avec des intensités plus faibles dans la méthode de blanchiment comparé à la méthode IASI-PCA-GE. La méthode de De Longueville et al. [2021] semble suggérer la présence de HNO_3 dans ce panache volcanique.

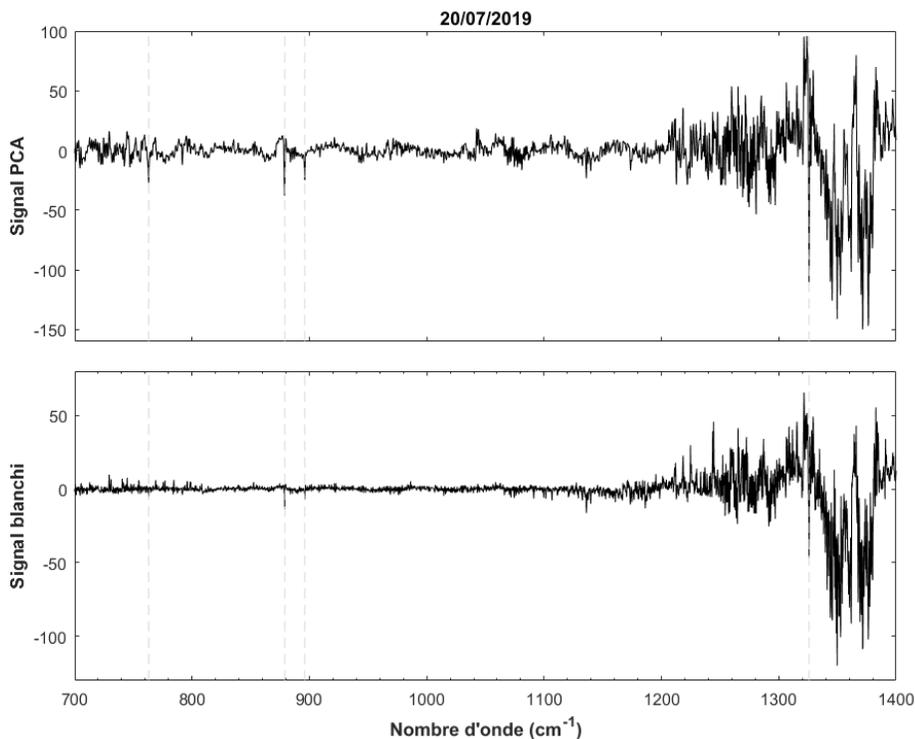


Figure 5.4 : Anomalies observées dans un spectre mesuré le 20/07/2019 avec IASI-B dans un panache volcanique émis par le volcan Ubinas (même spectre que celui de la figure 5.3). En haut : résidu issu de la méthode IASI-PCA ; en bas : spectre blanchi avec la méthode de blanchiment [Longueville et al., 2021].

Cependant, afin de s'assurer que les deux méthodes ne sont pas sensibles à des artefacts spectraux dus à la mauvaise reconstruction du spectre dans domaine spectral autour de $1200\text{-}1400\text{ cm}^{-1}$ qui

est très sensible aux cendres et au dioxyde de soufre, j'ai également appliqué la méthode de blanchiment en ne traitant que le domaine spectral allant de 750 à 950 cm^{-1} . En effet, il est possible que les signaux d'absorption de l'acide nitrique corrélés entre eux, soient causés par un de ces constituants aussi émis dans les éruptions volcaniques. Pour se faire, j'ai extrait un bloc matrice 750-950 cm^{-1} à partir de la matrice de covariance S_e complète allant de 645 à 1445 cm^{-1} et j'ai calculé la matrice de blanchiment W n'utilisant pas le domaine où contribuent les signatures spectrales des cendres et de la bande ν_3 de SO_2 .

La figure 5.5 illustre le spectre blanchi lorsque l'on applique la méthode de blanchiment à partir de la sous-matrice de covariance correspondant au domaine spectral 750-950 cm^{-1} et ne contenant alors que les contributions de HNO_3 dans la fenêtre atmosphérique. Le spectre blanchi ne montre plus les pics de HNO_3 indiquant donc que l'apparition de ces pics était induite par d'autres signaux forts dans la région de 1325 cm^{-1} , à savoir probablement ceux de SO_2 et ceux des cendres volcaniques.

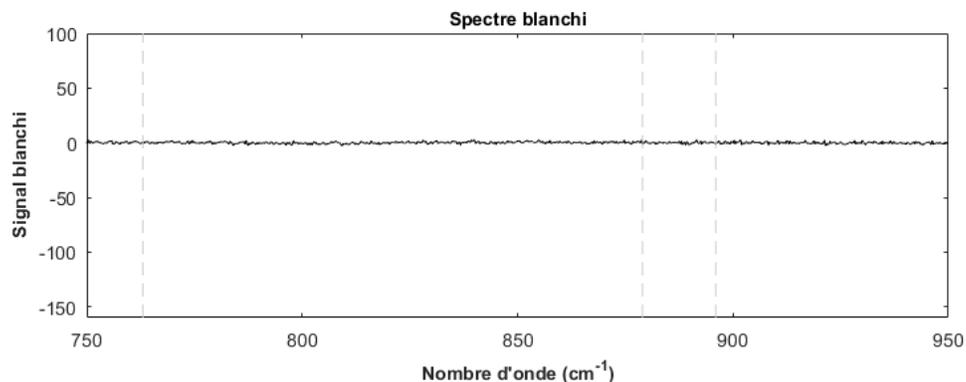


Figure 5.5 : Anomalies observées dans un spectre mesuré le 20/07/2019 avec IASI-B dans un panache volcanique émis par le volcan Ubinas (même spectre que celui de la figure 5.11) en utilisant un bloc matrice de 750 à 950 cm^{-1} .

5.2.4 Distribution spatiale des pixels de détection

Dans ce qui suit on va être amené à présenter et à discuter des cartes dans lesquelles on fera apparaître des pixels particuliers. Par facilité, on utilise ici le mot « pixel » à la place du mot « IFOV » qui devrait être utilisé en toute rigueur.

Après avoir appliqué les seuils statistiques (cf. chapitre 4, section 4.4) au pseudo-résidu GMI, nous pouvons obtenir l'ensemble des pixels de détection associée à la présence de différentes espèces chimiques dans le panache volcanique. La figure 5.6, illustrant la distribution spatiale des pixels de détection associés au SO_2 détectés pendant l'éruption volcanique de l'Ubinas, montre un panache lié à la présence de SO_2 à l'ouest du Brésil.

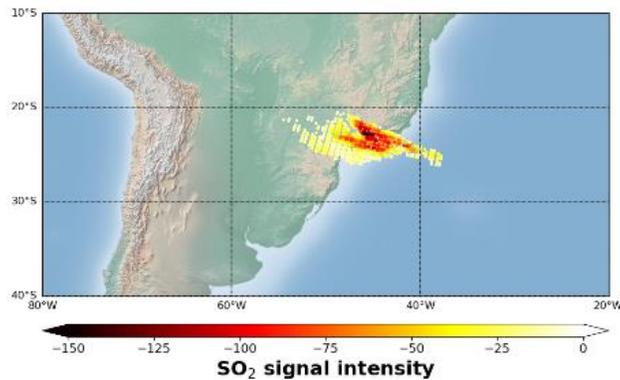


Figure 5.6 : Distribution spatiale des pixels de détections GMI associées au SO_2 pendant l'éruption volcanique de l'Ubinas (Pérou) le 20 juillet 2019. Données de jour de IASI/Metop-B L1C.

5.2.5 Comparaison avec la méthode IASI-PCA

La figure 5.7, illustrant la distribution spatiale des scores de reconstruction définis dans la méthode IASI-PCA associés à différents indicateurs spectraux, montre une détection d'un grand nombre d'espèces dans ce panache, avec principalement le SO_2 mais également HNO_3 . Cependant, comme montré dans la section précédente, la détection de HNO_3 est liée à un artefact de reconstruction. La méthode IASI-PCA détecte des anomalies de reconstruction dans les bandes spectrales associées à ses indicateurs H_2S_1 et HCl_1 , soit pour la détection des composés chimiques H_2S et HCl qui ont déjà été observés par IASI lors d'éruptions volcaniques [Clarisse et al., 2011, 2020]. Ces deux espèces ne sont pas détectées avec la méthode IASI-PCA-GE, car il était difficile de définir un indicateur optimisé pour ces deux espèces. En effet, pour HCl les pics d'absorption dans la région autour de 2700 cm^{-1} (figure 5.4) ne sont pas retrouvés dans les résidus spectraux. Cela suggère que le fort bruit dans le domaine spectral de la bande B3 de IASI, ne permet pas d'observer un signal de HCl . Pour H_2S la difficulté de créer un indicateur précis et fiable vient de la largeur de sa bande d'absorption entre 1000 et 1500 cm^{-1} créant des interférences spectrales avec SO_2 autour de 1100

cm^{-1} ou autour de 1350 cm^{-1} , ainsi qu'avec les cendres volcaniques ou d'autres espèces comme H_2SO_4 autour de $1200 - 1300 \text{ cm}^{-1}$. Aussi, dans les cas d'éruptions intenses avec la présence de cendres notamment, on observera des perturbations sur de larges bande spectrales. Cela implique que les détections observées avec la méthode IASI-PCA pour les deux indicateurs définis dans les région spectrales $1130-1135 \text{ cm}^{-1}$ et $2696-2705.75 \text{ cm}^{-1}$, associés aux domaines d'absorption H_2S ou HCl , respectivement, ne sont pas attribuables à l'absorption de ces deux molécules.

Des composés fluorés comme l'hexafluorure de soufre (SF_6) et le tétrafluorure de carbone (CF_4) sont également détectés par la méthode IASI-PCA. Cependant ces espèces fluorées sont principalement d'origine anthropique (pour la première espèce) et partiellement naturelle (pour la deuxième espèce) par le dégazage de la croûte terrestre. D'après Deeds [2008] leur présence dans les panaches volcaniques ne proviendrait pas du volcanisme en lui-même mais de l'air ambiant ascendant entraîné avec les gaz, et le volcanisme ne représenterait donc pas une source de SF_6 ou CF_4 .

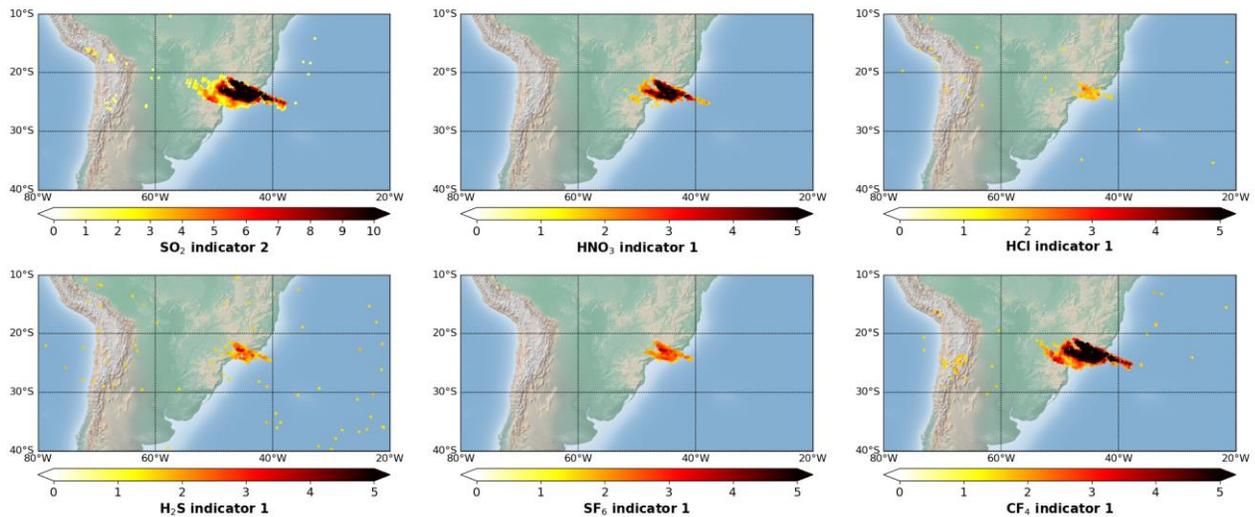


Figure 5.7 : Distribution spatiale des scores de reconstruction définis dans la méthode IASI-PCA (méthode régulière) associées aux indicateurs SO_2 , HNO_3 , HCl , H_2S , SF_6 , et CF_4 pendant l'éruption volcanique de l'Ubinas (Pérou) le 20 juillet 2019. Données de jour de IASI/Metop-B L1C.

Il est important de rappeler que dans la méthode IASI-PCA les indicateurs sont définis sur des domaines spectraux plus ou moins larges et peuvent donc inclure la contribution d'autres espèces. Par exemple, les indicateurs SF_6_1 et CF_4_1 , sont définis respectivement sur les domaines

spectraux entre 904.75 et 956 cm^{-1} et entre 1275 et 1290 cm^{-1} (cf. figure 5.8, lignes pointillées), qui couvrent les absorptions d'autres espèces telles que les cendres, aérosols, mais également l'hydrogène sulfuré (H_2S) qui absorbe autour de 1283 cm^{-1} . Aussi j'ai montré précédemment la difficulté d'attribuer un indicateur à une molécule autour de 1200-1300 cm^{-1} , région spectrale associée à l'absorption d'un grand nombre d'espèces interférentes particulièrement dans les cas d'éruptions volcaniques intenses.

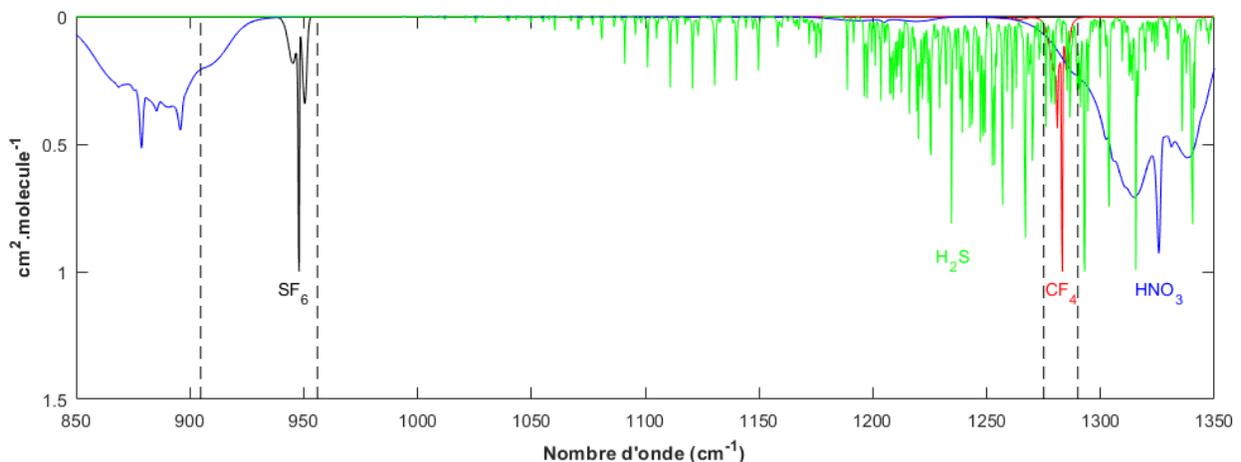


Figure 5.8 : Sections efficaces d'absorption normalisées de SF_6 , CF_4 , H_2S et HNO_3 issues de la base de données spectroscopique HITRAN. Les lignes pointillées délimitent la définition des indicateurs SF_6 et CF_4 respectivement 904.75-956 cm^{-1} et 1275-1290 cm^{-1} .

Ces résultats montrent l'importance d'utiliser des indicateurs fins pour la caractérisation des molécules comme il est fait dans la méthode IASI-PCA-GE afin d'éviter une mauvaise attribution de l'espèce associée à une détection particulière. Cependant cela montre aussi que dans le cas des éruptions volcaniques intenses le nombre d'espèces qui peuvent contribuer sur des domaines assez larges peuvent rendre difficile la caractérisation précise des molécules présentes dans les panaches des volcans.

5.2.6 Transport du panache de SO_2

La figure 5.9, illustrant la distribution spatiale des pixels de détection associés au SO_2 obtenus avec la méthode IASI-PCA-GE (gauche) et des colonnes totales de SO_2 (droite) entre le 20 juillet et le 1er août 2019, montre un panache du SO_2 transporté d'est en ouest depuis le Pérou. On peut noter

qu'après une douzaine de jours les panaches ont presque fait le tour du globe avec des valeurs de plus en plus faibles. Ce transport longue-distance détecté par la méthode IASI-PCA-GE corrobore les restitutions de concentration de SO_2 observées dans les données de niveau 2 de IASI-B. Aussi, il s'explique par le temps de vie du SO_2 plus important au niveau de la stratosphère (plusieurs semaines) comparé à celui observé dans la troposphère (quelques heures à quelque jours). Ces résultats montrent un excellent accord entre les deux méthodes.

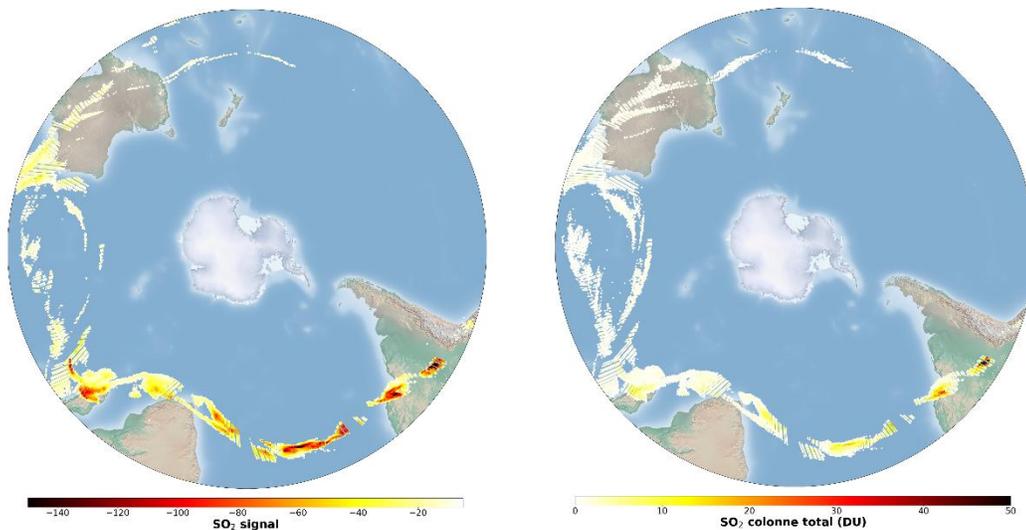


Figure 5.9 : A gauche : Distribution spatiale des pixels de détections associées au SO_2 émis par l'Ubinas du 20 juillet 2019 au 1er Aout 2019. Données de jour et de nuit de IASI/Metop-B L1C. A droite : même chose pour la colonne totale de SO_2 . Données de jour et de nuit de IASI/Metop-B L2.

5.2.7 Conclusions

Cette analyse d'éruption de forte intensité montre que la méthode IASI-PCA-GE permet de détecter précisément la présence de SO_2 émis par le volcanisme pour les événements majeurs et donne quelques informations sur l'altitude du panache en fonction du pic de SO_2 observé. L'identification d'espèces absorbantes entre 1200 et 1300 cm^{-1} reste difficile à cause du mélange des contributions de plusieurs espèces et de celle des cendres comme discuté dans le chapitre 4 (section 4.1).

Le score de reconstruction utilisé pour la détection des espèces dans la méthode IASI-PCA dépend fortement du signal observé dans son domaine de définition. Un indicateur défini sur un large

domaine sera plus sensible aux contributions de plusieurs espèces, en particulier dans le cas d'un événement extrême libérant de nombreux composants dans l'atmosphère et avec un signal fort comme lors d'éruptions volcaniques intenses.

5.3 Cas de l'activité à Popocatépetl, Mexique (21 août 2016)

5.3.1 Contexte

Plusieurs dizaines d'éruptions du volcan Popocatépetl au Mexique se sont produites durant le mois d'août 2016 [Crafford et al., 2017]. Le 21 août 2016, un panache contenant de faibles quantités de cendres a été observé dans la troposphère jusqu'à une altitude de 6.1 km. Il s'agit ici d'une activité mineure du volcan et le panache émis durant cette période peut être défini comme associé à une éruption de "faible intensité". L'intérêt de l'étude d'un tel événement est d'analyser la capacité de la méthode à détecter des épisodes où la concentration de SO₂ dans les basses couches atmosphériques est peu élevée.

Le SO₂ émis lors de cette éruption volcanique n'est pas observé dans les données IASI de niveau 2, car les concentrations de SO₂ sont trop faibles. J'ai par conséquent utilisé le produit HRI (hyperspectral range index) de SO₂ à 5 km qui est un produit sensible aux émissions de SO₂ dans la basse troposphère représentant l'intensité du signal de SO₂ dans les mesures IASI [Bauduin et al., 2016]. La figure 5.10, illustrant la distribution spatiale des HRIs de SO₂ à 5 km obtenus à partir des données de jour IASI/Metop-B, montre clairement la présence de SO₂ au niveau de volcan Popocatépetl bien que très localisé. Je choisis ici de présenter les données de jour car les résultats des journées du 20 et 21 août 2022 suggèrent une activité volcanique faible et très localisée et l'utilisation de données de nuit ne permettraient pas d'observer un panache plus large.

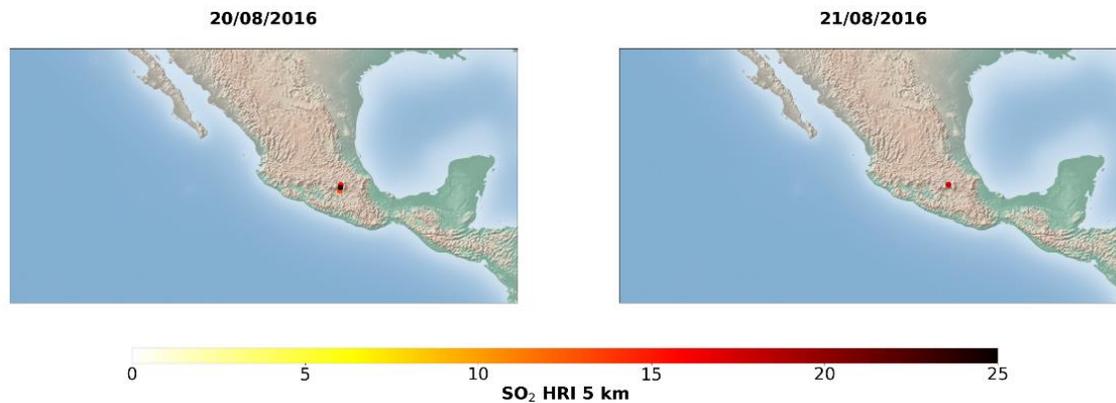


Figure 5.10 : Distribution spatiale des HRIs de SO₂ à 5 km pendant l'éruption volcanique de Popocatépetl (Mexique) le 20 et 21 août 2016. Données de jour de IASI/Metop-B L1C.

5.3.2 Espèces détectées par la méthode IASI-PCA-GE

La figure 5.11 (en haut) illustre un pseudo-résidu GMI calculé à partir des données IASI/Metop-B le 20 août 2016 pendant l'éruption volcanique. Sur cet exemple nous voyons clairement un signal sortant du bruit (-10) autour de 1345.50 cm^{-1} qui correspond à une partie de la branche P de la bande ν_3 du SO₂ comme le montre le plot du bas illustrant les sections efficaces du SO₂ issues de la base spectroscopique HITRAN. Contrairement au cas de l'éruption intense de l'Ubinas (cf. section 5.2), nous n'observons pas de pic issu d'une mauvaise reconstruction autour de 1371 cm^{-1} . L'absence d'un pic intense dans cette région spectrale, associé à une sensibilité au SO₂ élevée dans l'UTLS ($\sim 14 \text{ km}$ ou $\sim 150 \text{ hPa}$) [Clarisse et al., 2011] montre que cette éruption est « troposphérique ». Il est intéressant de mentionner que l'amplitude du signal est inférieure d'un facteur 10 à celle d'une éruption volcanique intense observée comme celle du volcan Ubinas et les pics parasites de HNO₃ ne sont pas visibles.

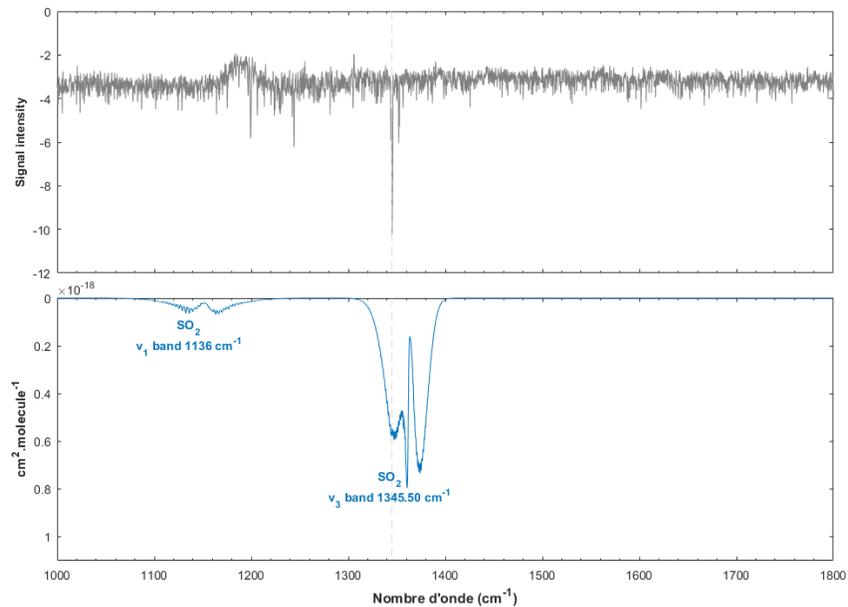


Figure 5.11 : Graphique du haut : Exemple d'un pseudo-résidu GMI calculé pendant une éruption volcanique de faible intensité à Popocatépetl au Mexique le 20 août 2016. Données de jour de IASI/Metop-B L1C ; graphique du bas : sections efficaces HITRAN liées à l'absorption de SO_2 .

5.3.3 Distribution spatiale des pixels de détection

La figure 5.12, illustrant la distribution spatiale des pixels de détection associés au SO_2 détectés pendant l'éruption volcanique du Popocatépetl les 20 et 21 août 2016 avec la méthode IASI-PCA-GE, montre la présence de SO_2 pour un seul pixel. Le résidu correspondant à ce pixel est illustré sur la figure 5.13.c. On peut voir qu'il est responsable du pic observé à 1345 cm^{-1} dans le GMI avec une intensité de -10. On peut noter que dans les données HRI les résultats du 20 août 2016 permettent d'observer 2 autres pixels de SO_2 autour du pixel observé avec la méthode IASI-PCA-GE (cf. figure 5.8). Cela peut s'expliquer par les seuils restrictifs F_3 (cf. chapitre 4, section 4.4.3) définis dans la méthode IASI-PCA-GE. En effet la figure 5.13.f montre un résidu caractérisé par une faible contribution de SO_2 avec un pic autour de 1345 cm^{-1} d'une intensité de -5.5. Ce résidu n'a pas été sélectionné comme outlier par la méthode IASI-PCA-GE, car le seuil F_3 est défini à -7.52.

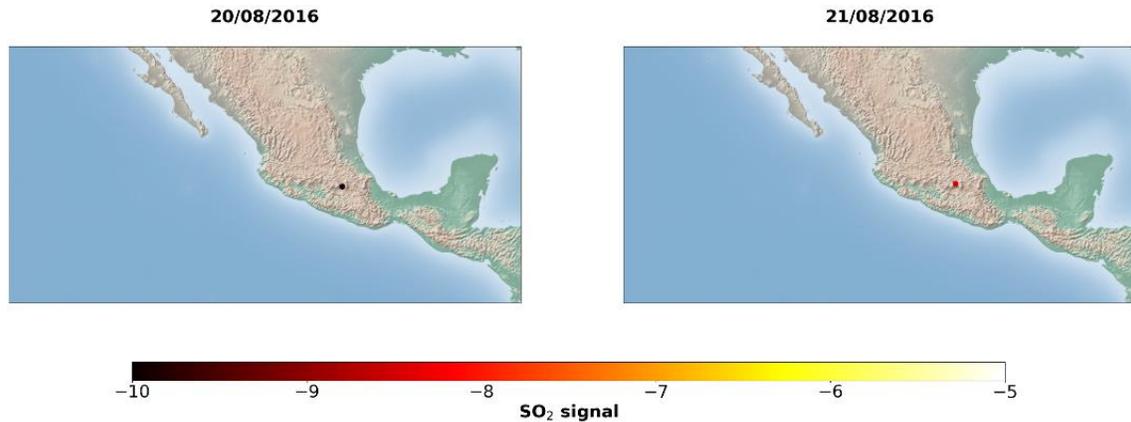


Figure 5.12 : Distribution spatiale de toutes les détections GMI associées à la détection de SO₂ pendant une éruption volcanique de faible intensité à Popocatépetl (Mexique) le 20 et 21 août 2016 avec les données de jour de IASI-B L1C.

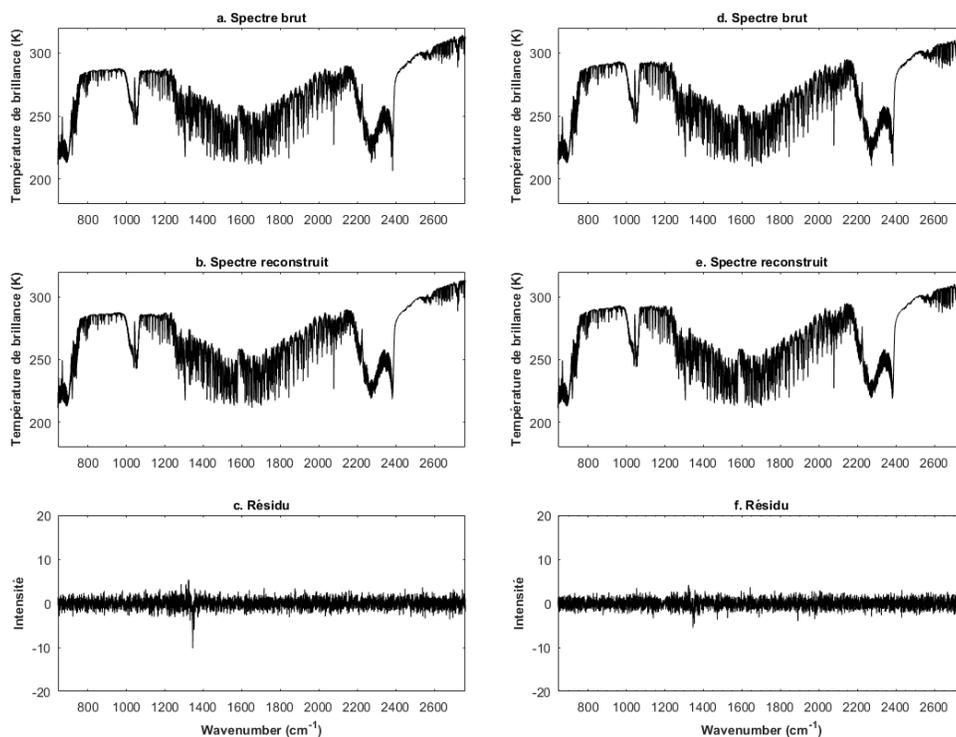


Figure 5.13 : A gauche un exemple de spectre outlier capturé avec IASI-B pendant la journée du 20 août 2016 dans le panache émis par le volcan Popocatépetl avec (a) le spectre brut, (b) le spectre reconstruit et (c) le résidu associé. A droite même chose pour un spectre outlier avec un plus faible signal, non sélectionné par la méthode IASI-PCA-GE avec (d) le spectre brut, (e) le spectre reconstruit et (f) le résidu associé.

5.3.4 Comparaison avec la méthode IASI-PCA

Dans ce cas d'étude, seulement quelques canaux situés autour de 1345 cm^{-1} sont associés à un signal fort. Parmi les six indicateurs spectraux de SO_2 définis dans la méthode IASI-PCA, seuls trois indicateurs peuvent permettre la détection de SO_2 : SO_2_2 , SO_2_3 et SO_2_6 dont la définition spectrale est respectivement de $1320\text{-}1338 \text{ cm}^{-1}$, $1338\text{-}1355 \text{ cm}^{-1}$ et $1344.75\text{-}1345.25 \text{ cm}^{-1}$. La figure 5.14, illustrant la distribution spatiale des scores de reconstruction définis dans la méthode IASI-PCA associés à trois indicateurs spectraux du SO_2 , montre une détection de SO_2 très localisée avec les indicateurs SO_2_2 et SO_2_3 , comme pour la méthode IASI-PCA-GE. La détection obtenue grâce à l'indicateur SO_2_2 peut être expliquée par le pic de faible intensité observé dans les résidus autour de 1331 cm^{-1} (cf. figure 5.11, plot du haut). En revanche, le cas de détection associée à l'indicateur SO_2_6 est très bruité ce qui montre qu'il est difficile de définir un indicateur efficace dans cette région spectrale.

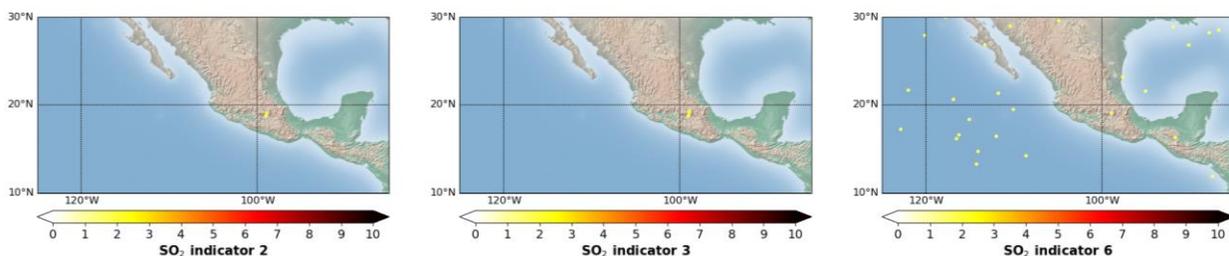


Figure 5.14 : Distribution spatiale des scores de reconstruction définis dans la méthode IASI-PCA (méthode régulière) associées à deux indicateurs relatifs à SO_2 , pendant l'éruption volcanique de faible intensité à Popocatepetl (Mexique) le 20 août 2016. Données de jour de IASI/Metop-B L1C.

5.3.5 Conclusion

En cas d'éruption volcanique de faible intensité, les données IASI SO_2 de niveau L2, principalement sensibles à l'UTLS avec des canaux d'étude situés dans la bande ν_3 autour de 1371.50 , 1371.75 , 1384.75 , 1385.00 cm^{-1} [Clarisse et al., 2011], ne permettent pas une détection robuste. Par contre, la méthode IASI-PCA-GE et la méthode HRI SO_2 sont en très bon accord, ce qui montre que la méthode IASI-PCA-GE permet d'accéder de manière fiable à des événements de faibles intensités. Un très bon accord est également trouvé entre la méthode IASI-PCA et IASI-PCA-GE, ce qui montre que ces deux méthodes permettent de détecter de faibles éruptions/dégazages. Ces détections

sont possibles grâce au canal à 1345 cm^{-1} dans la bande ν_3 , qui présente le signal le plus intense lors de la présence de pics de SO_2 dans les résidus de reconstruction.

5.4 Création d'une archive d'éruptions volcaniques

La création d'archives des émissions de dioxyde de soufre est intéressante car elle permet de faire des analyses de tendances. On peut faire apparaître les principaux volcans actifs, les volcans ayant entraîné les plus fortes anomalies au cours de la série temporelle étudiée. De plus cette analyse permet de faire apparaître certains pics qui ne sont pas associés à des événements volcaniques mais à des émissions anthropiques. Cela permet de faire ressortir la contribution des émissions anthropiques en plus de celle liée au volcanisme et d'identifier certaines régions très polluées (comme on le fera plus en détail dans le chapitre 7).

Dans cette section je m'intéresse aux détections observées sur l'ensemble de la série temporelle IASI-B. Le choix de l'utilisation des données IASI-B est fait principalement pour des raisons de temps de calcul, mais aussi car les données de IASI-B sont disponibles depuis 2013 et que l'instrument est toujours opérationnel tandis que IASI-A a été arrêté en fin 2021 ou que IASI-C est en vol depuis seulement 2018. J'ai appliqué la méthode IASI-PCA-GE à l'ensemble des données de IASI-B et j'ai comparé les valeurs extrêmes journalières calculées à partir des méthodes IASI-PCA-GE et HRI SO_2 à 5 km. Une seule détection journalière est donc conservée pour chaque méthode au cours de la période 2013-2022.

La figure 5.15 illustre les séries temporelles sur tout le globe des extrema journaliers issus du produit IASI-PCA-GE SO_2 et du produit HRI SO_2 à 5 km avec IASI/Metop-B pour la période 2013-2022. Une combinaison d'indicateurs fins de SO_2 autour de 1345 , 1371 et 1376 cm^{-1} a été utilisée pour la détection par la méthode IASI-PCA-GE. On peut voir que de manière générale les deux méthodes sont en accord, et montrent généralement une détection chaque jour, le plus souvent de faible intensité. Par ailleurs, on peut voir avec les deux méthodes des pics d'intensité élevée le 22 avril 2015 avec l'éruption du Calbuco [Sennert, 2015], le 25 mai 2015 avec les éruptions du volcans Wolf [Sennert, 2015b], le 22 juin 2019 avec l'éruption du Raikoke [Sennert, 2019] ou encore le 19 juillet 2019 correspondant à l'éruption de l'Ubinas [Sennert, 2019b] présentée à la section 5.2. Il est intéressant de noter que les pics très intenses observés sont suivis par des pics

de faible intensité les jours suivants, suggérant le transport des panaches sur plusieurs jours/semaines/mois. On peut par exemple observer dans la figure 5.15 une décroissance des deux courbes d'intensité pour HRI SO₂ et pour IASI-PCA-GE SO₂ d'avril à mai 2015, expliquée par la lente décroissance des anomalies de SO₂ au fur et à mesure du transport du panache issu de l'éruption du volcan Calbuco en 2015. Ce transport de dioxyde de soufre pendant près d'un mois est en accord avec les observations faites par d'autres instruments comme GOME-2 pendant la période post éruption [Pardini et al., 2018].

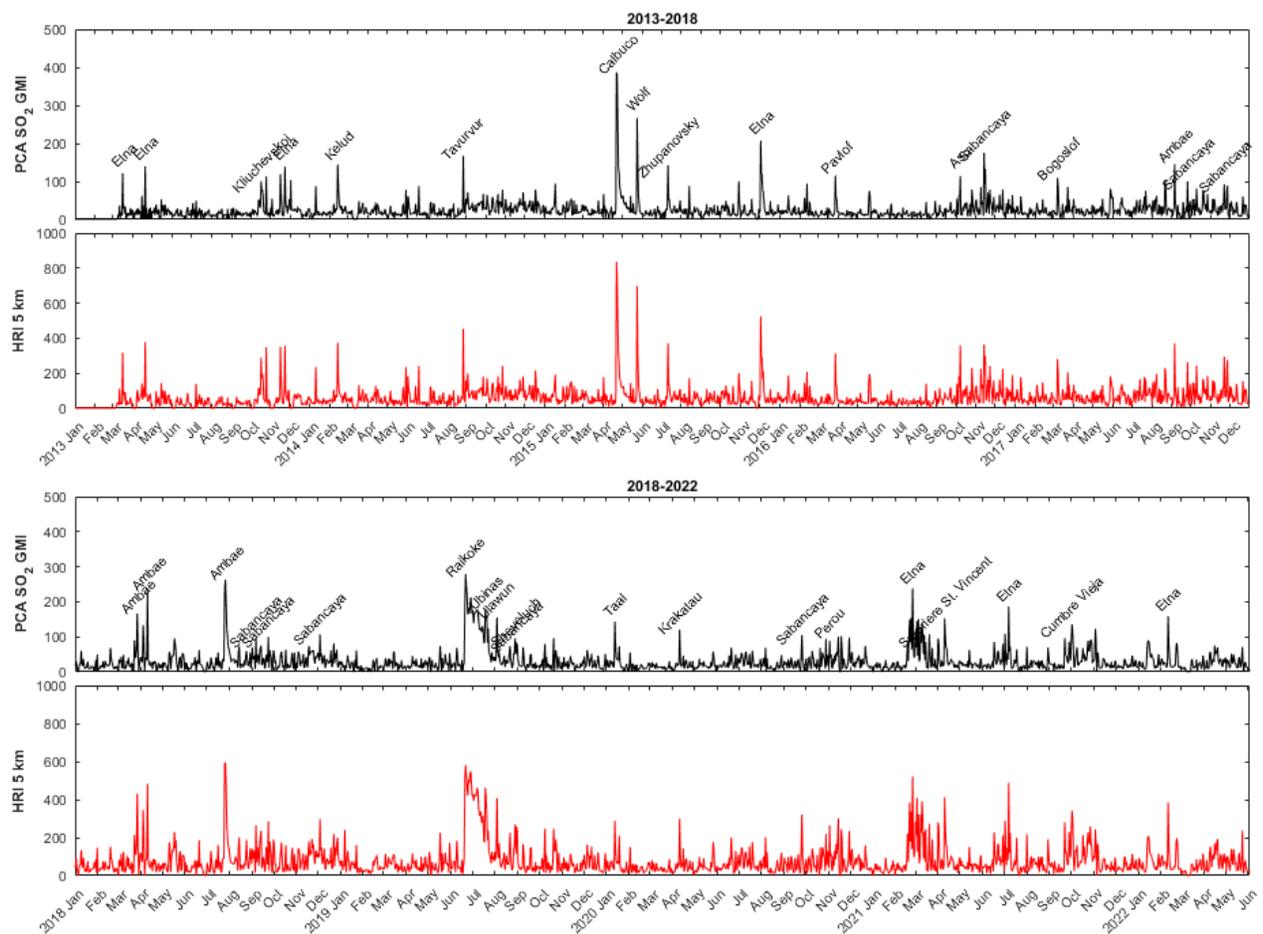


Figure 5.15 : Série temporelle des extrema journaliers issus du produit IASI-PCA-GE SO₂ (en noir) et du produit HRI SO₂ à 5 km (en rouge) entre 2013 et 2018 (en haut) et entre 2018-2022 (en bas) à partir des données LIC de jour de IASI-B.

Une comparaison statistique des deux produits PCA-IAS-GE SO₂ et HRI SO₂ colocalisés a été réalisée pour la période 2013-2022, et est représentée sur la figure 5.16. Globalement, l'accord entre les

deux produits est excellent, avec un coefficient de détermination de 0.95 pour plus de 2800 colocalisations (sur 3372 jours). Ces résultats montrent la capacité et la sensibilité de la méthode IASI-PCA-GE à détecter des événements associés à des émissions de SO₂.

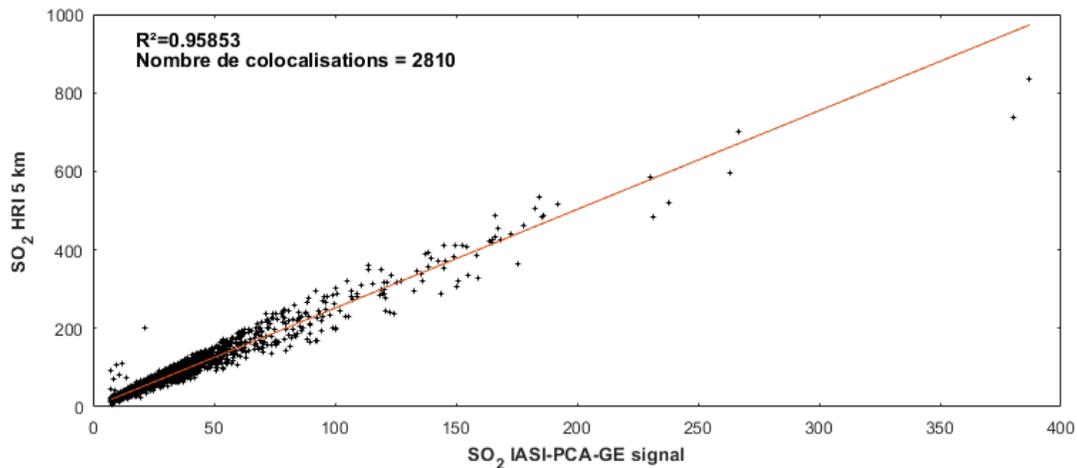


Figure 5.16 : Corrélations entre les données colocalisées de HRI SO₂ à 5 km et IASI-PCA-GE SO₂ entre 2013 et 2022.

Une autre représentation des corrélations entre les deux méthodes est illustrée sur la figure 5.17. Il s'agit d'un diagramme de dispersion illustrant la relation entre les latitudes des extrema journaliers calculés pour le produit HRI SO₂ à 5 km et le produit IASI-PCA-GE SO₂. Dans cette représentation les extrema journaliers sont classés par couleur selon l'intensité des données HRI SO₂, avec les anomalies les plus faibles en bleu et les plus fortes en rouge. Notons qu'on obtient le même type de résultats lorsque le classement est fait selon les intensités IASI-PCA-GE. La diagonale représente les données colocalisées tandis que les autres points sont associés à des différences de localisation des maxima journaliers (~500). On observe que les données colocalisées, situées sur la diagonale, sont associées aux événements les plus intenses (sur base des données HRI SO₂ représentée en rouge). En revanche, les pixels non colocalisés sont associés à des éruptions de faible intensité (sur base des données HRI SO₂ représentées en bleu). Les lignes en pointillés mettent en évidence certaines latitudes associées à des non-colocalisations. En recroisant ces latitudes avec les longitudes associées aux extrema journaliers, on peut faire apparaître des zones géographiques associées à des émissions de SO₂ d'origine volcanique. En effet, ces lignes permettent de mettre en évidence la localisation des volcans Sabancaya [Moussallam et al., 2017],

Ambae dans l'arc insulaire du Vanuatu [Ani et al., 2012], Colima et Popocatepetl au Mexique [Varley et al, 2003] ou encore le volcan Kilauea [Garcia et al., 2021] respectivement à 15.8°S, 15.4°S, 19.5°N, 19.0°N et 19.4°N. Les différences de localisation observées autour des latitudes 38°S, 37.5°N, 25.2°S et 56°N peuvent être associées aux volcans Copahue [Reath et al., 2019], Etna [Tamburello et al., 2013 ; Ganci et al., 2012] à des volcans Chiliens et des volcans dans la région du Kamchatka. En revanche, des détections de SO₂ sont situées vers 30°N et 65°N pour les deux méthodes, correspondant respectivement aux régions de Sarcheshmeh Copper en Turquie et Norilsk en Russie. Il s'agit de deux régions connues pour leurs émissions de dioxyde de soufre [Bauduin et al., 2016]. Sarcheshmeh Copper est l'un des plus grands complexes industriels miniers de cuivre qui émet environ 789.9 tonnes de SO₂ par jour [Amirtaimoori et al., 2014], et la région de Norilsk est connue pour ses industries métallurgiques et minières [Bauduin et al., 2016]. Ces résultats montrent la capacité des deux méthodes pour la détection d'émissions de SO₂, d'origine non seulement volcanique mais également industrielle.

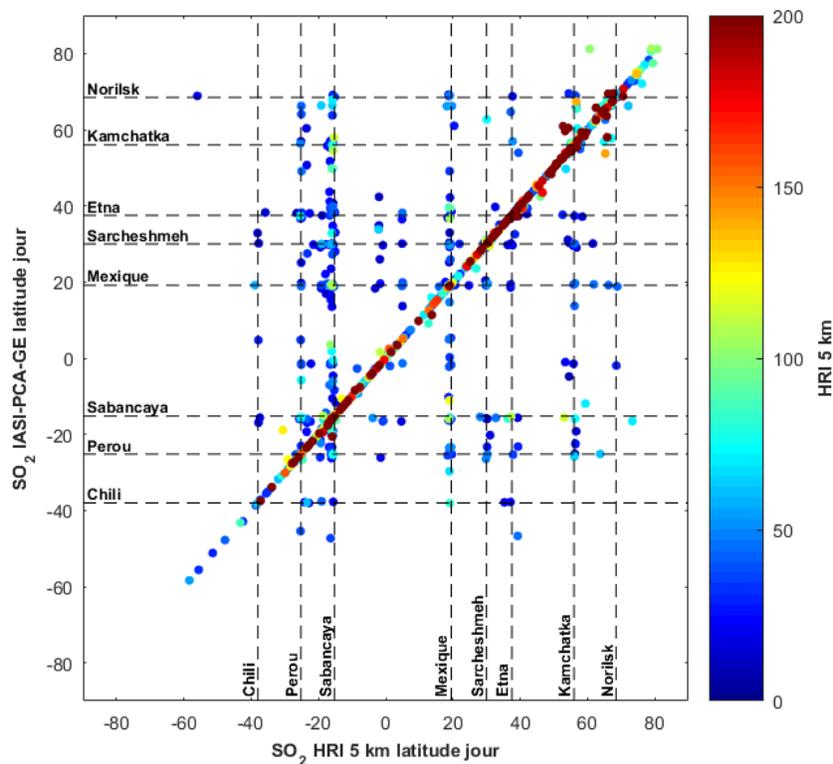


Figure 5.17: Comparaison des latitudes correspondants aux maximas journaliers de SO₂ détectés dans les produits IASI-PCA-GE et HRI SO₂ à 5 km entre 2013 et 2022 avec les données de jour de IASI-B L1C. Les lignes pointillées indiquent les latitudes pour lesquelles il n’y a pas de colocalisation entre les deux méthodes.

5.5 Conclusions générales sur les éruptions volcaniques

Dans ce chapitre, l’analyse de deux cas d’éruption volcanique, le cas d’Ubinas (Pérou) de forte intensité et le cas du Popocatépetl (Mexique) de faible intensité a montré que la méthode IASI-PCA-GE est capable de détecter les émissions de SO₂ issues d’éruptions volcaniques d’intensité variable.

La comparaison du produit IASI-PCA-GE SO₂ avec le produit IASI HRI SO₂ sur près de 10 ans de données a montré un excellent accord entre les deux produits avec un coefficient de détermination de plus de 0.95. Cependant, pour des événements de faible intensité, des différences subsistent entre les deux approches, qui sont principalement associées à des différences dans la méthode de calcul. Ces désaccords ont permis de montrer que les deux méthodes peuvent détecter des événements d’origine anthropique associé à la présence d’industries (e.g. région de Sarcheshmeh Copper ou Norilsk). Le chapitre 7 discutera plus en détail de ces détections de pollution anthropique.

Dans le cas de très fortes anomalies associées à des éruptions intenses, des artefacts de reconstructions peuvent être induits par la mauvaise reconstruction de certaines espèces, notamment par celle de l’acide nitrique qui absorbe dans plusieurs régions à la fois en particulier dans une région spectrale où l’absorption de SO₂ peut être intense. Le mélanges des contributions de plusieurs espèces émises simultanément lors d’une éruption volcanique rendent la détection d’espèces (autres que le SO₂) particulièrement complexe. Il faudrait aussi améliorer la robustesse des détections ou encore de supprimer les artefacts de reconstruction.

Chapitre 6

6 Les feux

Les feux sont une source importante d'espèces chimiques et d'aérosols dans l'atmosphère au niveau global [Lobert et al., 1990]. L'occurrence des incendies sur Terre est très fréquente avec des évènements de plus en plus récurrents tels que les feux dus à l'agriculture notamment en Afrique avec la « culture sur brulis », les feux de brousse australiens ou les feux californiens se produisant chaque année [Li et al., 2021]. La diversité des molécules émises et leurs différents impacts sur la santé en tant que polluants primaires ou précurseurs d'espèces polluantes mais aussi sur le climat avec l'émission de gaz à effet de serre, rendent primordiale l'étude de ces évènements.

Grâce aux détections IASI-PCA-GE nous montrons dans ce chapitre la capacité de la méthode à observer différentes molécules émises par les feux, permettant ainsi le suivi de panaches de polluants. L'exemple de la figure 6.1 permet d'illustrer le transport d'un panache de HCN qui a parcouru la quasi-totalité du globe dans l'hémisphère sud pendant l'année 2015 avec des concentrations très élevées essentiellement au-dessus de l'Indonésie (région source des feux). Cette année 2015 a par ailleurs été marquée par un évènement El Niño particulièrement intense avec de fortes anomalies de température et un climat très sec. D'après Field et al. [2016], cette période a constitué la majeure partie de la saison des feux de 2015, avec 85 % du total des détections annuelles de feux et les feux d'Indonésie sont identifiés comme particulièrement étendus, longs et intenses avec énormément de monoxyde de carbone émis.

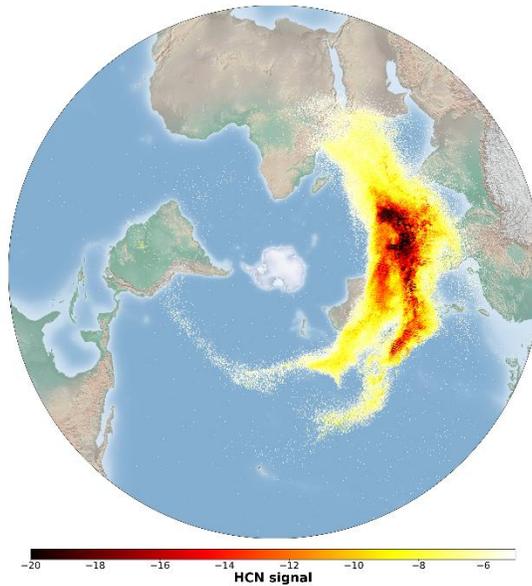


Figure 6.1 : Distribution spatiale de l'ensemble des détections de HCN avec IASI-PCA-GE pendant les feux d'Indonésie du 1^{er} septembre au 1^{er} décembre 2015 à partir des spectres L1C de jour et de nuit de IASI/Metop-B.

Dans ce chapitre, après avoir introduit les caractéristiques des émissions lors de feux, je présente deux cas de feux de forte intensité de par la surface brûlée ou l'altitude des panaches étudiés. Ces feux ont émis un grand nombre d'espèces chimiques, pour lesquels j'ai appliqué la méthode IASI-PCA-GE aux luminances IASI/Metop-A et -B:

- Les feux d'Australie qui ont eu lieu fin décembre 2019 / début janvier 2020 (analyse avec IASI/Metop-B), notamment la journée du 1^{er} janvier 2020.
- Les feux de Russie qui ont eu lieu durant l'été 2010 (analyse avec IASI/Metop-A), notamment le cas du 3 août 2010.

6.1 Caractéristiques des feux

La formation et l'évolution des panaches de fumée dépend des conditions météorologiques. Localement ce sont tout d'abord les conditions de température et d'humidité qui vont régir la formation potentielle d'un climat local d'air sec et instable à l'origine des feux [Haines, 2011]. Par ailleurs, on peut distinguer trois principaux effets pour la dispersion des panaches de feux [Cardil et al., 2016] : les vents locaux, la topographie et la nature des différents matériaux brûlés [Lecina-

Diaz et al., 2014; Duane et al., 2015]. Enfin ce sont les processus d'advection horizontale sous le vent, de mélange vertical, d'hydratation et de précipitation qui régissent le transport et le dépôt final des particules de fumée.

Aujourd'hui, grâce aux données spatiales, il est possible d'accéder à plusieurs paramètres permettant la caractérisation d'un feu [Ichoku et al., 2012] :

- La taille du feu actif et le dégagement d'énergie associé, observé par exemple avec MODIS ont permis de se rendre compte d'une corrélation entre le pouvoir radiatif d'un feu (en anglais FRP : fire radiative power) et l'altitude d'injection des espèces résultant de la combustion [Val Martin et al., 2010]. En effet, les feux émettant dans la troposphère libre sont caractérisés par des anomalies de températures plus importantes que ceux localisés dans la couche limite.
- La surface brûlée par un feu.
- Les caractéristiques physiques du panache de fumée comme sa taille ou son altitude d'injection. On peut observer que les altitudes des panaches peuvent différer selon les régions du monde et certaines ne dépassent pas quelques centaines de mètres. Cependant dans certains cas exceptionnels, le phénomène de pyroconvection peut transporter un panache verticalement jusqu'à des altitudes de plusieurs km.
- La distribution des aérosols et les propriétés des particules.
- Les concentrations des espèces émises par les feux.

La méthode IASI-PCA-GE appliquée sur les données d'observation globale fournies par IASI le jour et la nuit, permet de caractériser les feux à partir de variables comme la taille du panache et les intensités du signal de détection qui donne une première information sur les anomalies de concentration des gaz à l'état de trace impliquées dans les feux.

6.2 Cas des feux d'Australie (2019-2020)

6.2.1 Contexte

En Australie, des incendies connus sous le nom de « bushfires » (feux de brousse) se produisent chaque année. L'association entre le réchauffement climatique et le manque de précipitations de

2019-2020 a favorisé les incendies qui ont été particulièrement intenses avec des feux couvrant plus de 186 000 km². Les premiers jours de janvier 2020 ont été la période la plus intense des feux, avec de forts épisodes de pyroconvection [Kablick et al., 2020]. Les données ACE-FTS ont montré que la pyroconvection particulière à cet événement intense a permis aux panaches de molécules d'atteindre la basse stratosphère vers 15-16 km [Boone et al., 2020] allant rapidement jusqu'à des altitudes autour de 31 km [Kablick et al., 2020] entre le 29 décembre 2019 et le 4 janvier 2022. De nombreuses molécules telles que CO, C₂H₆, C₂H₂, HCN, HCOOH, CH₃OH, PAN, CH₃COCH₃, CH₃CN ont été observés par l'instrument ACE [Boone et al., 2020]. Toutes ces molécules, à l'exception de C₂H₂, CH₃COCH₃ et CH₃CN et ont également été observés par IASI le 5 janvier 2020 en utilisant la méthode du blanchiment [De Longueville et al., 2021]. Ce jour-là, d'autres molécules ont été détectées par la méthode de De Longueville et al. [2021], notamment C₄H₄O, l'acide acétique (CH₃COOH) et le glycolaldéhyde (HOCH₂CHO). Des contributions liées à NH₃ et à HONO ont pu être observées dans les panaches fraîchement émis [Theys et al., 2020], mais pas dans les panaches advectés en raison de la courte durée de vie des espèces correspondantes.

6.2.2 Espèces détectées par la méthode IASI-PCA-GE

La figure 6.2 (en haut) illustre un exemple de GMI calculé dans un panache de feu transporté au-dessus de la Nouvelle Zélande/océan Pacifique le 1^{er} janvier 2020. Il est caractérisé par des pics d'absorption autour de 2050 - 2200 cm⁻¹ avec un signal faible (-10) relatif à la présence de CO, et d'autres structures montrent l'absorption de molécules qui sont la signature des feux: HCN avec un pic à 712.5 cm⁻¹, C₄H₄O autour de 744.5 cm⁻¹, C₂H₂ à 729.25 cm⁻¹, C₂H₄ à 949 cm⁻¹, HCOOH à 1105 cm⁻¹ et 1777 cm⁻¹ et CH₃OH à 1034 cm⁻¹. Les molécules NH₃ ou encore HONO ne sont pas détectées, car ce panache est alors âgé de plusieurs jours. Cela confirme la détection sans ambiguïté de CH₃OH, car aucun pic secondaire associé à l'absorption de NH₃ n'est présent autour de 1034 cm⁻¹, région spectrale spécifique à CH₃OH (cf. chapitre 2, section 2.3.2.2).

Aucun signal caractéristique de la présence CH₄ ou CO₂ (qui pourrait apparaître en cas d'incendie) n'est trouvé dans le GMI. Ce résultat est attendu, car la durée de vie du méthane dans l'atmosphère est d'environ 8-12 ans et le dioxyde de carbone est considéré comme pratiquement inerte [Dentener et al., 2001] avec un temps de vie de plusieurs centaines d'années. Ils sont tous deux constamment présents dans les concentrations de fond de l'atmosphère et la méthode IASI-PCA

permet de bien représenter la variabilité de ces espèces avec une bonne reconstruction de ces signatures, mais ne permet pas de détecter de petites variations de concentrations pour des gaz très abondants.

D'autres structures spectrales sont observées vers $1285\text{-}1300\text{ cm}^{-1}$, correspondant au domaine d'interbande entre la bande B1 et B2 de IASI, et l'attribution d'une ou plusieurs molécules est compliquée. Vers $1184, 1187, 1198\text{ cm}^{-1}$ on peut observer une structure similaire à celle observée par De Longueville et al. [2021] correspondant à l'absorption de CH_3COOH , montrant que la méthode IASI-PCA-GE détecte aussi cette molécule.

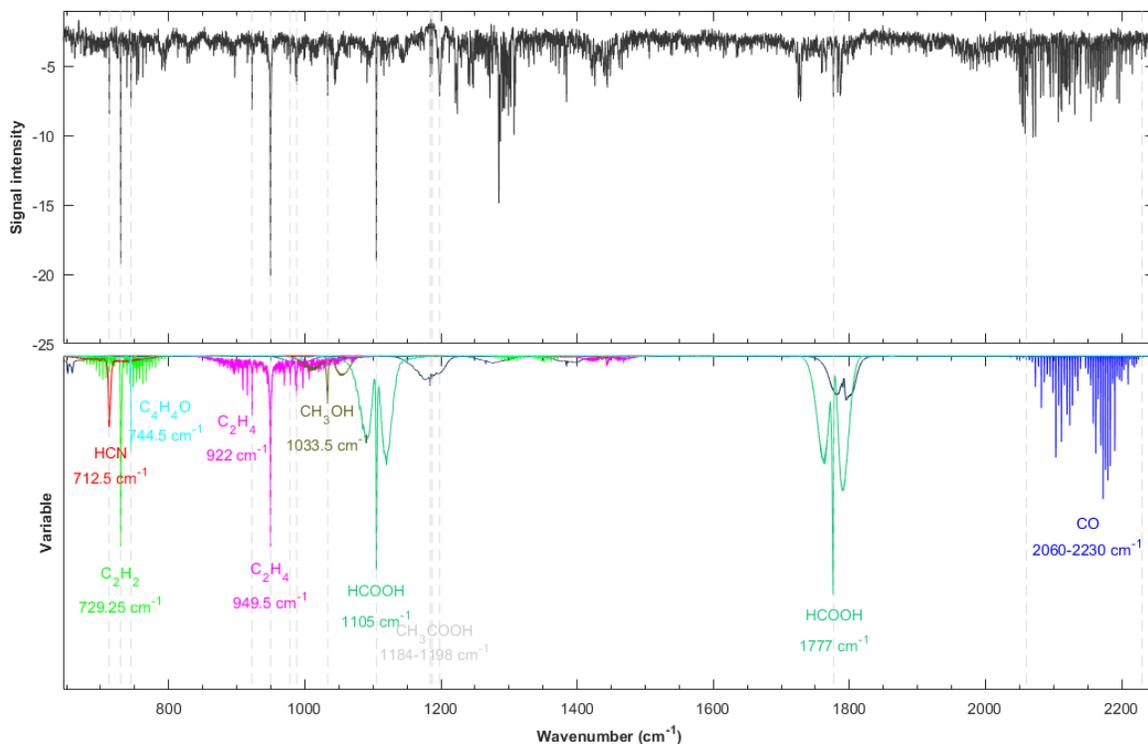


Figure 6.2 : En haut : Exemple de GMI calculé dans un panache âgé de quelques jours pendant les feux d'Australie le 1^{er} janvier 2020 à partir des spectres L1C de jour de IASI/Metop-B. En bas : Les sections efficaces HITRAN liées à l'absorption de différents gaz à l'état de trace sont illustrées en couleur.

6.2.3 Distribution spatiale des pixels de détection

Dans cette partie, je m'intéresse aux espèces dont les signatures sont observées dans le GMI. La figures 6.3.a et b (colonne de gauche) illustrent la distribution spatiale du produit IASI-PCA-GE le 1^{er} janvier 2020 à partir des spectres L1C de IASI/Metop-B de jour. Étonnamment, le CO n'est

détecté que pour quelques pixels, situés dans le sud-est de l'Australie. Malgré la présence de pics d'absorption de CO dans les résidus (figure 2.12), la détection de ces derniers n'est pas simplement attribuée à une quantité anormale de monoxyde de carbone. En effet, la base d'apprentissage en plus de la concentration de fond de CO, peut contenir certains événements riches en CO (pollution urbaine, feux), permettant alors une bonne représentation du signal de CO dans les vecteurs propres des méthodes IASI-PCA ou IASI-PCA-GE. La méthode sera alors sensible à des événements très extrêmes en terme de concentration de CO ou encore en terme de température de la molécule de CO, à savoir que l'on peut attribuer des détections de la signature de CO dans certains résidus à la présence de CO « chaud », responsable de la déformation de la forme de raies de CO [Rezaie, 2011].

Malgré des durées de vie différente, on voit clairement un panache principal pour la majorité des espèces (sauf CO et HCN) situé dans la même région géographique, dans l'océan Pacifique autour de 180°E. La détection de HCOOH montre la présence d'un deuxième panache situé sur le continent australien avec des valeurs plus faibles pour les deux méthodes.

Afin de valider la présence d'une espèce détectée par la méthode IASI-PCA-GE, j'ai comparé les produits IASI-PCA-GE avec les données IASI L2. Les figure 6.3.a et b (colonne de droite) illustrent la distribution spatiale des données IASI L2 CO, NH₃, HCN, C₂H₂, C₂H₄, HCOOH, et CH₃OH. Il n'y a pas de distribution spatiale pour C₄H₄O, car les données IASI L2 C₄H₄O ne sont pas disponibles. De manière générale, les produits IASI-PCA-GE sont cohérents avec les produits IASI L2. Le produit IASI L2 NH₃ [Van Damme et al., 2017] montre peu de pixels détectés, tout comme le IASI-PCA-GE. Dans les cas de C₂H₄ ou HCOOH nous observons une forte similarité dans les distributions spatiales entre les deux ensembles de données. Pour HCOOH, deux panaches sont détectés à la fois dans les données IASI-PCA-GE et IASI L2 HCOOH. Le premier correspond au panache principal transporté au-dessus de l'océan pacifique et la Nouvelle-Zélande, observé simultanément avec d'autres espèces comme C₂H₄. Le deuxième est situé sur le continent australien avec des valeurs plus faibles pour les deux méthodes.

Certaines différences sont constatées en termes de localisation et d'intensité. Pour le CO, le produit IASI L2 détecte un panache de CO important au-dessus de l'océan, qui n'est pas détecté

par le produit IASI-PCA-GE. Deux panaches de NH_3 sont observés avec la méthode IASI-PCA-GE au-dessus de la terre et de la mer alors que les données IASI L2 NH_3 ne montrent que de nombreux pixels isolés or on s'attend à une faible détection du NH_3 puisque seuls des pics de faible intensité de NH_3 sont trouvés dans d'autres GMI le même jour. Pour des espèces comme HCN, CH_3OH ou $\text{C}_4\text{H}_4\text{O}$, caractérisées par des signaux plus faibles, le nombre de pixels de détection observés est plus faible avec la méthode IASI-PCA-GE.

Les raisons possibles pour expliquer les différences entre les deux produits sont:

- La méthode IASI-PCA-GE est dépendante de l'utilisation d'un seuil restrictif F_3 (cf. chapitre 4, section 4.4), ce qui a un impact sur le nombre de pixels détectés, notamment au-dessus de la mer.
- La méthode IASI-PCA-GE ne tient pas compte des paramètres de surface comme le contraste thermique qui est pris en compte dans la génération (par inversion) des produits L2.
- La présence de nuages empêchant une restitution des données L2 correcte.

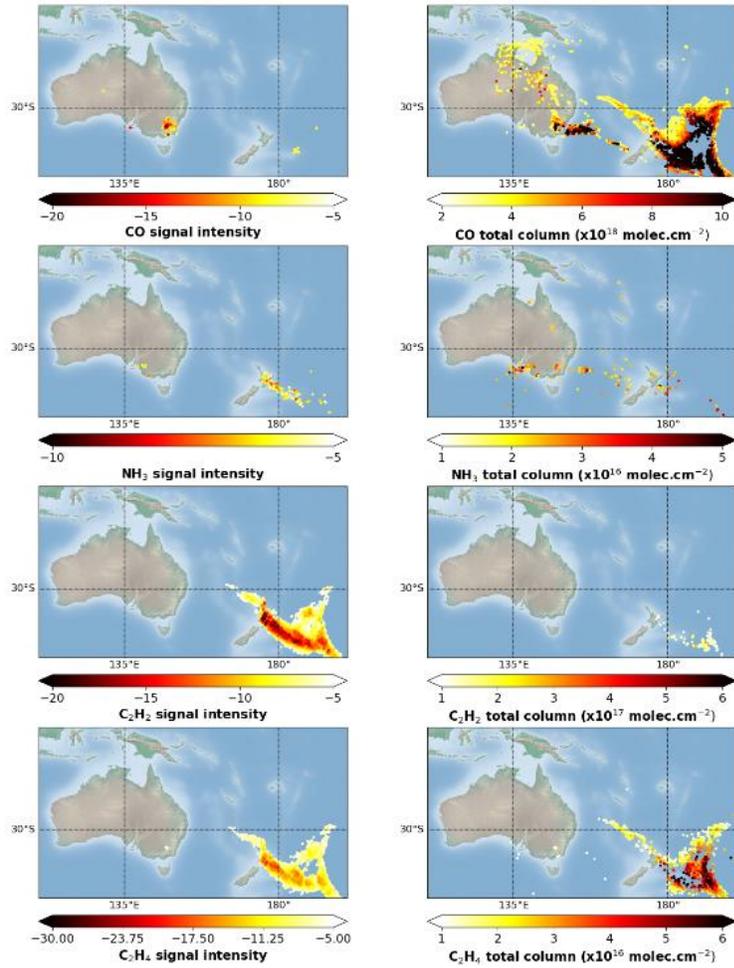


Figure 6.3.a: A gauche: Distribution spatiale du signal de détection associé à CO, NH₃, C₂H₂ pendant les feux d'Australie le 1^{er} janvier 2020. Données de jour de IASI/Metop-B L1C. A droite: même figures avec le produit L2 sur les colonnes totales de ces espèces à partir de IASI/Metop-B.

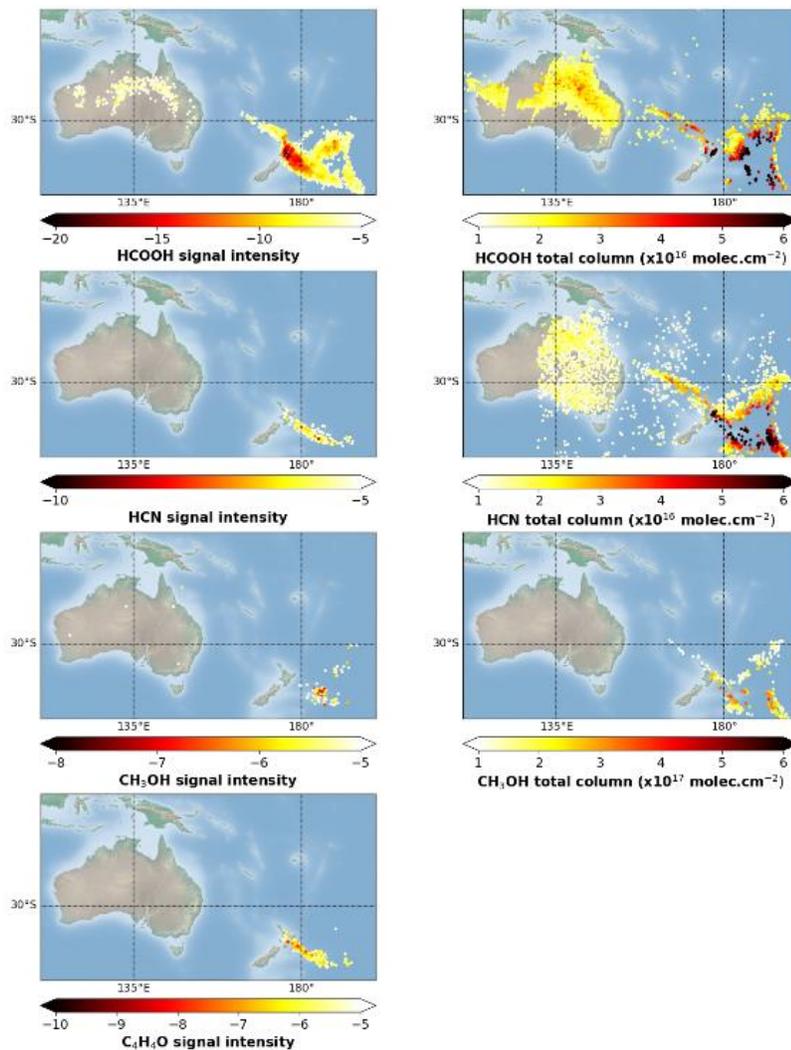


Figure 6.3.b: A gauche: Distribution spatiale du signal de détection associé à HCOOH, HCN, CH₃OH et C₄H₄O pendant les feux d’Australie le 1^{er} janvier 2020. Données de jour de IASI/Metop-B L1C. A droite: même figures avec le produit L2 sur les colonnes totales de ces espèces à partir de IASI/Metop-B. Le produit L2 pour C₄H₄O n’est pas disponible.

Selon la date de détection et la zone étudiée, les espèces détectées sont différentes. En effet, De Longueville et al. [2021] ont pu observer pour le cas des feux d’Australie le 5 janvier 2020 neuf espèces différentes dans un panache transporté. D’autre part cette étude montre également la présence de HONO et NH₃ dans une région source des feux le 31 décembre 2019. Cette observation simultanée de NH₃ et HONO est aussi possible avec la méthode IASI-PCA-GE le 4 Janvier 2020 (figure 6.4) ce qui correspond à la date d’observation de Dufour et al. [2022]. Dans cette publication on explique que l’observation de HONO, dont la durée de vie est très courte de jour dû à la

photolyse, est probablement permise par la présence d'aérosols bloquant les rayons du soleil, ce qui limite la photodissociation de HONO.

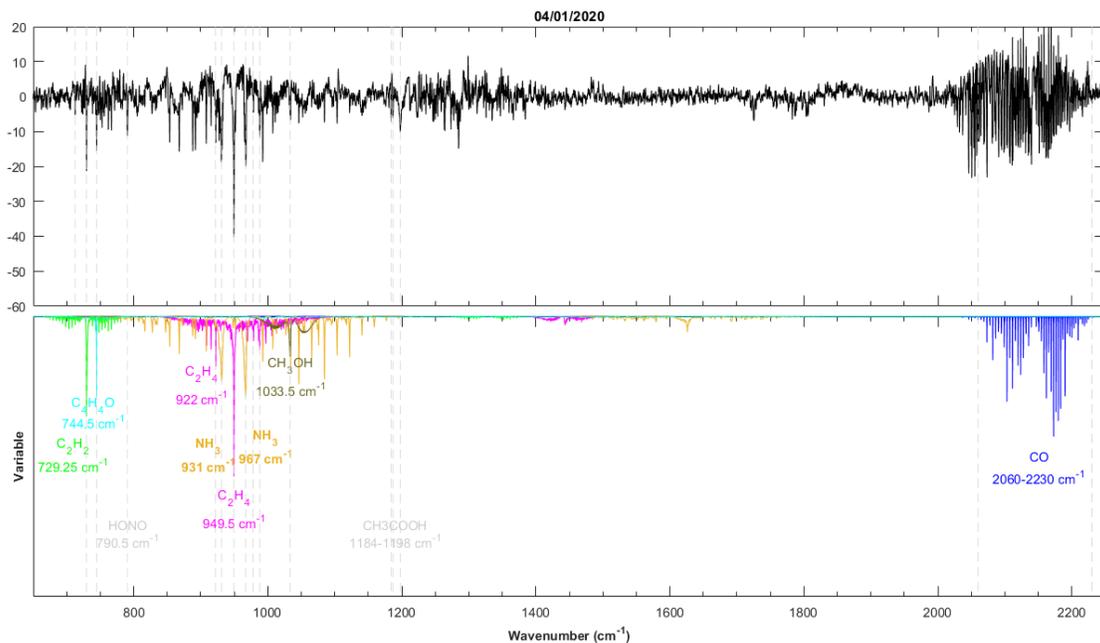


Figure 6.4 : Exemple de résidus calculés pendant les feux d'Australie le 4 janvier 2020 à partir des spectres L1C de jour de IASI/Metop-B. Les sections efficaces HITRAN liées à l'absorption de différentes espèces sont illustrées.

6.2.4 Conclusions sur les feux d'Australie

La méthode IASI-PCA-GE a pu détecter un grand nombre d'espèces lors des feux d'Australie de 2020. L'altitude exceptionnelle des panaches, due à la pyroconvection intense du mois de janvier, et l'intensité des feux ont fait ressortir des anomalies spectrales dans plusieurs canaux du domaine couvert par IASI permettant la détection d'espèces comme NH_3 , CO , C_2H_2 , C_2H_4 , HCOOH , CH_3COOH , $\text{C}_4\text{H}_4\text{O}$. Pour certaines molécules, l'intensité des feux et la quantité d'aérosols émis ont permis des conditions favorables à leur observation.

Les comparaisons avec les données de niveau L2 existantes ont permis de vérifier la présence de NH_3 , CO , C_2H_2 , C_2H_4 et HCOOH , et la bonne détection du panache transporté par la méthode IASI-PCA-GE. La comparaison des intensités et des concentrations n'est cependant pas évidente, du fait que les méthodes d'inversion (pour générer les produits L2) et la méthode IASI-PCA-GE ont des approches très différentes.

Il est important de noter que pour CH_3COOH , la détection automatique reste difficile et aucun indicateur spécifique n'a pu être défini. La présence de certains pics autour de 1200 cm^{-1} permet de détecter certains de ses pics en absorption dans les GMI (figure 6.2). Mais comme sa contribution qui s'étend sur plusieurs domaines spectraux assez larges se mélange avec celle des raies de CO_2 , H_2O et celle des cendres volcaniques (cf. chapitre 2, figure 2.11.i) un indicateur pour CH_3COOH (sur un large domaine) pourrait entraîner un grand nombre de fausses détections.

6.3 Cas des feux de Sibérie (3 août 2010)

6.3.1 Contexte

Lors d'une forte vague de chaleur en 2010, attribuée au changement climatique [Watanabe et al., 2013], une centaine d'incendies de forêt se sont déclarés entre juillet et septembre 2010 en Russie. Pendant les mois de juillet et août, les émissions de CO , NH_3 et HCOOH ont été estimées à environ 19–33 Tg, 0,7–2,6 Tg et 0,9–3,9 Tg, respectivement [R'honi et al., 2013]. Nous montrons que ces détections sont aussi possibles avec la méthode IASI-PCA-GE. De plus il est intéressant de tester la méthode sur un évènement antérieur à la création de la base de données d'apprentissage de la méthode IASI-PCA-GE.

Dans la figure 6.5 on peut observer les colonnes totales (produits L2) des molécules émises par les feux disponibles en quasi temps réel. Les concentrations de CO , HCOOH et NH_3 entre le 27 juillet et le 27 août 2010 avec les données de IASI-B sont illustrées et permettent d'observer l'étendue des panaches pendant cette période d'un mois. Les panaches de HCOOH et NH_3 s'étendent largement sur la Russie tandis que le panache de CO dépasse les limites de l'Asie. Le transport de CO sur de plus longues distances est attendu grâce à son temps de vie de plusieurs mois.

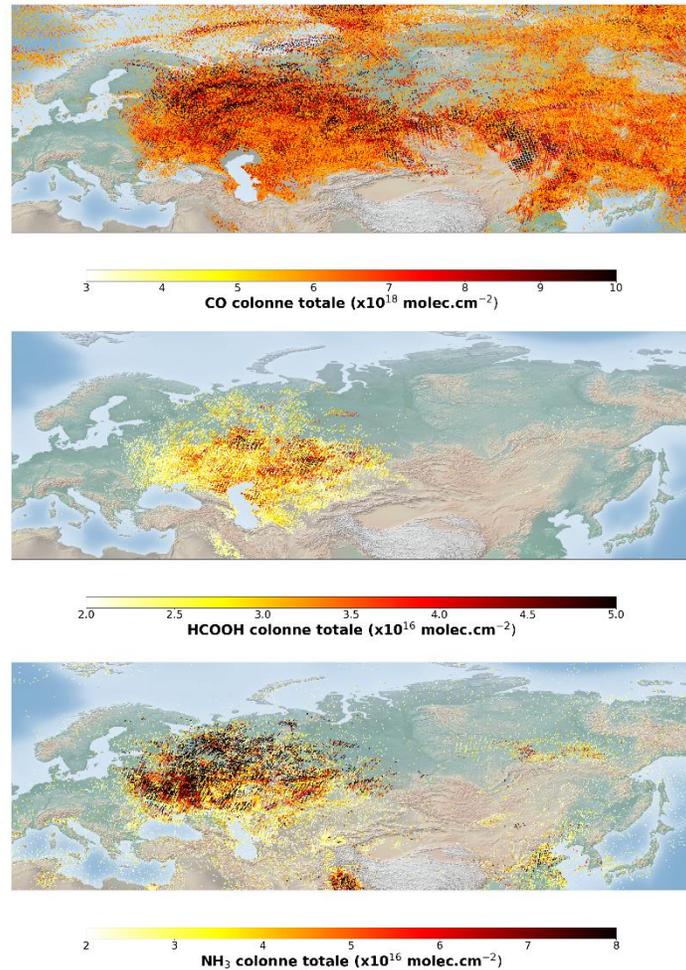


Figure 6.5 : Distribution spatiale des concentrations (colonne totale) de CO (en haut), HCOOH (au milieu) et NH₃ (en bas) pendant les feux de Sibérie entre le 27 juillet et le 27 août 2010 à partir des produits L2 de jour et de nuit pour IASI/Metop-B.

6.3.2 Espèces détectées par la méthode IASI-PCA-GE

La figure 6.6 illustre un exemple de GMI calculé au-dessus de la Russie pendant les incendies de Russie le 3 août 2010 illustrant la contribution de plusieurs molécules caractéristiques des feux de biomasse. On peut observer la signature caractéristique de NH₃ dans la région spectrale entre 850 et 1150 cm⁻¹ avec des pics d'absorption intense autour de 967 cm⁻¹ et de nombreux pics secondaires dont les intensités varient autour de -10 à -30. Malgré la proximité du pic d'absorption d'acide formique à 1105 cm⁻¹ avec un pic secondaire de NH₃ autour de 1104 cm⁻¹, on observe bien les deux signatures distinctes dans la figure 6.7. La large bande d'absorption entre 2050 et 2200

cm^{-1} est liée à la contribution de CO avec un fort signal allant jusqu'à -30. Enfin la méthode IASI-PCA-GE permet aussi l'observation d'un pic peu intense de HCN autour de 712 cm^{-1} .

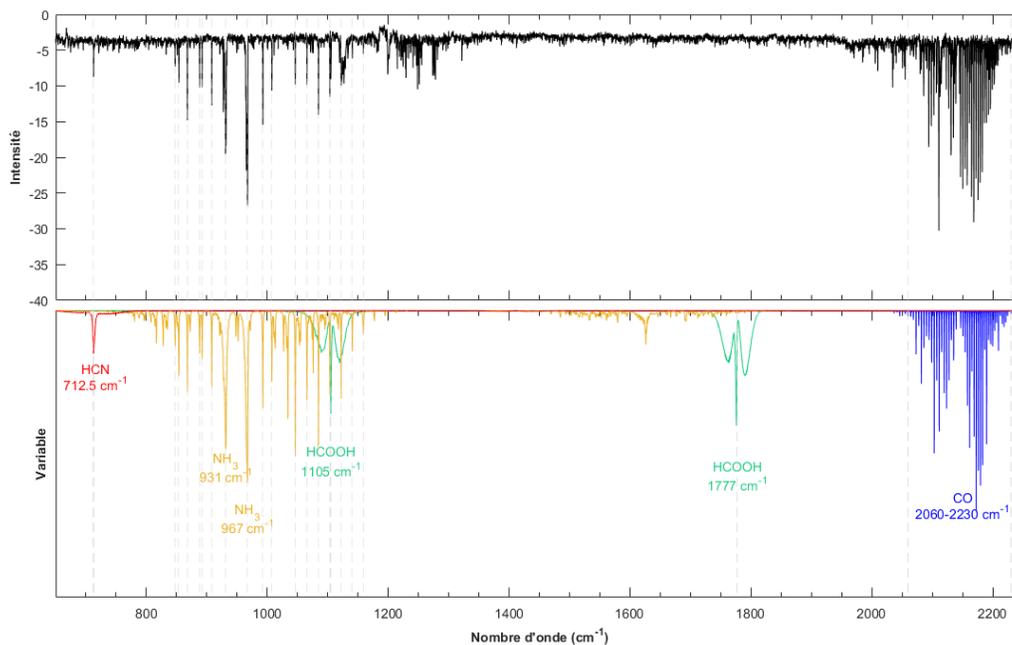


Figure 6.6: Exemple de GMI calculé dans un panache pendant les feux de Russie le 3 août 2010 à partir des spectres L1C de jour pour IASI/Metop-B. Les sections efficaces HITRAN liées à l'absorption des différentes espèces concernées sont illustrées en couleur.

Il est intéressant de noter que les pics secondaires observés dans les sections efficaces de NH_3 ne sont pas tous retrouvés dans le GMI (voir figure 6.7 illustrant un zoom du GMI sur la région spectrale $1000\text{-}1200 \text{ cm}^{-1}$). En effet autour de $1020\text{-}1035 \text{ cm}^{-1}$ les pics attendus autour de 1027 cm^{-1} et 1034 cm^{-1} sont très faibles voir non observables par rapport au bruit dans le GMI. On peut expliquer cette absence par le fait que l'ozone est le principal contributeur autour de $1020\text{-}1060 \text{ cm}^{-1}$ et qu'il est bien représenté par les vecteurs propres de la méthode IASI-PCA-GE. Cela peut alors expliquer les faibles intensités observées pour les détections liées à CH_3OH autour de 1034 cm^{-1} sur les figures 6.2 et 6.4.

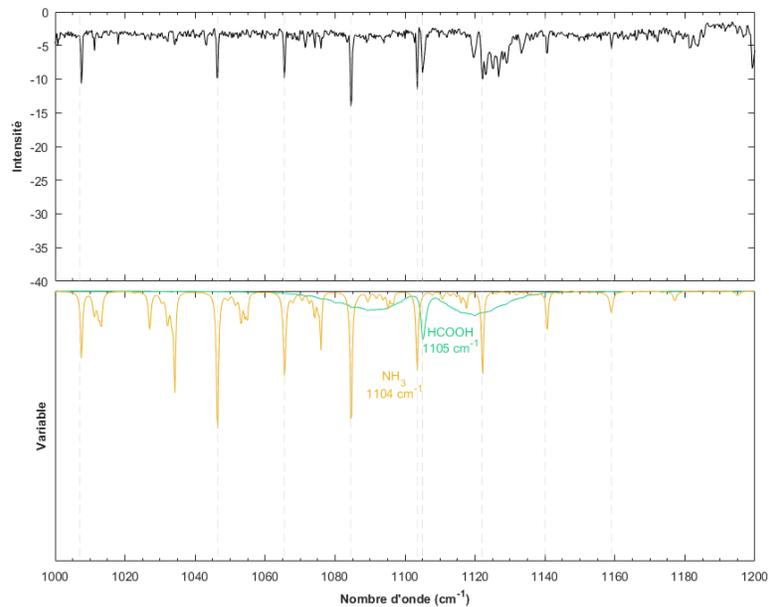


Figure 6.7 : Même figure que la précédente avec un zoom autour de 1000-1200 cm^{-1} .

6.3.3 Distribution spatiale des pixels de détection

La distribution spatiale des détections de différentes espèces caractéristiques des feux de biomasse sur l'ensemble de la période allant du 27 juillet 2010 au 27 août 2010, en utilisant les données de jour et de nuit de IASI-B, est illustrée dans la figure 6.8. Pour chaque molécule d'intérêt on peut observer des intensités et des tailles de panaches variées illustrant leur transport pendant cette période d'un mois. Aussi, on peut noter que dans le cas de NH_3 les détections au-dessus de l'Inde sont probablement à attribuer à la pollution anthropique [Van Damme et al., 2018].

Les distributions spatiales de HCOOH et NH_3 permettent d'observer le large panache de feux illustré dans les données de niveau 2 (figure 6.5). Le panache de HCOOH est caractérisé par des intensités assez faibles et est observé dans des régions similaires à celle de NH_3 . La détection fréquente de NH_3 pour cet évènement est cohérente avec R'honi et al. [2013]. En effet la concentration de fond moyenne des différentes espèces d'intérêt a été calculée pendant le mois précédant les incendies. On observe des concentrations anormales 40 fois supérieures à la concentration de fond pour CO ou HCOOH et jusqu'à 300 fois supérieures à la concentration de fond pour NH_3 sont observées. De plus dans R'honi et al. [2013] les concentrations maximales de NH_3 sont observées à proximité des sources tandis que celles de HCOOH et CO sont observées plus au sud-est. La méthode IASI-PCA-GE donne des résultats similaires, cependant comme discuté

pendant l'étude des feux d'Australie (section 6.2) dans le cas de CO il est important de noter que l'approche IASI-PCA-GE sera particulièrement sensible à du CO « chaud » à savoir le CO retrouvé à proximité des sources et ne permettra pas d'observer le même panache très étendu après advection comme l'illustre la figure 6.5.

Enfin, on peut observer dans la figure 6.8 que par rapport au GMI du 3 août 2010 analysé dans la figure 6.6, d'autres molécules sont observées en utilisant la méthode IASI-PCA-GE au cours de la période étudiée. En effet C_2H_4 et C_4H_4O , des molécules signatures des feux de biomasse, sont retrouvées avec des distributions spatiales similaires entre elles, dans des panaches peu étendus entre le 27 juillet et 27 août 2010. On observe que les détections de C_2H_4 et C_4H_4O sont retrouvées dans la même région que le panache principal de NH_3 , CO ou HCN à l'ouest de la Russie, mais un second panache est observé pour ces deux molécules plus à l'ouest dans des régions éloignées des zones de feux. Ces observations de panaches éloignées des feux pourraient suggérer un transport longue distance, cependant avec leur temps de vie très court, les détections de C_2H_4 et C_4H_4O semblent plutôt suggérer la présence d'autres feux en Russie.

La détection de HCN dans les feux de Russie de 2010 a été discutée dans Viatte et al. [2013] et il est montré grâce à des mesures à partir du sol que le transport du cyanure d'hydrogène depuis les feux de Russie a pu atteindre les régions d'Alaska ou du Canada. Dans les résultats IASI-PCA-GE, les détections de HCN correspondent à des pixels assez dispersés (Figure 6.8) avec des intensités peu élevées en comparaison à ce qu'on observe pour HCOOH ou NH_3 . On peut associer ces détections assez dispersées et les faibles intensités du signal à de faibles émissions de HCN et à son transport à longue distance dû à son long temps de vie. De plus on peut observer que ce résultat coïncide avec le transport longue distance du CO observé dans les données de niveau 2 (figure 6.5).

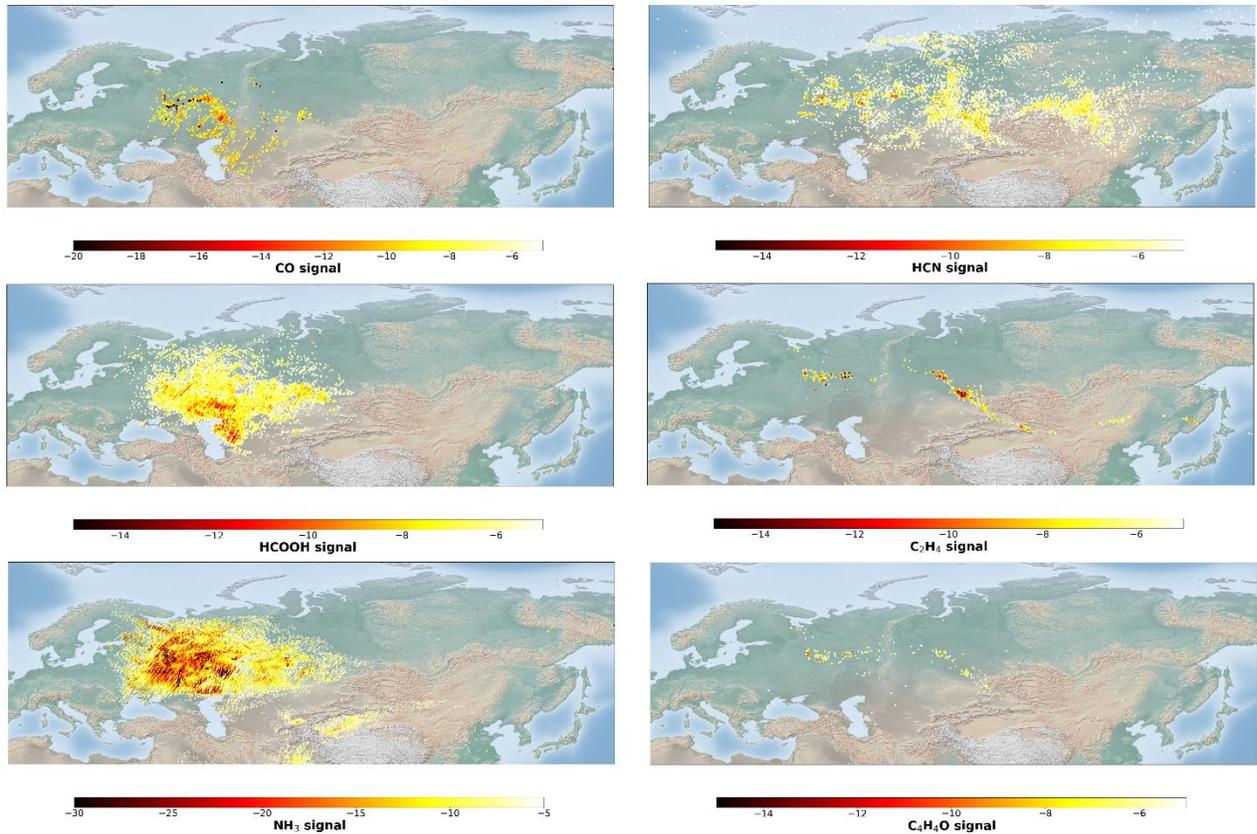


Figure 6.8: Distribution spatiale de l'intensité du signal IASI-PCA-GE associé à CO, HCOOH, NH₃, HCN, C₂H₄ et C₄H₄O pendant les feux de Sibérie entre le 27 Juillet et le 27 août 2010 à partir des spectres L1C de jour et de nuit pour IASI/Metop-B.

6.3.4 Conclusions sur les feux de Sibérie

Les feux de Russie ont permis de montrer la capacité de la méthode IASI-PCA-GE à détecter dans les spectres les contributions simultanées de HCN, HCOOH et NH₃ et CO, et les indicateurs fins de la méthode IASI-PCA-GE permettent de séparer les deux bandes d'absorption très proches des molécules HCOOH et NH₃ (figure 6.7). Les anomalies de concentration associées à cet évènement particulièrement intense permettent de faire apparaître une grande partie des pics d'absorption de NH₃ dans un large domaine de 850-1150 cm⁻¹ suggérant de fortes concentrations de NH₃ dans l'atmosphère. De plus, l'étude de cet évènement sur une période d'un mois permet d'illustrer les contributions d'autres molécules de feux à courte durée de vie comme C₂H₄ ou encore C₄H₄O.

6.4 Comparaison avec la méthode IASI-PCA

Je présente ici seulement les résultats de la méthode IASI-PCA pour le cas des feux en Australie, car la discussion des résultats IASI-PCA pour les feux en Sibérie est très similaire. La figure 6.9, illustrant la distribution spatiale de plusieurs indicateurs spectraux définis dans la méthode IASI-PCA, fait apparaître le panache principal transporté depuis l'Australie vers l'est pour la plupart des indicateurs. Un grand nombre de pixels isolés apparaît pour les indicateurs (NH_3_1 , HCOOH_1 , C_2H_2_1 , C_2H_4_1 , HCN_1), ce qui est dû à la définition de seuils moins restrictifs dans la méthode IASI-PCA comparativement à la méthode IASI-PCA-GE. Ces pixels sont considérés comme des fausses détections. Il est important de noter que l'étude des résidus spectraux est essentielle pour s'assurer de la présence des différentes espèces chimique. Le mélange des contributions de plusieurs espèces peut limiter la fiabilité de la méthode IASI-PCA pour les indicateurs dont le domaine est un peu trop large. Par exemple, pour le domaine $1103\text{-}1109\text{ cm}^{-1}$ (domaine de définition de l'indicateur HCOOH_1) des pics secondaires de NH_3 comme celui à 1104 cm^{-1} (cf. chapitre 2, figure 2.12.b pour NH_3 et 2.12.d pour HCOOH) peuvent mener à une fausse détection de HCOOH . Cet événement en Australie ne semble pas être caractérisé par de fortes anomalies d'ammoniac avec son indicateur NH_3_1 indiquant de faibles anomalies autour de $961\text{-}971\text{ cm}^{-1}$ ce qui suggère que le mélange entre le pic d'absorption secondaire de NH_3 à 1104 cm^{-1} et le pic principal de HCOOH autour de 1105 cm^{-1} ne sera pas un handicap (pour la méthode IASI-PCA).

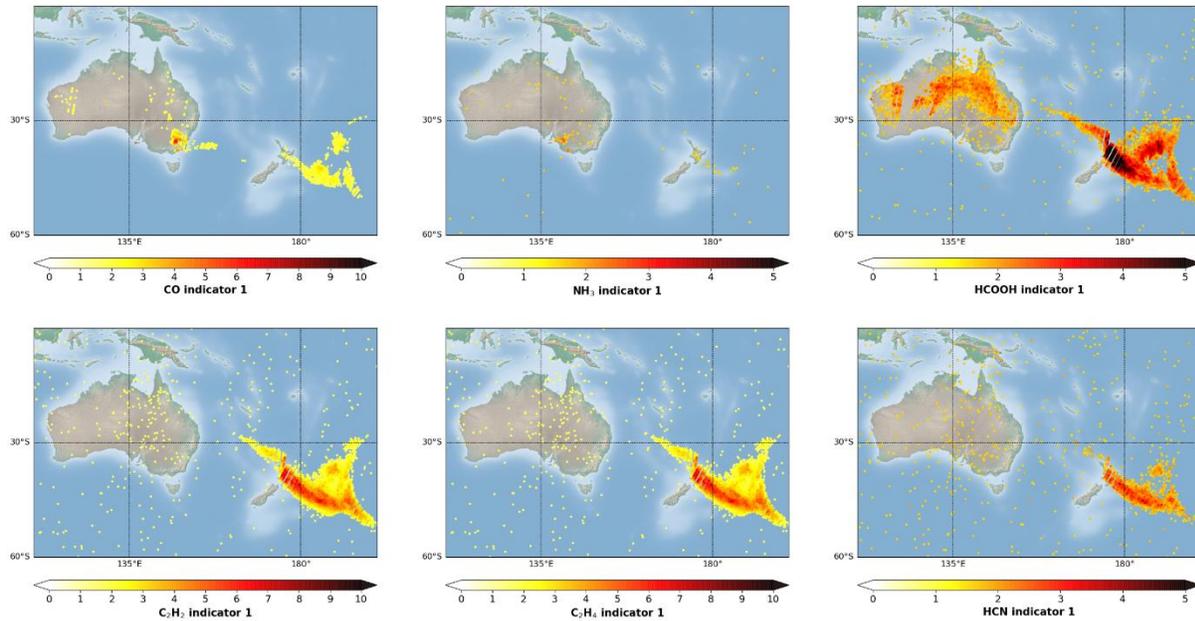


Figure 6.9: Distribution spatiale des scores de reconstruction associés aux indicateurs IASI-PCA CO₁, NH₃₁, HCOOH₁, C₂H₂₁, C₂H₄₁ et HCN₁ pendant les feux d’Australie le 1er janvier 2020 à partir des spectres L1C de jour de IASI/Metop-B.

6.5 Analyse des séries temporelles pour les feux

L’analyse avec la méthode IASI-PCA-GE de séries temporelles sur les feux est intéressante car elle permet de mettre en évidence les périodes d’apparition des molécules émises lors d’un évènement spécifique, ou encore l’apparition simultanée de différentes espèces chimiques libérées par les feux. Les séries temporelles permettent aussi de faire apparaître les dates d’intérêt, caractérisées par des anomalies particulièrement fortes, ou encore d’identifier des cycles ou des tendances dans la présence d’espèces chimiques spécifiques aux feux extrêmes (qui ont bien sûr un lien avec le réchauffement climatique).

Il est possible de créer des archives de feux selon chaque indicateur défini dans la méthode IASI-PCA-GE. Avec cette approche, on peut caractériser un évènement selon l’intensité des signaux dans les résidus, mais aussi selon le nombre de pixels détectés (pour un indicateur donné) pendant ce même évènement. Ce nombre peut alors être associé à la taille du panache mais il sera très dépendant de la durée de vie de l’espèce considérée.

Plusieurs molécules sont retrouvées dans les panaches des feux et peuvent être utilisées pour la création d'archives de détection pendant la période IASI-B. Les molécules observées dans les feux dépendent des matériaux ou végétaux brûlés, les événements extrêmes apparaîtront différemment dans les séries temporelles associées à chacune des espèces analysées.

Par ailleurs certaines molécules comme NH_3 , C_2H_4 ou encore CO peuvent être associées à la fois à des feux et à des émissions anthropiques (cf. chapitre 7). On peut cependant observer que pour CO et C_2H_4 , la détection de pollution d'origine industrielle ou urbaine est plus rare. Il sera alors important d'examiner plus précisément la localisation des événements détectés pour leur attribuer une origine adéquate.

6.5.1 Séries temporelles pour CO

Le monoxyde de carbone est le traceur principal des feux. Dans la méthode IASI-PCA-GE on a pu observer l'apparition de signatures de CO dans le domaine spectral allant de 2050 à 2200 cm^{-1} que l'on attribue à la détection du CO « chaud » dans les jeunes panaches de CO .

La figure 6.10 illustre la série temporelle des maxima de détection observés pour l'indicateur CO avec la méthode IASI-PCA-GE appliquée sur les données IASI-B. Les feux les plus extrêmes (fortes intensité) ont été recherchés aux mêmes dates dans les données IASI L2 CO . On peut voir que les intensités du signal sont caractérisées par un cycle saisonnier. En effet les détections les plus fréquentes sont observés en général pendant les mois de juin à septembre, ce qui correspond à la saison des feux dans l'hémisphère nord et les principaux contributeurs sont les feux du Canada/Etats-Unis et de Russie. Pendant les mois de décembre à janvier, correspondant à l'été dans l'hémisphère sud, on peut trouver d'autres pics de forte intensité qui sont attribuables à des feux dans l'hémisphère sud. On observe par exemple les feux d'Australie de 2019-2020 avec une intensité particulièrement élevée. Dans la série temporelle de la Figure 6.10, on observe qu'en terme d'intensité, les feux observés dans l'hémisphère nord sont caractérisés par des intensités plus fortes que pour les feux dans l'hémisphère sud.

Aussi on remarque que les journées avec des fortes intensités de détection correspondent aux événements d'été dans l'hémisphère nord. Une explication possible peut être la présence d'une plus grande surface terrestre dans l'hémisphère nord dans laquelle les feux apparaissent plus

régulièrement. En effet les grands territoires comme le Russie ou l'Amérique, l'Alaska ou le Canada sont régulièrement touchés par des feux pendant l'été.

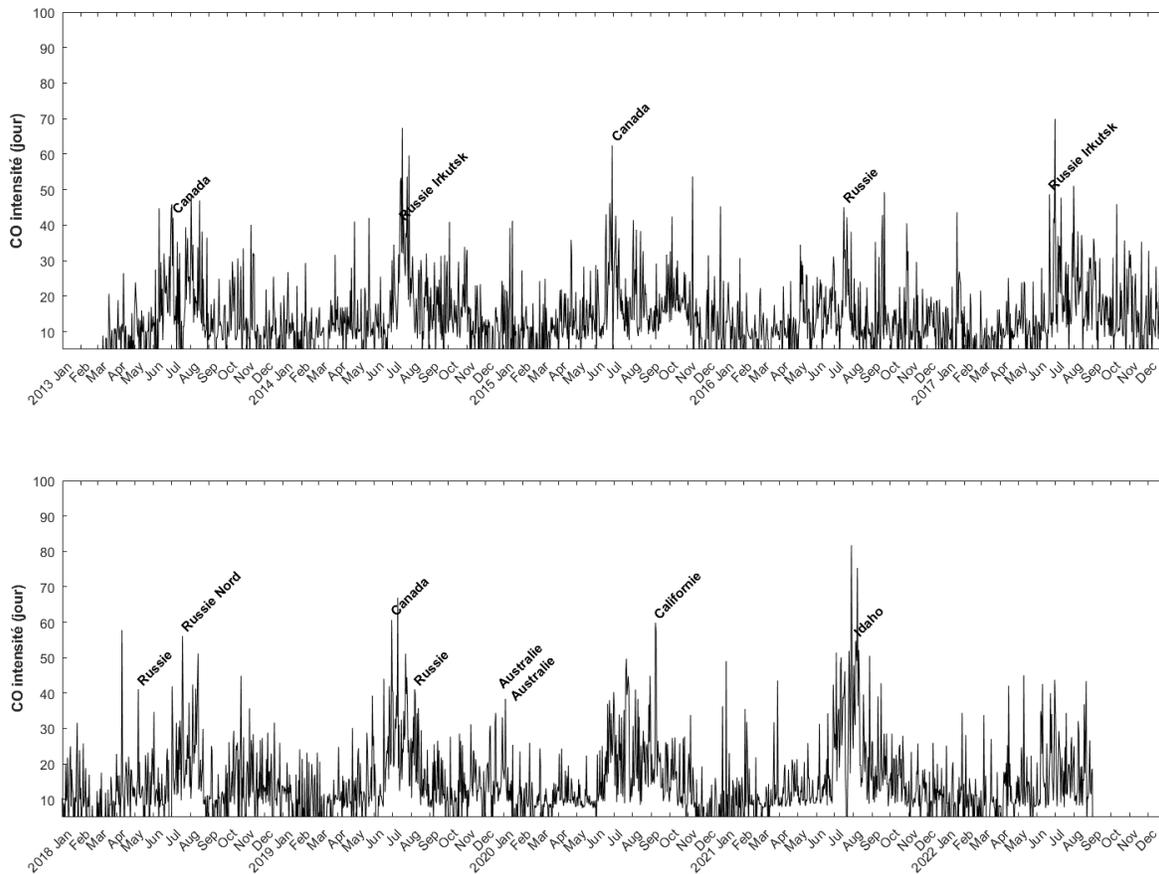


Figure 6.10 : Série temporelle des extrema journaliers (en intensité) issus du produit IASI-PCA-GE pour CO entre 2013 et 2022 à partir des spectres L1C de jour pour IASI-B.

L'analyse de la série temporelle des occurrences de détection journalières, illustrée sur la figure 6.11, montre le même cycle saisonnier que la série temporelle des extrema journaliers (figure 6.10). Les pics associés aux feux d'Indonésie (Septembre-Novembre 2015) coïncident avec la saison des feux dans cette région [Field et al., 2016]. Il est important de noter que les occurrences de détection journalières sont calculées sur l'ensemble des détections et peuvent alors dépendre de différents feux et non pas forcément d'un seul évènement. Cependant elles peuvent donner une idée de l'étendue des panaches d'un ou plusieurs feux. Par exemple, le pic d'occurrence de CO observé le 29 octobre 2015 apparaît pour près de 1000 pixels (cf. figure 6.11). Cette détection est

correctement attribuée aux feux intenses d'Indonésie pour lesquelles on peut observer les détections de CO le 29 octobre 2015 sur la figure 6.12.

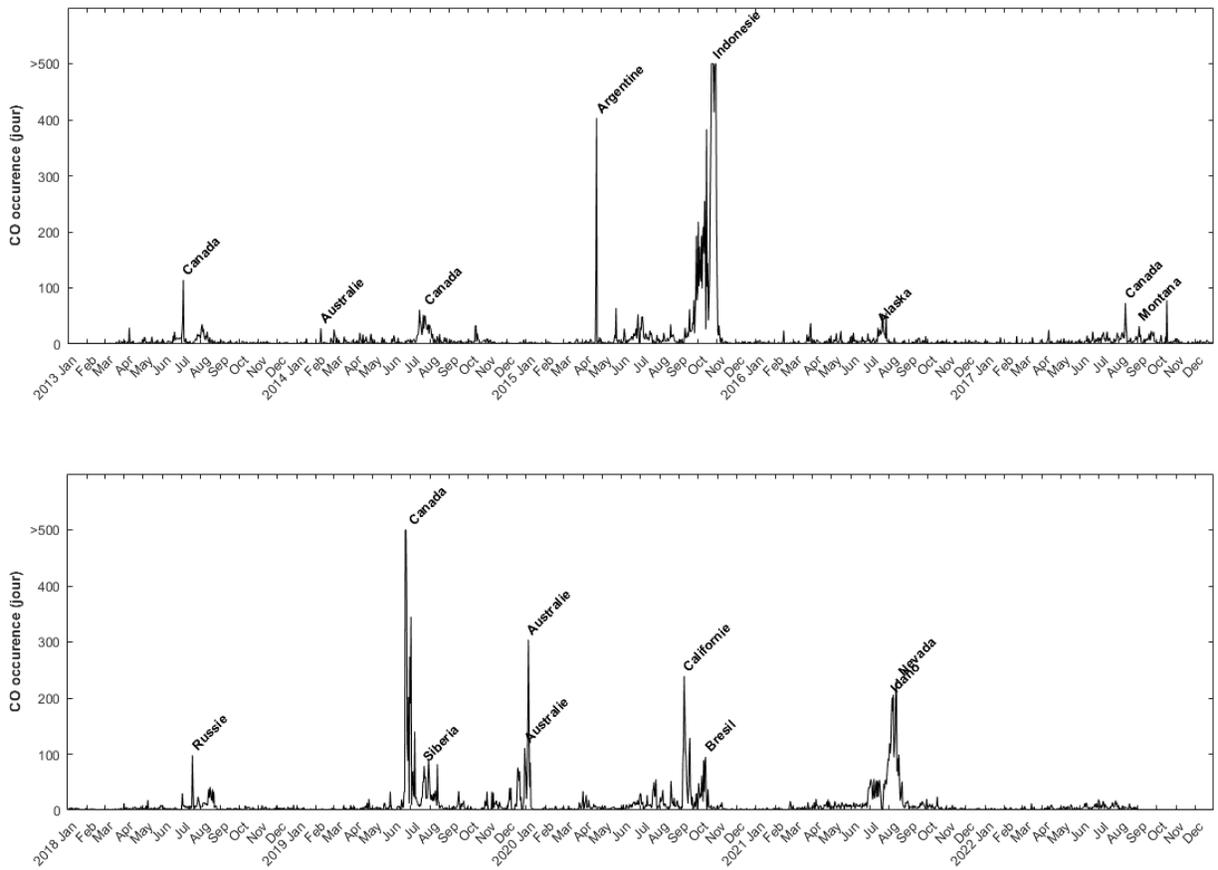


Figure 6.11 : Série temporelle des extrema journaliers (en occurrence) des extrema journaliers (en occurrence) issus du produit IASI-PCA-GE pour CO entre 2013 et 2022 à partir des spectres L1C de jour pour IASI-B.

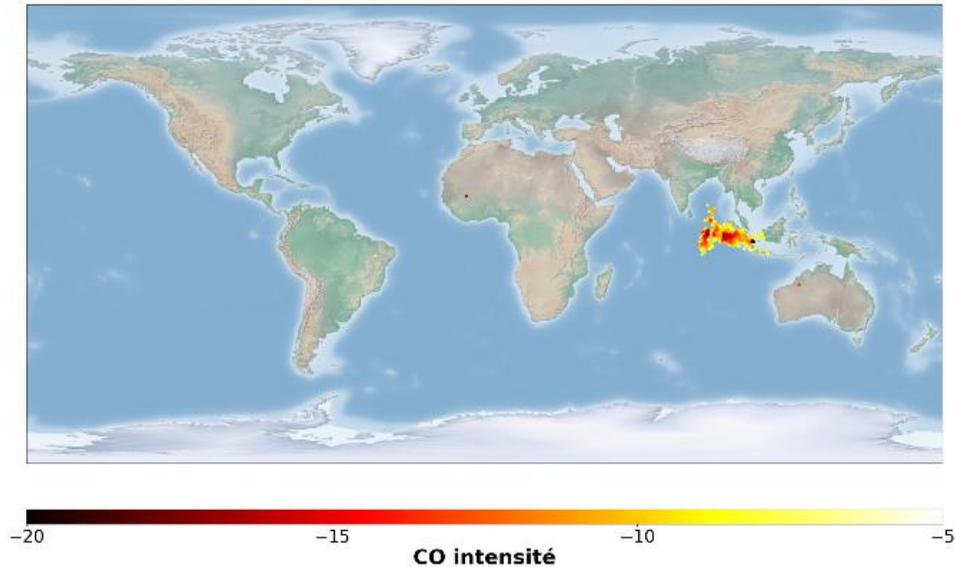


Figure 6.12 : Distribution spatiale des intensités des détections associées à CO, pendant les feux d'Indonésie le 29 octobre 2015 à partir des spectres L1C de jour pour IASI/Metop-B.

6.5.2 Séries temporelles pour HCN

Un autre traceur de feux est le HCN [Lobert et al., 1990; Holzinger et al., 1999]. En découplant le globe en plusieurs régions [Li et al., 2009] montre qu'on retrouve des concentrations relativement faibles en Europe et Amérique du nord et que les régions caractérisées par les émissions les plus larges de HCN sont situées en Afrique, Indonésie/Australie, Asie du sud et Asie Boréale. En appliquant la méthode IASI-PCA-GE sur l'ensemble de la série temporelle IASI-B, on observe que les détections de HCN ne concernent pas tous les feux et ne font pas apparaitre le même cycle saisonnier que la série temporelle de CO (figure 6.13). Aussi, les maxima de détections de cyanure d'hydrogène sont particulièrement observés dans les feux d'Indonésie avec les plus fortes anomalies de signal se situant entre 2013 et 2016. Les feux d'Indonésie étant principalement des feux de tourbe, et étant les principaux contributeurs de HCN observés dans les archives, ces résultats suggèrent que les feux de tourbes émettent de grandes quantités de HCN dans l'atmosphère. Certaines détections de HCN ont été faites au-dessus de l'Amérique du sud en 2020, 2021 et 2019 mais pendant la période étudiée aucune n'a été faite sur le continent Africain considéré comme un important émetteur de HCN [Li et al., 2009]. Cependant, en Afrique, on observe des feux très réguliers en termes de durée et d'intensité par rapport aux autres continents.

On peut alors supposer que les feux d’Afrique sont intégrés dans la variabilité des spectres de la base de données d’apprentissage de la méthode IASI-PCA-GE ce qui permet une bonne reconstruction des spectres associés à ces épisodes.

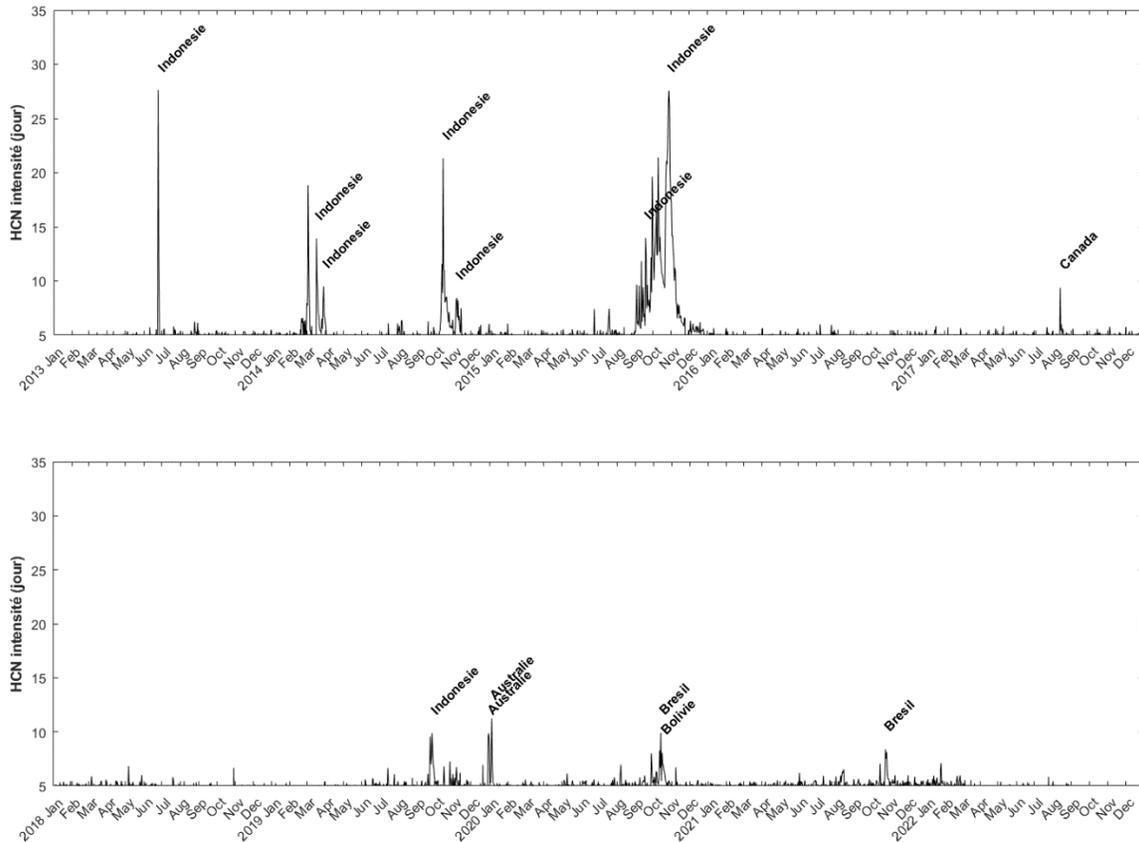


Figure 6.13 : Série temporelle des extrema journaliers (en intensité) issus du produit IASI-PCA-GE pour HCN entre 2013 et 2022 à partir des spectres L1C de jour pour IASI-B.

La figure 6.14 illustrant les occurrences de détection de HCN montre que, malgré les faibles intensités observées entre 2016 et 2022 (cf. figure 6.13), un certain nombre de détections ont pu être observées avec des pics d’occurrence (inférieurs à 20) associés à des feux en Russie, en Amérique du sud et même au Canada.

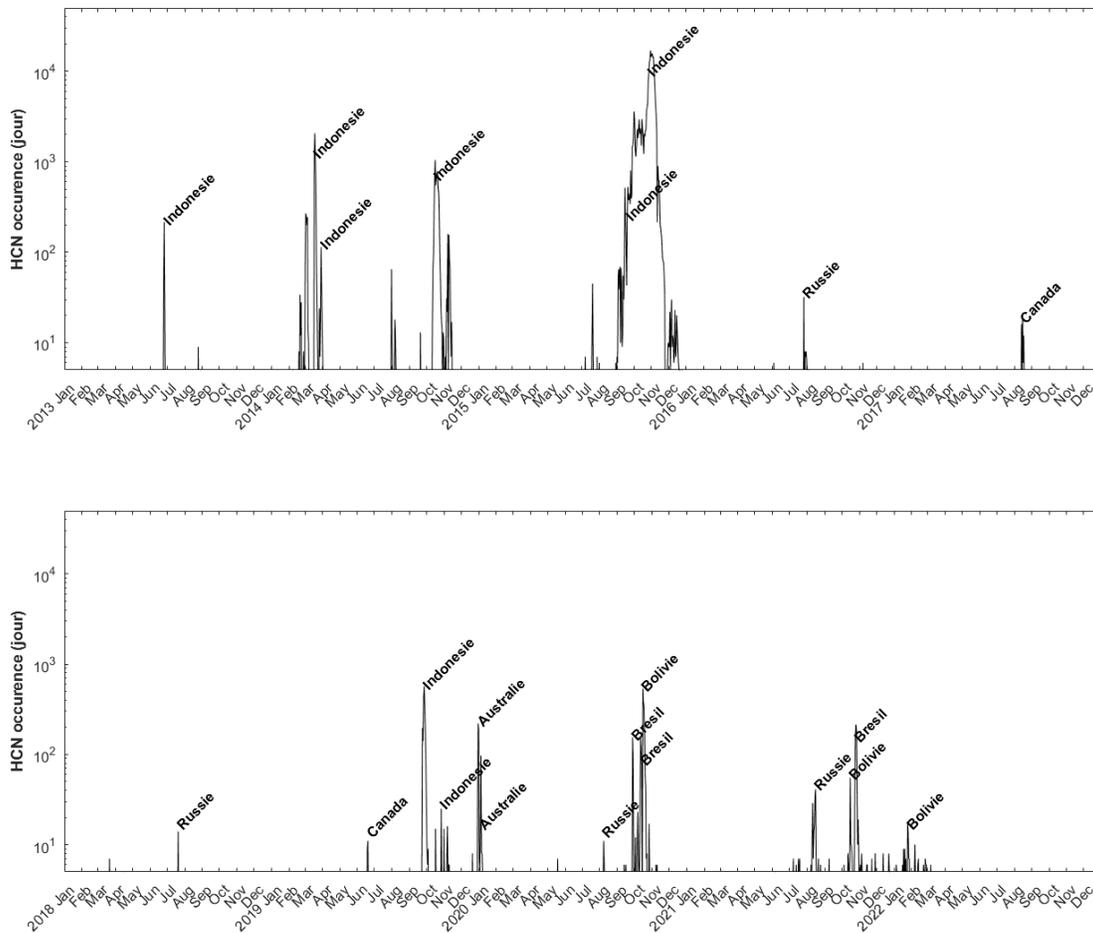


Figure 6.14 : Série temporelle des extrema journaliers (en occurrence) issus du produit IASI-PCA-GE pour HCN entre 2013 et 2022 à partir des spectres L1C de jour de IASI-B.

6.6 Conclusions générales sur les feux

La méthode IASI-PCA-GE a permis la détection d'espèces à courte durée de vie pour certaines espèces dont l'apparition peut-être très ponctuelle comme HONO ou C₄H₄O. Ces espèces sont rarement détectées à cause de leur durée de vie très courte dans l'atmosphère et on ne les observera alors que dans des conditions particulières comme dans des cas de pyroconvection importante et un transport des espèces vers la stratosphère, ou encore lorsque la présence d'aérosols permet de réduire (au sein des panaches) les processus de photodissociation (cas de HONO).

D'autres molécules plus fréquemment observées, comme HCN ou CO, avec des durées de vie plus longues sont intéressantes pour le suivi des panaches de feux. Les séries temporelles de CO et HCN créées à partir de la méthode IASI-PCA-GE permettent non seulement de faire apparaître un cycle saisonnier des événements de feux mais aussi de discerner les différents événements les plus extrêmes. Elles donnent des indications sur les régions principalement émettrices de certaines molécules, notamment dans le cas de HCN particulièrement observés dans les feux d'Indonésie.

Le cycle régulier de certains feux, notamment en Afrique, ainsi que les émissions par les feux de molécules à longue durée de vie (CO ou HCN), implique qu'un certain nombre de spectres contenant une partie de ce signal sont potentiellement contenus dans la base d'apprentissage de la méthode IASI-PCA-GE réduisant alors la sensibilité de la méthode à ces molécules. Malgré cela, la détection de CO comme HCN a été possible et permettra de faire apparaître des détections dans certaines conditions extrêmes. Par exemple on retrouve des détections de CO particulièrement au-dessus des régions sources des feux, quand des fortes anomalies de température vont faire apparaître des déformations de la forme des raies de CO. On peut aussi observer des détections de CO ou de HCN dans les cas d'anomalies de concentration les plus extrêmes, avec un signal qui n'est pas couvert par la matrice de variance-covariance utilisée dans la méthode IASI-PCA-GE et qui mènent alors à de fortes erreurs de reconstruction (donc à des pics significatifs dans les résidus).

L'intérêt de la méthode IASI-PCA-GE réside aussi dans sa capacité à détecter en quasi temps réel des gaz à l'état de trace dont la concentration est variable dans l'atmosphère tels que C_2H_2 , C_2H_4 , HONO, CH_3OH , C_4H_4O , sans avoir besoin d'information sur le profil *a priori*, le contraste thermique ou encore l'altitude d'injection. De plus la présence de nuage ne limite pas la détection IASI-PCA-GE lorsque les composés se trouvent au-dessus des nuages là où des inversions pour générer des produits L2 ne sont pas (encore) facilement réalisables.

Chapitre 7

7 Pollution anthropique

Le dioxyde de soufre a été observé dans les éruptions volcaniques avec la méthode IASI-PCA-GE car il s'agit de sources la plupart du temps très ponctuelles entraînant de très fortes anomalies de concentration de SO_2 (cf. chapitre 5). Cependant d'autres sources de type anthropique peuvent émettre le SO_2 en grande quantité. En effet il est estimé que l'utilisation de combustibles fossiles et les processus industriels représentent une part importante de la contribution en dioxyde de soufre dans l'atmosphère [Graf et al., 1997]. De plus des études ont montré que les émissions de SO_2 anthropique concernent des altitudes beaucoup plus basses que les émissions volcaniques [Graf et al., 1997].

Les chapitres 5 et 6 qui présentent les résultats de détections d'éruptions volcaniques et de feux, ont montré que des événements de pollution anthropique pouvaient également être détectés par la méthode IASI-PCA-GE. En effet certaines détections d'événements peu intenses ont été observées dans les résultats IASI-PCA-GE (cf. chapitre 5 section 5.5) et ont permis de faire ressortir les émissions de dioxyde de soufre, au-dessus de régions non volcaniques, qui ne sont pas associées à des panaches volcaniques de SO_2 transportés, suggérant alors des émissions d'origine anthropique. Par ailleurs, différentes études ont montré la capacité de IASI à détecter la présence du SO_2 anthropique dans la couche limite, en Chine [Boynard et al., 2014] ou dans la région de Norilsk en Russie [Bauduin et al., 2014]. Ces détections ont été possible dans des conditions de fort contraste thermique négatif (à savoir quand la température de la surface est moins élevée que la température de la couche limite) qui sont des conditions favorables pour que IASI soit sensible proche de la surface. Les archives de SO_2 et de C_2H_4 créées à partir de la méthode IASI-PCA-GE ont permis d'observer plusieurs détections associées à des émissions d'origine anthropique. Dans ce chapitre, j'analyse dans un premier temps deux cas de pollution anthropique : un épisode de pollution industrielle ayant eu lieu en Chine en janvier 2013 et un incendie ayant eu lieu dans la région de la mine et de l'usine de traitement de soufre d'Al-Mishraq en Irak en octobre 2016. Par

la suite j'illustre la contribution de certaines industries notamment des centrales de production d'énergie fonctionnant au charbon en Afrique du Sud, Russie, Iran et Turquie dans l'émissions de polluants tels que C_2H_4 et SO_2 à travers l'analyse plus locale de différentes régions industrielles.

7.1 Cas du pic de pollution en Chine (janvier 2013)

7.1.1 Contexte

Il a été précédemment montré dans Boynard et al. [2014] que des épisodes de pollution dans la région de Beijing, Tianjin et Hebei en Chine sont une source de CO , SO_2 , NH_3 ou encore d'aérosol sulfatés comme le sulfate d'ammonium $((NH_4)_2SO_4)$. Dans cette étude, des conditions atmosphériques particulières liées à l'association d'un faible vent et d'une couche limite de basse altitude ont conduit à une faible dispersion des polluants. Aussi, les conditions de nuit en hiver étaient favorables à la présence d'un fort contraste thermique négatif permettant à IASI d'observer ce type d'évènement avec des pics en émission dans les spectres. Dans ces cas on peut essayer d'analyser cet évènement en utilisant les pseudo-résidus GMA (voir leur définition précise dans (Eq. 4.1) qui sont les maxima par canal par canal du granule étudié). Ces maxima sont en principe associés à des pics en émission observables dans les spectres lorsque le contraste thermique est fort (en valeur négative).

7.1.2 Espèces détectées par la méthode IASI-PCA-GE

La figure 7.1 (en haut) illustre les pseudo-résidus GMA calculés pour un granule pendant cet épisode de pollution industrielle le 13 janvier 2013. On peut voir les contributions spectrales de différentes espèces, notamment du CO autour de 2100 cm^{-1} , de NH_3 avec de faibles pics autour de 931 et 967 cm^{-1} ainsi que du SO_2 autour de 1345 cm^{-1} .

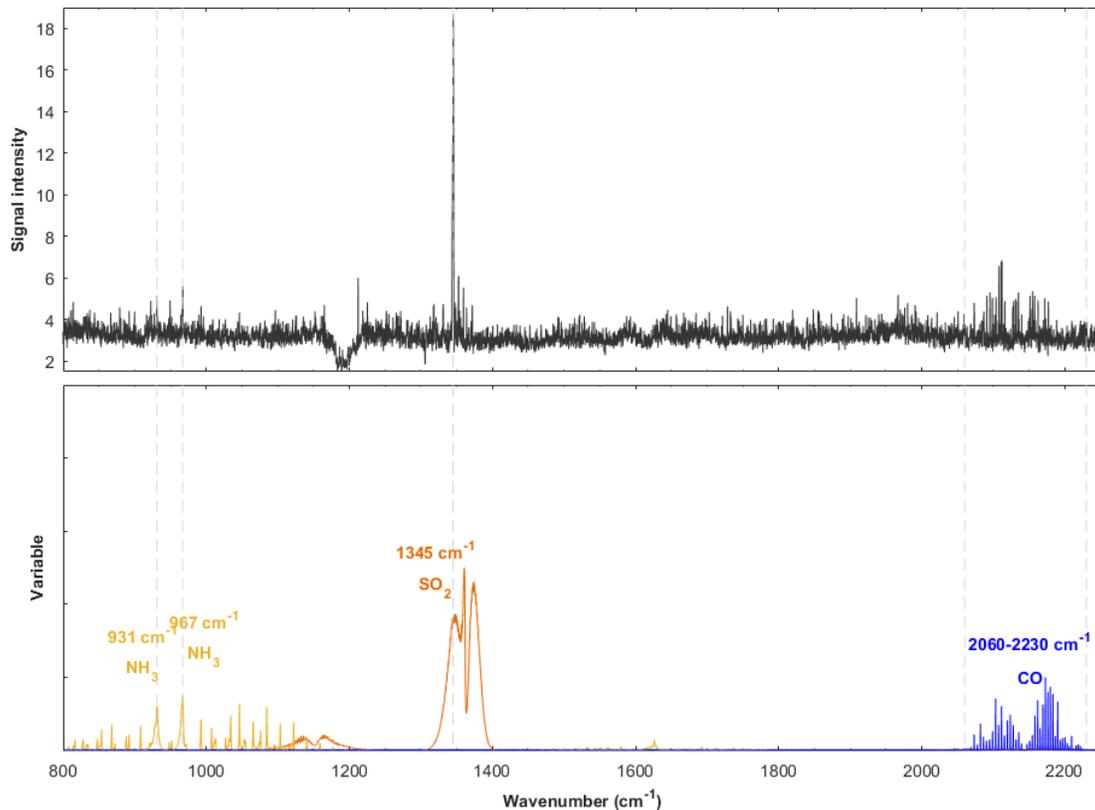


Figure 7.1 : : Graphique du haut : Exemple d'un pseudo-résidu GMA calculé pendant un évènement de pollution en Chine le 13 janvier 2013 à partir des spectres L1C de jour pour IASI/Metop-B; graphique du bas: sections efficaces HITRAN liées à l'absorption de NH_3 en orange, SO_2 en rouge et CO en bleu.

7.1.3 Distribution spatiale des pixels de détection

Après avoir appliqué les seuils statistiques (cf. chapitre 4, section 4.4) au pseudo-résidu GMA, nous déterminons l'ensemble des pixels associée à la présence de différentes espèces chimiques dans le panache. La figure 7.2 (gauche), illustre la distribution spatiale des pixels associés à la détection de SO_2 , NH_3 et CO détectés pendant cet épisode de pollution anthropique. Les détections sont localisées sur quelques pixels au-dessus du continent dans la région de la plaine du Chine du Nord. Cependant, pour NH_3 , seules quelques anomalies ont été détectées, ce qui n'est pas surprenant d'après la figure 7.1 qui montre la présence de seulement deux pics de faible intensité. La figure 5.2 (droite) illustre la distribution spatiale des données IASI L2 SO_2 , NH_3 et CO . On voit clairement un panache de SO_2 et CO dans la région de la plaine de la Chine du Nord, avec un plus grand nombre de pixels détectés pour SO_2 . Pour NH_3 , les pixels sont plus dispersés, cependant les signaux les plus

élevées se situent dans cette même région urbaine/industrielle. Dans ce cas de pollution anthropique, la méthode IASI-PCA-GE permet de détecter l'épisode, cependant beaucoup moins de pixels sont détectés que pour les données IASI L2. Ce manque de sensibilité peut s'expliquer par la définition de seuils F_3 trop restrictifs dans la méthode IASI-PCA-GE. Il faut noter que la méthode IASI-PCA-GE ne permet aucune détection au-dessus de la mer, ce qui pourrait être lié au plus faible contraste thermique au-dessus des océans par rapport aux continents.

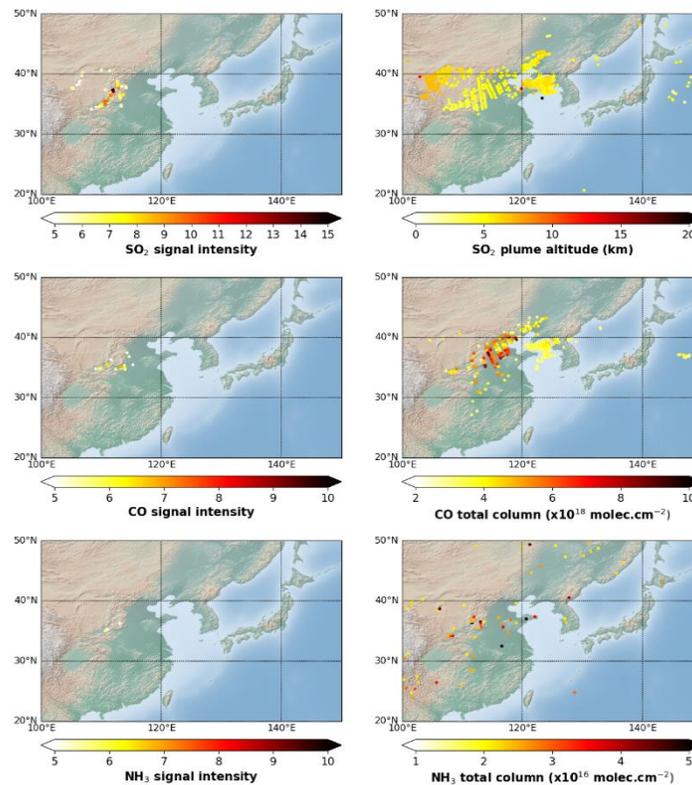


Figure 7.2: Analyse d'un épisode de pollution en Chine le 13 Janvier 2013 à partir des spectres L1C de nuit pour IASI/Metop-A. A gauche la distribution spatiale des détections IASI-PCA-GE associée au SO₂, CO et NH₃. A droite même chose pour les données d'inversion de SO₂ altitude de panache, CO et NH₃ colonne totale (molec.cm⁻²).

En conclusion le signal GMA permet de caractériser les signatures spectrales associées à la présence de CO, NH₃ et SO₂, ce qui corrobore les résultats de Boynard et al. [2014]. Cependant les résultats montrent que la méthode est peu sensible à la détection de ce type d'épisode.

7.2 Cas de l'incendie d'Al-Mishraq, Irak (octobre 2016)

7.2.1 Contexte

Un incendie provoqué par Daesh, est survenu entre le 20 et le 27 octobre 2016 dans la mine d'Al-Mishraq près de Mosul en Irak. Cet évènement a été observé par [Björnham et al., 2017] qui montre que la quantité totale de dioxyde de soufre relâché a été estimée à 161 kt pendant les 7 jours des feux avec une émission moyenne de 23 kt par jour.

7.2.2 Espèces détectées par la méthode IASI-PCA-GE

La figure 7.3 illustre le pseudo-spectre GMI contenant les spectres du panache émis par l'incendie de la mine d'Al-Mishraq le 24 octobre 2016 avec les données de nuit qui permettent une meilleure détection comparée aux données de jour pour ce cas d'étude. Ce pseudo-spectre est caractérisé par un pic d'absorption associé à l'artefact de reconstruction lié à HNO_3 autour de $\sim 1325.75 \text{ cm}^{-1}$ (cf. chapitre 5, section 5.2.3) et deux pics d'absorption associés à la contribution du SO_2 autour de 1345 cm^{-1} et 1371 cm^{-1} . Le signal maximal de SO_2 se situe autour de 1371 cm^{-1} avec une intensité d'environ -14. Je rappelle que le chapitre 5, a montré que pour les cas de volcans de dégazage, le pic maximal associé à l'absorption du SO_2 est situé autour de 1345 cm^{-1} alors que pour les cas d'éruptions volcaniques intenses, le pic maximal d'absorption se situe généralement autour de $1371\text{-}1377 \text{ cm}^{-1}$. Cela suggère que cet évènement pourrait être classé comme de moyenne intensité. Cette suggestion est bien étayée par la figure 7.4 (à droite) qui montre la colonne totale de SO_2 jusqu'à 5 DU. Dans ce cas d'étude, la concentration de SO_2 étant relativement importante, au-dessus de 0.5 DU, avec une altitude de plus de 5 km, j'ai choisi de comparer les résultats de ma méthode avec les données IASI L2 SO_2 (colonne totale) disponibles sur AERIS (<https://www.aeris-data.fr/>).

La présence de l'artefact de reconstruction à 1325.75 cm^{-1} est expliquée par l'interférence des absorptions de SO_2 et HNO_3 dans la région spectrale autour de $1300\text{-}1350 \text{ cm}^{-1}$ comme observé dans le cas de l'éruption de l'Ubinas (cf. chapitre 5). Ici l'évènement est moins intense qu'une éruption volcanique et les pics secondaires de HNO_3 autour de $750\text{-}950 \text{ cm}^{-1}$ ne sont pas observables.

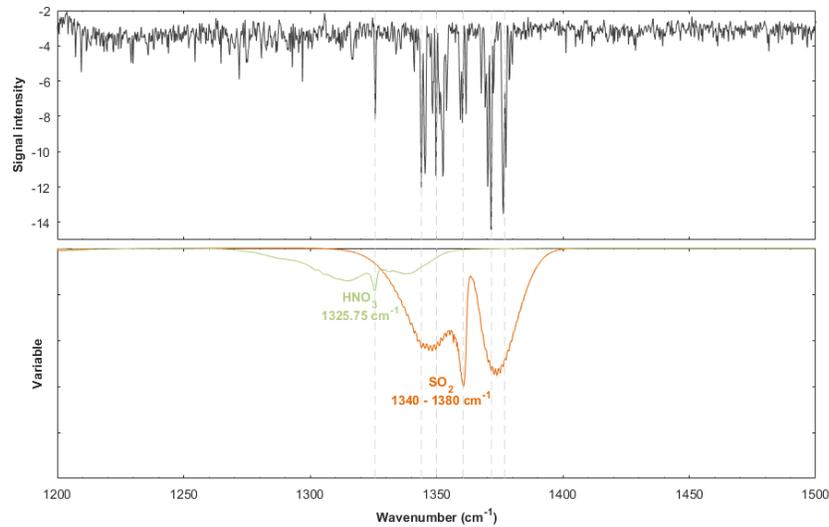


Figure 7.3 : Graphique du haut : Exemple de pics dans un pseudo-résidu GMI (valeurs négatives) calculé pendant l'incendie d'Al-Mishraq en Irak le 24 octobre 2016 à partir des spectres L1C de nuit pour IASI/Metop-B; graphique du bas : sections efficaces HITRAN liées à l'absorption de HNO_3 en vert clair et celles de SO_2 en orange.

7.2.3 Distribution spatiale des pixels de détection

La distribution spatiale des détections associées à SO_2 est illustrée dans la figure 7.2 et permet d'observer le transport du panache dans la partie sud est du pays grâce aux données de concentrations. On peut noter que la méthode IASI-PCA-GE permet d'observer le panache de SO_2 mais qu'avec ses seuils restrictifs elle ne permet pas de détecter autant de pixels que dans les données de niveau 2. En effet dans les données de colonnes totales on peut observer certains pixels caractérisés par une faible concentration, non observée dans le produit SO_2 de la méthode IASI-PCA-GE.

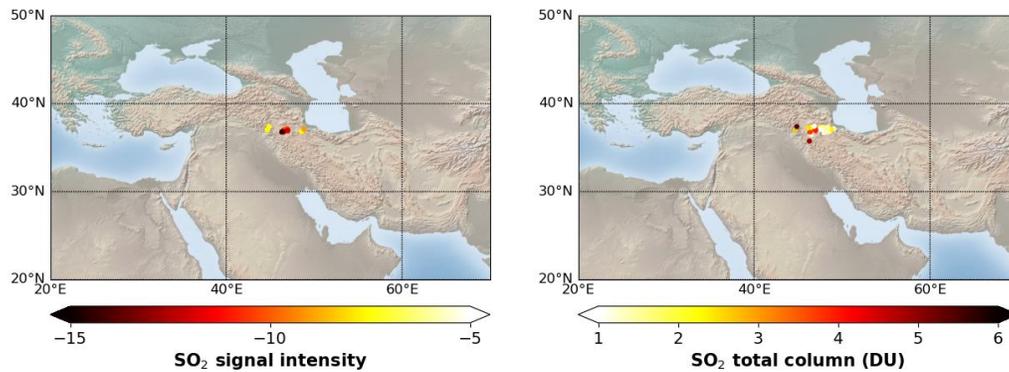


Figure 7.4: Distribution spatiale des détections IASI-PCA-GE associées à la détection du SO_2 pendant l'incendie d'Al-Mishraq en Irak le 24 octobre 2016 à partir des spectres L1C de nuit de IASI/Metop-B.

Le cas de l'incendie d'Al-Mishraq a été détecté par la méthode IASI-PCA-GE pour les indicateurs du dioxyde de soufre (Tableau 4.1) et a montré plusieurs pics intenses (minima de la Figure 7.3) pour les canaux de SO_2 que l'on retrouve habituellement dans des cas d'éruptions intenses. Cependant l'évènement restant peu intense, la méthode de détection ne permet de mettre en évidence qu'un faible nombre de pixels associés à l'évènement.

7.3 Autres cas d'étude

Dans cette partie, je me focalise sur différentes régions pour lesquelles de nombreuses détections associées aux SO_2 et C_2H_4 ont été faites avec la méthode IASI-PCA-GE pour la série temporelle de IASI/Metop-B. Toutes les détections montrées dans cette partie ont été calculées à partir du GMI qui caractérisé par un signal en absorption.

7.3.1 Sources de SO_2

La figure 7.5 illustre les distributions spatiales de SO_2 au-dessus de quatre régions (Afrique du sud, Russie, Iran, Turquie) pour différents jours de la période IASI/Metop-B. Certaines de ces détections ne sont observables que pour un pixel isolé ou quelques pixels aux alentours, cependant ils sont caractérisés par des intensités assez fortes dans la bande ν_3 d'absorption du SO_2 (de l'ordre de -10 à -20).

Les détections en Afrique du sud le 18 novembre 2013, 25 mai 2016 et 13 octobre 2021 permettent d'observer des anomalies de dioxyde de soufre à proximité des trois centrales électriques à

charbon de Kriel (26.3°S, 29.2°E), Matimba (23.7°S, 27.6°E) ainsi que Medupi (23.7°S, 27.6°E), respectivement. Ces sources sont connues comme émettant entre 6000 et 9000 kg de dioxyde de soufre par GWh produits [Girmay et al., 2017].

Dans la région de Norilsk (69.5°N, 88.3°E) on peut observer trois journées caractérisées par une forte intensité de signal à proximité des fonderies et industries métallurgiques (donc non attribuables à des panaches volcaniques). Bauduin et al. [2014] ont montré que IASI permet de détecter et quantifier SO₂ dans la couche limite dans cette même région grâce à des conditions d'humidité faible et grâce au fort contraste thermique (négatif) pendant l'hiver permettant alors d'observer des signatures de SO₂ en émission. Ils ont en particulier montré l'existence d'un cycle saisonnier avec de fortes concentrations de SO₂ en hiver grâce aux conditions favorables au confinement des polluants dans la couche limite et des concentrations de SO₂ globalement faibles l'été (avec un contraste thermique positif et moins marqué).

Les détections le 12 octobre 2015, 6 juin 2020 et 23 avril 2022 au-dessus de la région entre 28°N-43°N et 30°E-50°E permettent de détecter et attribuer des émissions de SO₂ à 3 pays différents à savoir la Turquie avec les centrales électriques respectivement à Kangal (39.1°N, 37.3°E) et Afsin Elbistan (38.3°N, 37.0°E), l'Iran avec les industries de pétrole et gaz de Chovar (33.7°N, 46.3°E) et l'Iraq avec la centrale électrique de Duhok (36.9°N, 42.8°E). Ces détections très localisées montrent le grand nombre de sources industrielles émettrices de SO₂ dans cette région et illustrent la capacité de la méthode IASI-PCA-GE à observer les anomalies liées aux émissions anthropiques.

Enfin la région de Sarcheshmeh (30.0°N, 55.9°E) en Iran est caractérisée par ses industries/fonderies liées au secteur du cuivre. Des détections récurrentes avaient déjà été observées dans la série temporelle globale (chapitre 5) ce qui montre une activité industrielle particulièrement importante (et donc source de pollution) dans cette région.

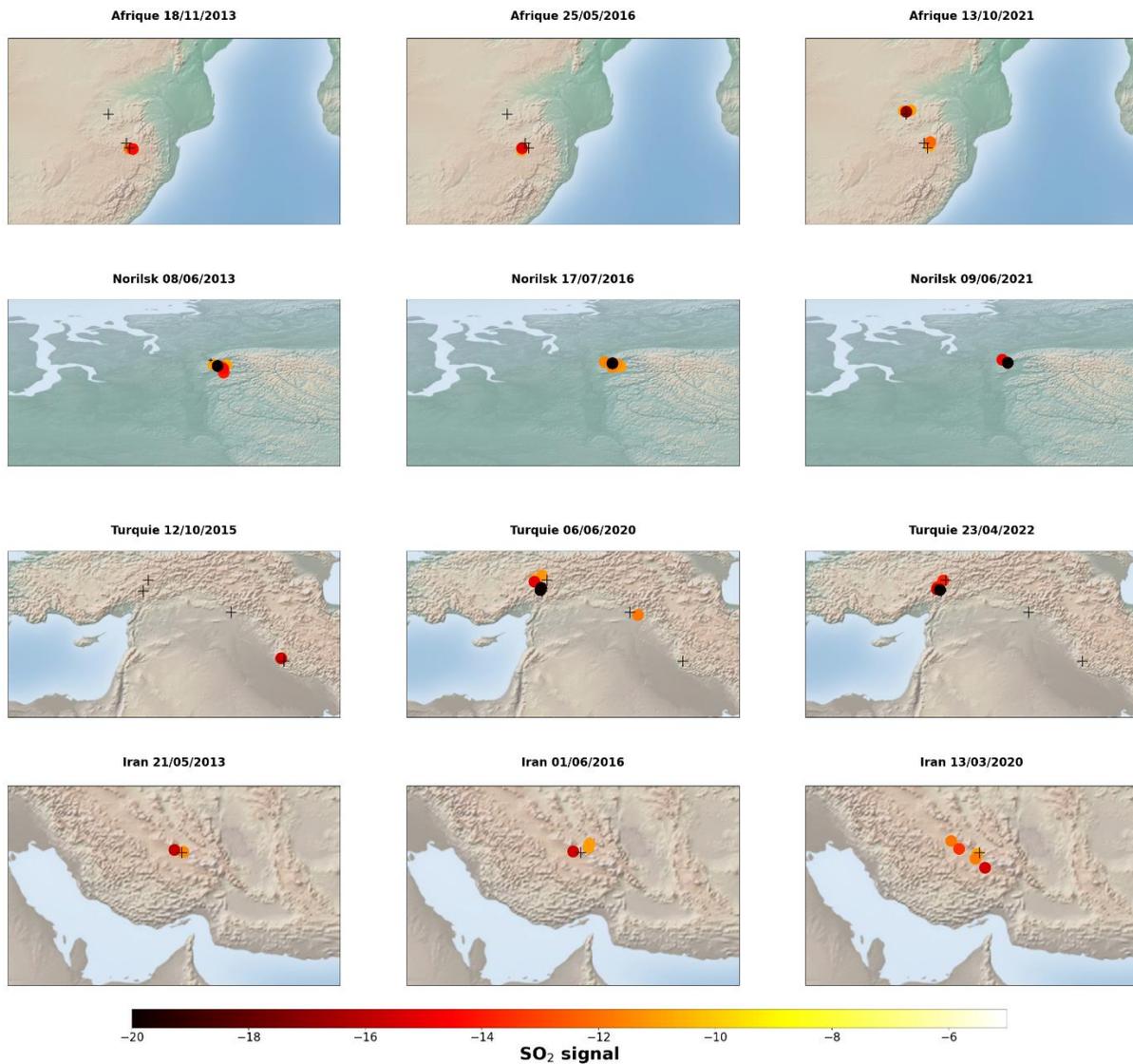


Figure 7.6 : Distribution spatiale des détections IASI-PCA-GE associées au SO₂ pendant différents évènements de pollution anthropique entre 2013 et 2022 à partir des spectres L1C de jour pour IASI/Metop-B. Les croix noires localisent différentes sources industrielles.

7.3.2 Sources de C₂H₄

La figure 7.7 illustre la série temporelle des détections d'éthylène par la méthode IASI-PCA-GE basée sur les données IASI/Metop-B L1C pour la période 2013-2022. La plupart des détections concernant des incendies dont les noms sont indiqués sur la figure, illustrent la saisonnalité des feux de biomasse. On remarque cependant que certaines détections intenses ne sont pas associées

à des feux et une analyse plus fine a permis d'associer certains de ces pics à des émissions de zones industrielles spécifiques.

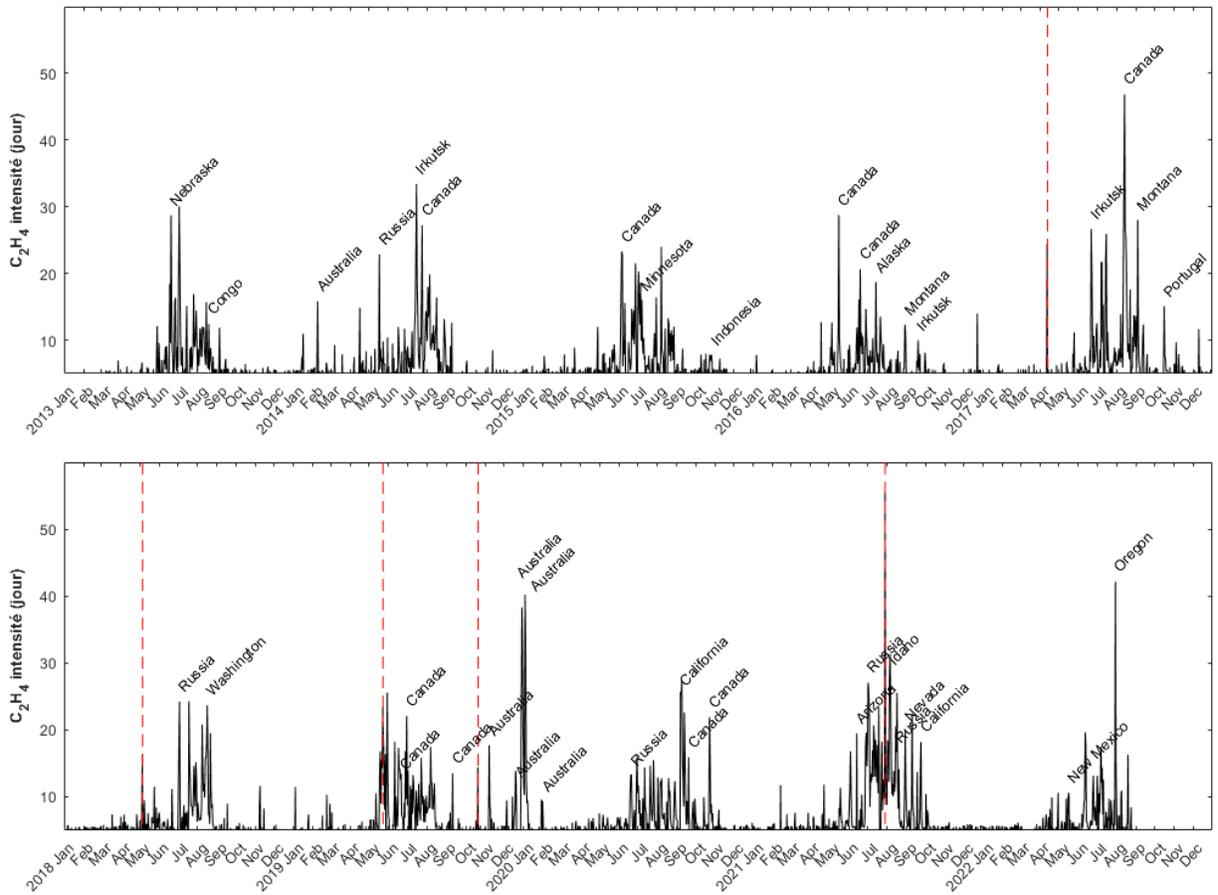


Figure 7.7: Série temporelle des extrema journaliers (en intensité) issus du produit IASI-PCA-GE C_2H_4 entre 2013 et 2022 à partir des spectres L1C de jour pour IASI-B. Les pics liés aux émissions industrielles sont indiqués par des pointillés rouges.

L'analyse détaillée du pic le plus intense du 29 juillet 2021 a permis de localiser cette détection de C_2H_4 autour de $33.5^{\circ}N - 47.6^{\circ}E$ à savoir dans la région du Lorestan en Iran. Le pseudo-résidu pour le pixel correspondant a été analysé et comme le montre la figure 7.8, le résidu associé montre une structure spectrale intense liée à C_2H_4 (avec un signal de -56.9) très bien corrélée au spectre calculé de l'éthylène.

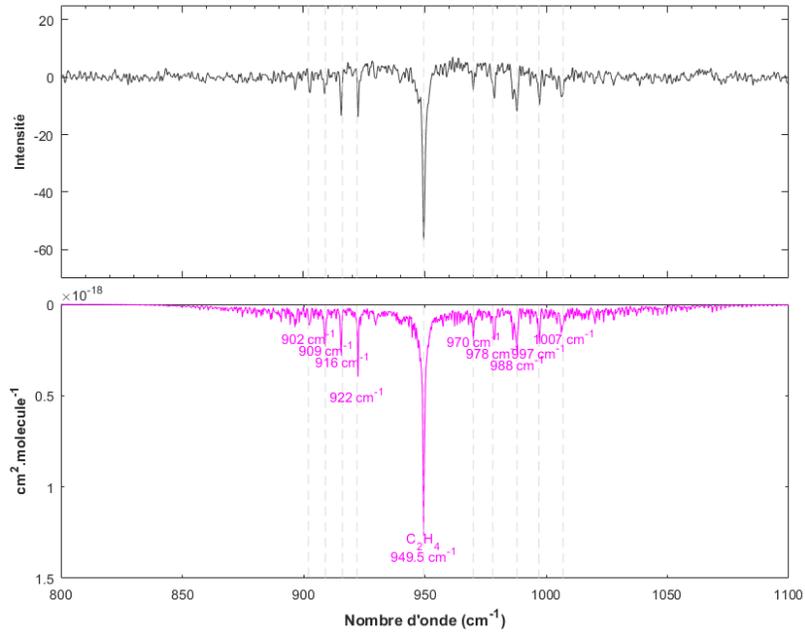


Figure 7.8 : En haut : Résidus associé à l'anomalie de C_2H_4 observée le 29 juillet 2021 au-dessus du Lorestan en Irak. Données de jour de IASI-B L1C. En bas : Les sections efficaces HITRAN liées à l'absorption de C_2H_4 .

On observe qu'aucune autre signature spectrale caractéristique de molécules de feux n'apparaît simultanément dans le résidu (outlier) ce jour-là. En effet la figure 7.9 permet l'illustrer le cas de deux pixels observés le 29 juillet 2021. Ils correspondent à gauche à un cas de détection d'anomalie et à droite à un cas normal (pris à proximité du pixel outlier). Dans la figure 7.9.c le résidu spectral est caractérisé par la forte absorption due à la présence de C_2H_4 autour de 949.5 cm^{-1} (cf. figure 7.8) mais ne semble pas contenir d'autres signatures de molécules de feux par exemple. Cela suggère que son émission n'est pas issue d'un feu de biomasse.

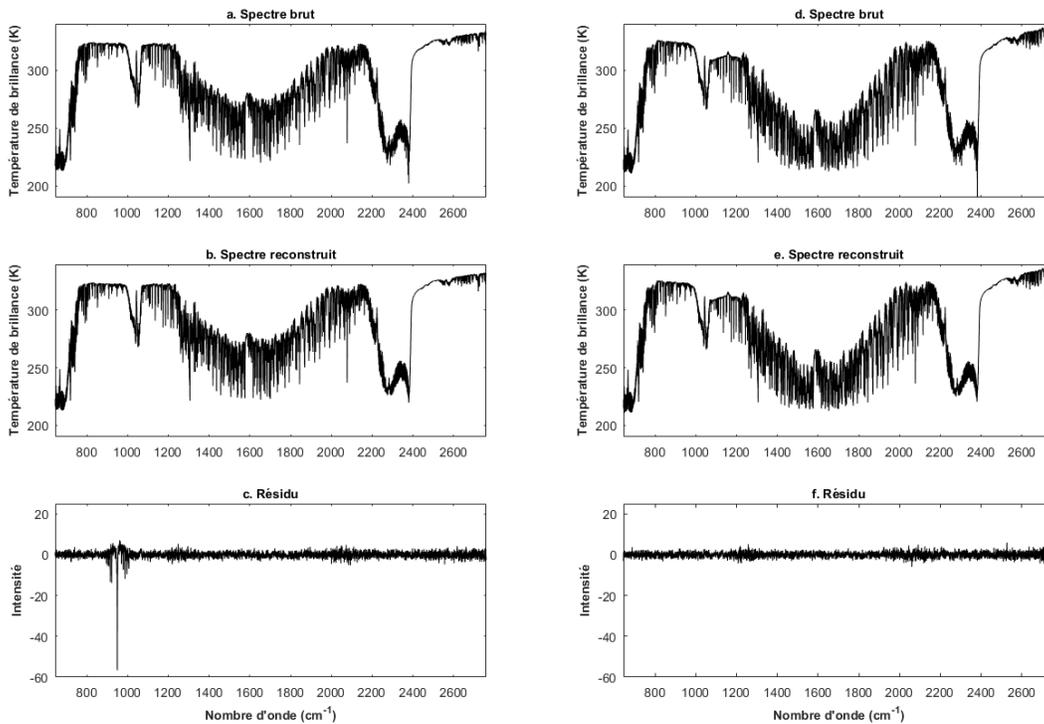


Figure 7.9 : A gauche un exemple de spectre L1C de type outlier enregistré de jour par IASI-B pendant la journée du 29 juillet 2021 dans un panache émis en Irak avec (a) le spectre brut, (b) le spectre reconstruit et (c) le résidu associé. A droite même chose pour un spectre en dehors du panache avec (d) le spectre brut, (e) le spectre reconstruit et (f) le résidu associé.

Une étude récente [Franco et al., 2022] a permis, avec une méthode dite de « supersampling », de traiter 13 années de données IASI entre 2008 et 2020 pour faire apparaître les principales sources de C_2H_4 à l'échelle globale. Ces résultats ont notamment mis en évidence la contribution de différents complexes pétrochimiques, industries de métallurgie ou exploitations minières, aux émissions globales d'éthylène. Cependant la source intense identifiée ici, trop sporadique, n'avait pas été détectée par cette analyse et semble être associée à la production de C_2H_4 dans l'usine pétrochimique de Lorestan, située à environ 50 km de l'emplacement de cette détection. Aussi, le caractère très épisodique de cette anomalie peut provenir par exemple d'une importante fuite.

Parmi les nombreuses détections observées dans cette région géographique au cours de la série temporelle IASI, j'ai analysé certaines dates caractérisées par des anomalies importantes de C_2H_4 . La distribution spatiale des pixels détectés pour ces dates est illustrée sur la figure 7.10. On retrouve des dates caractérisées par de fortes anomalies notamment le 13 avril 2017 autour de

31.9°N-47.8°E au-dessus de l'Iran qui sont potentiellement associées au champ pétrolier d'Halfaya dans l'est de l'Irak. Une détection dans la région de Yanbu autour de 24.0°N-38.3°E le 6 mai 2018 illustre les émissions de l'industrie pétrochimique de Farabi Yanbu. Les détections du 22 et 24 mai 2019 sont localisées dans la même région avec un maximum d'intensité respectivement situé autour de 34.3°N- 47.4°E et 34.2°N-47.5°E qui est associé aux émissions sur plusieurs jours de l'industrie pétrochimique de Kermanshah. Le 21 octobre 2019, un pixel situé autour de 33.7°N,47.2°E est difficilement attribuable aux émissions d'une industrie pétrochimique car il se situe entre les industries pétrochimiques de Kermanshah et de Lorestan. Enfin comme discuté précédemment, la détection le 29 juillet 2021 autour de 33.5°N – 47.6°E est retrouvée et est attribuable à l'industrie pétrochimique de Lorestan.

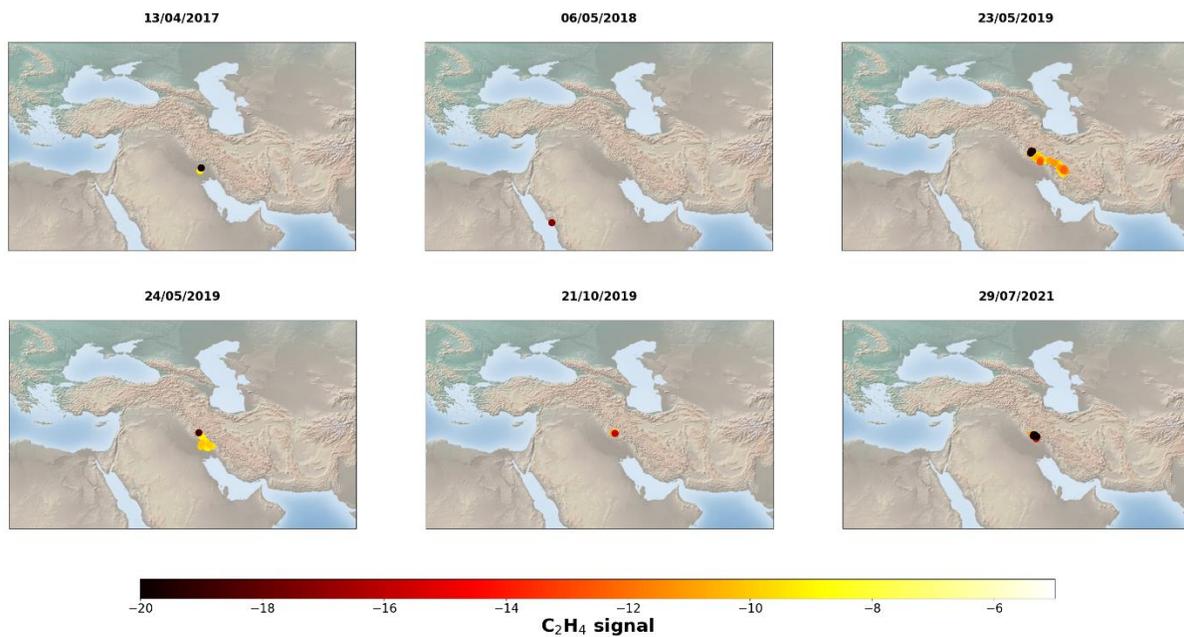


Figure 7.10 : Distribution spatiale des détections IASI-PCA-GE associées au C₂H₄ pendant différents évènements de pollution anthropique entre 2013 et 2022 à partir des spectres L1C de jour pour IASI/Metop-B.

Ces résultats montrent la sensibilité de la méthode IASI-PCA-GE à la pollution anthropique par l'éthylène particulièrement dans la région de l'Iran et l'Arabie saoudite.

7.4 Conclusion générale sur les émissions anthropiques

J'ai montré la possibilité d'observer des anomalies liées à la présence de dioxyde de soufre issu d'évènements non volcaniques. Je me suis alors intéressé à un cas de pollution en Chine pendant lequel j'ai analysé les anomalies avec des pics en émissions dans les résidus. Cependant la méthode ne semble pas assez sensible ou trop restrictive pour observer l'ensemble d'un évènement de pollution régionale lorsqu'il est peu intense. Dans le cas de l'incendie d'une mine de soufre en 2016, j'ai montré que malgré des intensités de signal de SO_2 très inférieures à celles retrouvées dans les éruptions volcaniques, on observe des similitudes spectrales au niveau des canaux spectraux perturbés.

Enfin, des industries émettant du SO_2 ont été détectés et localisées au cours de la série temporelle de IASI-B. Cela a fait apparaître des anomalies dues à des centrales à charbon. Leur localisation précise a été permise par le temps de vie relativement court du SO_2 (qui reste localisé autour du site et qui ne passe pas dans la moyenne troposphère où il pourrait être advecté sur de longues distances).

De la même façon, des détections de C_2H_4 montrent la localisation précise de complexes pétrochimiques. Ces observations de sources ponctuelles caractérisées par des anomalies très intenses permettent de compléter la liste des industries polluantes en C_2H_4 et font potentiellement apparaître des fuites sporadiques mais importantes.

Chapitre 8

8 Conclusions et perspectives

8.1 Conclusions

Avec IASI permettant une couverture globale deux fois par jour et faisant plus d'un million d'observations par jour, ce projet de recherche s'inscrit dans le besoin de développer de nouvelles méthodes d'exploitation des données satellites pour la détection d'évènements extrêmes. Les objectifs sont de détecter, caractériser et catégoriser des événements exceptionnels ayant un impact sur la composition de l'atmosphère et permettre la création d'alertes en quasi temps réel. Dans un contexte de changement climatique avec un impact de l'homme sur la composition chimique de l'atmosphère on observe dans certaines régions du globe une augmentation en fréquence et en intensité des événements comme les pics de pollutions en région urbaine, et les feux de biomasse. L'étude depuis l'espace des événements extrêmes permet de mieux comprendre ces phénomènes en observant notamment leur composition chimique, occurrence, intensité, transport ou encore leur étendue.

L'application de l'analyse en composante principale (ACP) permet la compression de grands volumes de données à partir d'une centaine de vecteurs propres. Cette méthode est utilisée par EUMETSAT sur les données IASI et les spectres reconstruits sont notamment assimilés dans les modèles numériques de prédiction météorologique. Il a été observé que dans certains cas des spectres IASI pouvaient sortir de la variabilité contenue dans les vecteurs propres, créant alors des erreurs de reconstruction dans les spectres reconstruits considérés alors comme des « outliers ». Dans le cadre du projet CNES « Maquette de chaîne de traitement de données IASI pour la détection automatique et la caractérisation d'évènements atmosphériques extrêmes » avec SPASCIA et HYGEOS, l'étude approfondie de l'utilisation de cette méthode pour la détection d'évènements extrêmes a été proposée (IASI-PCA), et mon travail s'inscrit dans ce cadre.

Au cours de mes travaux de thèse, j'ai tout d'abord appliqué la méthode IASI-PCA sur des évènements passés pour analyser la contribution des nombreux indicateurs spectraux (c'est-à-dire des domaines spectraux associés aux signatures d'espèces chimiques) définis dans la méthode. La méthode IASI-PCA a bien montré sa capacité à reconstruire des spectres IASI. A partir de plus de 60 indicateurs définis dans la méthode dont 20 associés à des molécules, des outliers associés à des feux ou des éruptions volcaniques ont pu être détectés. La méthode IASI-PCA a démontré son avantage pour la détection de molécules pour lesquelles les données IASI de niveau 2 (IASI L2) ne sont pas disponibles (HCN, C₂H₂, C₂H₄). De plus en cas de forte contamination nuageuse la restitution de concentration (données L2) n'est pas possible tandis qu'avec la méthode ACP, si l'anomalie de concentration d'une molécule est située au-dessus d'une couche nuageuse, elle sera alors détectable et permettra d'obtenir plus d'informations que les données L2.

Cependant, une des difficultés principales liées à la méthode IASI-PCA est la définition des indicateurs spectraux qui sont souvent trop larges (un indicateur peut inclure l'absorption de plusieurs molécules ou encore plusieurs indicateurs peuvent se superposer). Dans ce contexte, j'ai développé une méthode de détection, reposant sur la méthode IASI-PCA, mais plus précise en termes de caractérisation spectrale et applicable en quasi temps réel. Une première étape a consisté à améliorer la définition des indicateurs spectraux. Pour cela, j'ai défini des indicateurs plus fins à partir de combinaisons de raies spectrales les plus intenses ou de bandes d'absorption fines de 0.50 cm⁻¹ à 2.00 cm⁻¹ de largeur selon les pics d'absorption des molécules, en me basant sur des simulations de transfert radiatif ou des bases de données spectroscopiques (notamment HITRAN). Par ailleurs, cette analyse spectrale a été réalisée sur l'ensemble du domaine spectral IASI afin de tirer le maximum d'information contenue dans les spectres. J'ai finalement défini 36 indicateurs associés à 11 molécules.

Afin de développer une méthode de détection en quasi temps réel, l'analyse des données IASI L1C toutes les 3 minutes d'observation (analyse par granule IASI) est la plus adaptée, car elle permet de couvrir une zone géographique délimitée dans laquelle les conditions atmosphériques peuvent être supposées relativement homogènes. La méthode identifie les valeurs extrêmes des résidus d'un granule donné, et l'analyse repose sur la création d'un pseudo-spectre GE (pour « Granule-Extrema »). Cette nouvelle méthode (IASI-PCA-GE), appliquée sur un grand nombre d'évènements

passés connus et sur l'ensemble de la série temporelle IASI-B (2013-2022), a permis de mettre en avant les signatures spectrales caractéristiques d'une série de molécules associées à différents types d'évènements extrêmes. Elle a notamment permis la détection de 10 molécules : HCN, C₂H₂, HONO, C₄H₄O, C₂H₄, NH₃, CH₃OH, HCOOH, SO₂, CO. D'autres signatures liées à l'absorption de molécules comme CH₃COOH ou la contribution de cendres et aérosols volcaniques ont aussi été observées spectralement dans les résidus mais la définition d'indicateurs fins pour ces composés reste difficile avec cette méthode.

Les archives de détection d'éruption volcanique et de feux ont permis de cibler directement les journées caractérisées par de fortes anomalies pour localiser et analyser certains évènements non connus. Cela a notamment permis de mettre en évidence des pollutions anthropiques très ponctuelles de C₂H₄ dans des complexes pétrochimiques particulièrement autour de l'Arabie Saoudite ou encore d'identifier d'importantes anomalies liées à la présence de SO₂ depuis des centrales électriques dans différentes régions du globe (en Afrique du Sud, Russie, Iran, Turquie). Ces archives permettent d'avoir des références afin de distinguer les évènements les plus intenses détectés ou encore de faire apparaître des cycles ou des tendances liées à l'apparition de certaines espèces chimiques.

8.2 Limites et perspectives de ce projet de recherche

Bien que la méthode IASI-PCA suppose une réduction du bruit (par l'utilisation des premiers vecteurs propres contenant du signal atmosphérique), nous avons identifié des limites pour la détection d'espèces caractérisées par une large absorption spectrale ou par une très faible absorption dans la bande 3 notamment. Certaines détections, en particulier pour des espèces à durée de vie moyenne (quelques mois) peuvent être plus difficile à observer. Dans le cas de CO, son absorption dans la bande 3 de IASI ainsi que son temps de vie de 2 mois suggèrent que sa variabilité dans l'atmosphère est enregistrée dans la base de données de référence. Ainsi, seules les conditions les plus extrêmes d'observation permettent de l'identifier clairement. Une des perspectives pour l'amélioration de la méthode pourrait être la création d'une base de données mieux « nettoyée » des spectres contenant des signatures de CO par exemple lorsque la concentration dépasse 100 ppbv. Une autre perspective développée à SPASCIA repose sur la

reconstruction de deux spectres différents en utilisant respectivement l'ensemble des 150 premiers vecteurs propres et en utilisant ce même ensemble tronqué de certains vecteurs propres contenant la variabilité du CO. Ainsi l'analyse de la différence de signal au niveau des bandes d'absorption de CO entre l'un et l'autre des spectres permet de mettre en évidence le signal de CO.

Par ailleurs, l'étude du cas de l'éruption volcanique de l'Ubinas en 2019 a montré la présence d'artefacts de reconstruction pour certaines molécules, notamment HNO_3 . En effet, la création de la matrice de covariance servant à la reconstruction des spectres IASI permet dans le cas de la méthode IASI-PCA de compresser et reconstruire directement les spectres brutes IASI. Cependant la définition des matrices de covariances sur des domaines spectraux trop larges peuvent entraîner des corrélations entre bandes (notamment entre la bande 1 et 2) et entraîner des fausses détections, en particulier pour des espèces qui interfèrent avec d'autres espèces hautement variables dans l'atmosphère et absorbent dans des régions spectrales associées à différentes bandes. Dans le cas de HNO_3 c'est son absorption commune avec SO_2 autour de 1330 cm^{-1} (bande 2) qui est alors responsable de l'apparition de pics en bande 1 dans la fenêtre atmosphérique. Ces résultats ont montré l'importance de développer des bases d'apprentissage différentes pour chaque bande IASI. Afin de d'améliorer la reconstruction des spectres IASI et d'éviter les erreurs de reconstruction, il conviendrait d'analyser séparément les trois bandes de IASI. L'utilisation de trois matrices de covariance différentes caractérisant la variabilité expliquée dans les domaines spectraux relatifs à ces trois bandes permettraient ainsi la diminution des d'artefacts de reconstruction.

L'analyse IASI-PCA-GE a permis de mettre en évidence des différences spectrales entre les détections d'éruptions volcaniques intenses faisant apparaître des signaux forts de SO_2 (exemple du volcan Ubinas en 2019) autour de $1371\text{-}1376 \text{ cm}^{-1}$ et les spectres issus de dégazages continus de SO_2 (en quantité plus faible) comme dans le cas du volcan Popocatépetl pour lesquelles on trouve un maximum d'absorption autour de 1345 cm^{-1} . Nous avons montré que des sources anthropiques (centrales électriques au charbon notamment) pouvaient donner des signaux spectraux similaires à ceux trouvés dans les cas de dégazages/éruptions de faibles intensité. Ces anomalies ne peuvent alors pas être spectralement différenciées des anomalies volcaniques de

faible intensité. Au cours de cette thèse les deux seuls moyens permettant de les différencier a été de les localiser spatialement dans des régions non volcaniques et de rechercher la présence d'industries (comme les centrales électriques) à proximité des panaches ou de faire apparaitre les contributions d'autres molécules non émises par les volcans comme NH_3 ou CO (cas de la pollution en Chine). Une perspective quant à la catégorisation des détections de SO_2 d'origine anthropique serait par exemple de comparer de manière automatique la localisation géographique des industries connues avec les localisations des panaches détectés.

Une des questions scientifiques de ces travaux de thèse concernait la catégorisation des types d'événements. Il est relativement facile de distinguer les événements de volcanisme et de feux du fait que des molécules différentes sont impliquées dans ce type d'événements. Cependant, pour un type d'événement donné, par exemple les feux, la méthode a-t-elle pu faire apparaitre des molécules selon le type de combustible (e.g. végétation, industrie, etc.)? J'ai montré que la détection de HCN a été retrouvée en particulier pendant les différents feux d'Indonésie pendant la période 2013-2022. Pour d'autres espèces, en particulier à courtes durée de vie comme pour C_2H_4 et NH_3 , la catégorisation est plus compliquée, car ces espèces ont été détectées dans la plupart des feux. Une perspective de ce travail de thèse serait de poursuivre ce travail de catégorisation pour les feux mais également pour les événements de pollution anthropique.

Ces travaux de thèse ont montré la valeur ajoutée de la méthode IASI-PCA-GE pour le suivi et l'analyse des événements atmosphériques extrêmes tels que les feux, les éruptions volcaniques, les épisodes de pollution anthropique, par rapport aux produits IASI de niveau 2 (L2) existants et qui sont disponibles de manière opérationnelle. Pour fournir des alertes en quasi temps réel des anomalies de la composition atmosphérique, la mise à disposition des produits de détections IASI-PCA-GE pourrait être utile sur une plateforme comme AERIS pour permettre aux utilisateurs d'être informés d'éventuels évènements extrêmes. Aujourd'hui les produits de détection de cette méthode sont diffusés au sein de l'équipe IASI au LATMOS et permettent d'être averti des évènements exceptionnels selon deux grandes catégories : le volcanisme dans le cas de détection de SO_2 et les feux dans le cas des détections de HCN , C_2H_2 , C_2H_4 , HCOOH , CO , CH_3OH , HONO , $\text{C}_4\text{H}_4\text{O}$.

Dans le futur, cette technique pourra être adaptée aux successeurs de la mission IASI, les sondeurs IASI-NG, qui devraient voler entre 2024 et 2050 sur les 3 satellites Metop-SG. Avec une résolution spectrale et un rapport signal sur bruit 2 fois meilleurs que pour IASI, des évènements de plus faibles intensités pourront aussi être détectés. Les séries temporelles obtenues dans le cadre de ma thèse pour les éruptions volcaniques et pour les feux pourront alors être complétées, afin de fournir une archive cohérente sur le long terme. En ce qui concerne l'instrument IRS à bord de la plateforme MTG qui volera en orbite géostationnaire au cours des prochaines années, il est déjà prévu qu'étant donné le nombre très conséquent de données, ce sont les spectres déjà compressés qui seront transmis aux utilisateurs. Il faudrait pouvoir mettre en place un système pour aussi récupérer les spectres originaux qui s'éloignent des spectres reconstruits, pour aussi pouvoir exploiter cette technique pour la détection d'évènements extrêmes avec une fréquence d'observation élevée.

Bibliographie

Amirtaimoori S, Khalilian S., Amirnejad, Hamid & Mohebbi, Ali.: Estimation of cost curve to control sulfur dioxide gas (SO₂) emissions from Sarcheshmeh copper complex. *Journal of Environmental Studies*. 40. 431-438, 2014.

Andreae M. O.: Emission of trace gases and aerosols from biomass burning – an updated assessment, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 8523–8546, <https://doi.org/10.5194/acp-19-8523-2019>, 2019.

Andres R. J., and Kasgnoc A. D.: A time-averaged inventory of subaerial volcanic sulfur emissions, *J. Geophys. Res.*, 103(D19), 25251– 25261, doi:10.1029/98JD02091, 1998.

Ani P., Oppenheimer C., Allard P., Shinohara H., Tsanev V. et al.: First estimate of volcanic SO₂ budget for Vanuatu island arc. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, Elsevier, 2012, 211-212, pp.36-46. 10.1016/j.jvolgeores.2011.10.005. insu-00638268, 2012.

Anisman L. O., Chubb K. L., Eelsey J., Al-Refaie A., Changeat Q., Yurchenko S. N., Tennyson J., Tinetti G.: Cross-sections for heavy atmospheres: H₂O continuum, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 278, 108013, 2022, issn = 0022-4073, <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2021.108013>, 2022.

Antonelli P., Revercomb H., Stromovsky L., Smith W., Knuteson R., Tobin D., Garcia R., Howell H., Huang H., Best F.: A principal component noise filter for high spectral infrared measurements, *JGR*, 109, 2004.

Archer D., Eby M., Brovkin V., Ridgwell A., Cao L., Mikolajewicz U., Caldeira K., Matsumoto K., Munhoven G., Montenegro A., Tokos K.: Atmospheric Lifetime of Fossil Fuel Carbon Dioxide, *Annual Review of Earth and Planetary Sciences* 2009 37:1, 117-134, 2009.

Atkinson N. C., et al: AAPP developments and experiences with processing METOP data. *Proc. International TOVS Study Conference-16*. 2008.

Atkinson N. C., Hilton F. I., Illingworth S. M., Eyre J. R., and Hultberg T.: Potential for the use of reconstructed IASI radiances in the detection of atmospheric trace gases, *Atmos. Meas. Tech.*, 3, 991–1003, <https://doi.org/10.5194/amt-3-991-2010>, 2010.

Auby A. : Modélisation à haute résolution du transport de polluants à longue distance. *Sciences de l'environnement*. Université Pierre et Marie Curie- Paris VI, 2012. Français. tel-00735198, 2012.

Barney W.S., Wingen L.M., Lakin M.J., Brauers T., Stutz J., Finlayson-Pitts B.J.: Infrared Absorption Cross-Section Measurements for Nitrous Acid (HONO) at Room Temperature, *J. Phys. Chem. A* 2000, 104, 1692-1699, 2000.

Barret B., Turquety S., Hurtmans D., Clerbaux C., Hadji-Lazaro J., et al. : Global carbon monoxide vertical distributions from spaceborne high-resolution FTIR nadir measurements, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, European Geosciences Union, 2005, 5 (4), pp.4599-4639. hal-00327940, 2005.

Bauduin S., Clarisse L., Clerbaux C., Hurtmans D. and Coheur P.-F.: IASI observations of sulfur dioxide (SO₂) in the boundary layer of Norilsk, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 119, 4253–4263, <https://doi.org/10.1002/2013JD021405>, 2014.

Bauduin S., Clarisse, L., Hadji-Lazaro J., Theys, N., Clerbaux, C. and Coheur, P.-F.: Retrieval of near-surface sulfur dioxide (SO₂) concentrations at a global scale using IASI satellite observations, *Atmospheric Measurement Techniques*, 9, 721-740, <https://doi.org/10.5194/amt-9-721-2016>, 2016.

Beekmann M., Labouze E.: Détermination des potentiels de formation d’ozone (PCOP) pour différentes espèces gazeuses à l’échelle de l’Europe de l’ouest, amélioration de l’indicateur de pollution photo-oxydante dans les analyses de cycle de vie (ACV), 2004.

Begum A. R., Lempert R., Ali R., Benjaminsen T.A., Bernauer T., Cramer W., Cui X., Mach K., Nagy G., Stenseth N.C., Sukumar R., and Wester P.: Point of Departure and Key Concepts. In: *Climate Change 2022: Impacts, Adaptation and Vulnerability. Contribution of Working Group II to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [Portner H.-O., Roberts D.C., Tignor M., Poloczanska E.S., Mintenbeck K., Alegria A., Craig M., Langsdorf S., Loschke S., Moller V., Okem A., Rama B. (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, UK and New York, NY, USA, pp. 121–196, doi:10.1017/9781009325844.003, 2022.

Beirle S., Hörmann C., Penning de Vries M., Dörner S., Kern C., and Wagner T.: Estimating the volcanic emission rate and atmospheric lifetime of SO₂ from space: a case study for Kīlauea volcano, Hawai‘i, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 8309–8322, <https://doi.org/10.5194/acp-14-8309-2014>, 2014.

Bekki S., Lefevre F.: Stratospheric ozone: History and concepts and interactions with climate, *EPJ Web of Conferences* 1 113-136 (2009), DOI: 10.1140/epjconf/e2009-00914-y, 2009.

Belviso S., Nguyen B. C., Allard P.: Estimate of carbonyl sulfide (OCS) volcanic source strength deduced from OCS/CO₂ ratios in volcanic gases. *Geophysical research letters*, 13(2), 133-136, 1986.

Bisson M., Bureau J., Del Gratta F., Lefevre J.P., Levilain A.: Fiche de données toxicologiques et environnementales des substances chimiques, Ineris, DRC-11-117259-10352A, Version N°2.2 septembre 2011, 2011.

Björnham O., Grahn H., Von Schoenberg P., Liljedahl B., Waleij A., Brännström N.: The 2016 Al-Mishraq sulphur plant fire: Source and health risk area estimation, *Atmospheric Environment*, Volume 169, 2017, Pages 287-296, ISSN 1352-2310, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2017.09.025>, 2017.

Bloom H. J.: The Cross-track Infrared Sounder (CrIS): a sensor for operational meteorological remote sensing, IGARSS 2001. Scanning the Present and Resolving the Future. Proceedings. IEEE 2001 International Geoscience and Remote Sensing Symposium (Cat. No.01CH37217), 2001, pp. 1341-1343 vol.3, doi: 10.1109/IGARSS.2001.976838. 2001.

Blumstein D., Chalon G., Carlier T., Buil C., Hébert P., Maciaszek T., Ponce, G., Phulpin T., Tournier B., Simeoni D., Astruc P., Clauss A.: IASI instrument: Technical overview and measured performances. Proceedings of SPIE- The International Society for Optical Engineering. 5543. 10.1117/12.560907, 2004.

Boersma K. F., Eskes H. J., Veefkind J. P., Brinksma E. J., van Der A R. J. : Near-real time retrieval of tropospheric NO₂ from OMI. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, European Geosciences Union, 2006, 6 (6), pp.12301-12345. hal-00302325, 2006.

Boone C. D., Bernath P. F., Fromm M. D.: Pyrocumulonimbus stratospheric plume injections measured by the ACE-FTS. Geophysical Research Letters, 47, e2020GL088442. <https://doi.org/10.1029/2020GL088442>, 2020.

Bouyssel F., Berre L., Bénichou H., Chambon P., Girardot N., Guidard V., Loo C., Mahfouf J.-F., Moll P., Payan C. and Raspaud D.: The 2020 global operational NWP data assimilation system at Météo-France. In Data assimilation for atmospheric, oceanic and hydrologic applications (Vol. IV), Park, S.K. and Xu, L. (eds.), 645–664. Switzerland: Springer. https://doi.org/10.1007/978-3-030-77722-7_25, 2022.

Boynard A. : Exploitation des observations satellitaires IASI couplées à un modèle régional pour l'amélioration de la prévision des épisodes de pollution en ozone. Océan, Atmosphère. Université Pierre et Marie Curie- Paris VI, 2009. Français. tel-00489656, 2009.

Boynard A, Clerbaux C, Clarisse L., Safieddine S., Pommier M., M. Van Damme M., Bauduin S., Oudot C., Hadji-Lazaro J., Hurtmans D., Coheur P.-F., First simultaneous space measurements of atmospheric pollutants in the boundary layer from IASI: a case study in the North China Plain Geophys. Res. Lett., 41 (2014), pp. 645-651, 2014.

Brown A. T., Chipperfield M. P., Boone C., Wilson C., Walker K. A. , Bernath P. F.:Trends in atmospheric halogen containing gases since 2004, Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, Volume 112, Issue 16, 2011, Pages 2552-2566, ISSN 0022-4073, <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2011.07.005>, 2011.

Bruno A.G., Harrison J.J., Moore D.P. et al.: Satellite observations and modelling of hydrogen cyanide in the Earth's atmosphere. Il Nuovo Cimento C- Colloquia on Physics, 45 (6). 184. ISSN 2037-4909, 2022.

Butz A., Dinger A, Bobrowski N, Kostinek J., Fieber L., Fischerkeller C., Giuffrida G., Hase F., Klappenbach F., Kuhn J., Lübcke P., Tirpitz L., Tu Q.: Remote sensing of volcanic CO₂, HF, HCl, SO₂, and BrO in the downwind plume of Mt. Etna. Atmospheric Measurement Techniques Discussions. 1-26. 10.5194/amt-2016-254, 2016.

Cardil A., Merenciano D., Molina T.D.: Wildland fire typologies and extreme temperatures in NE Spain. *Iforest*. 10. 10.3832/ifer1939-009., 2016.

Carn S.A.: Eruptive and passive degassing of sulfur dioxide at Nyiragongo volcano (D.R. Congo): the 17 January 2002 eruption and its aftermath, *Acta Vulcanologica*, 14-15, 75-86, 2004.

Carn S. A., Strow L. L., de Souza-Machado S., Edmonds Y., and Hannon S.: Quantifying tropospheric volcanic emissions with AIRS: The 2002 eruption of Mt. Etna (Italy), *Geophys. Res. Lett.*, 32, L02301, doi:10.1029/2004GL021034, 2005.

Carn S.A., Clarisse L., Prata A.J.: Multi-decadal satellite measurements of global volcanic degassing, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, Volume 311, 2016, Pages 99-134, ISSN 0377-0273, <https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2016.01.002>, 2016.

Carracedo J.C., Troll V.R., Day J.M.D., Geiger H., Aulinas M., Soler V., Deegan F.M., Perez-Torrado F.J., Gisbert G., Gazel E., Rodriguez-Gonzalez A. and Albert H. : The 2021 eruption of the Cumbre Vieja volcanic ridge on La Palma, Canary Islands. *Geology Today*, 38: 94-107. <https://doi.org/10.1111/gto.12388>, 2022.

Chaliyakunnel S., Millet D. B., Wells K. C., Cady-Pereira K. E., Shephard M. W. : A large underestimate of formic acid from tropical fires: constraints from space-borne measurements. *Environmental Science & Technology*, 50(11), 5631-5640, 2016.

Chefdeville S. : Analyse de trois années d'« outliers » dans les mesure de l'instrument IASI : détection et étude d'évènements extrêmes, rapport de stage Master 1, 2010.

Chen D., et al.: Airborne measurements of BrO and the sum of HOBr and Br₂ over the Tropical West Pacific from 1 to 15 km during the CONvective TRAnsport of Active Species in the Tropics (CONTRAST) experiment, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 121, 12,560– 12,578, doi:10.1002/2016JD025561, 2016.

Ciccioli P., Centritto M., Loreto F.: Biogenic volatile organic compound emissions from vegetation fires. *Plant, cell & environment*. 37. 10.1111/pce.12336, 2014.

Clarisse L., Coheur P-F., Prata A.J., Hurtmans D., Razavi A., et al.: Tracking and quantifying volcanic SO₂ with IASI, the September 2007 eruption at Jebel at Tair. *Atmospheric Chemistry and Physics*, European Geosciences Union, 2008, 8 (24), pp.7723-7734. hal-00349230, <https://doi.org/10.5194/acp-8-7723-2008>, 2008.

Clarisse L., Shephard M. W., Dentener F., Hurtmans D., Cady-Pereira K., Karagulian F., Van Damme M., Clerbaux C., and Coheur P-F. : Satellite monitoring of ammonia: A case study of the San Joaquin Valley, *J. Geophys. Res.*, 115, D13302, doi:10.1029/2009JD013291, 2010.

Clarisse L., Coheur P-F., Chefdeville S., Lacour J-L., Hurtmans D., et al.: Infrared satellite observations of hydrogen sulfide in the volcanic plume of the August 2008 Kasatochi eruption. *Geophysical*

Research Letters, American Geophysical Union, 2011, 38 (10), pp. L10804. hal-00595308. <https://doi.org/10.1029/2011GL047402>, 2011.

Clarisse L., R'Honi Y., Coheur P.-F., Hurtmans D., Clerbaux C.: Thermal infrared nadir observations of 24 atmospheric gases, *Geophys. Res. Lett.*, 38, L10802, doi:10.1029/2011GL047271, 2011.

Clarisse L., Hurtmans D., Clerbaux C., Hadji-Lazaro J., Ngadi Y., and Coheur P.-F.: Retrieval of sulphur dioxide from the infrared atmospheric sounding interferometer (IASI), *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 581–594, <https://doi.org/10.5194/amt-5-581-2012>, 2012.

Clarisse L., Deguine A., Hultberg T., Theys N., Carn S., Fontijn K., Decoster L., Hadji-Lazaro J., Hurtmans D., Camy-Peyret C., Clerbaux C., and Coheur P.-F.: Measurements of HCl in the volcanic plumes of Calbuco (2015) and Raikoke (2019), EGU General Assembly 2020, Online, 4–8 May 2020, EGU2020-10651, <https://doi.org/10.5194/egusphere-egu2020-10651>, 2020.

Clerbaux C., Edwards D. P., Deeter M., Emmons L., Lamarque J.-F., Tie X. X., Massie S. T., and Gille J.: Carbon monoxide pollution from cities and urban areas observed by the Terra/MOPITT mission, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L03817, doi:10.1029/2007GL032300, 2008.

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, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 6041–6054, <https://doi.org/10.5194/acp-9-6041-2009>, 2009.

Clerbaux C., George M., Hadji-Lazaro J., Clarisse L., Hurtmans D., et al. : Mesure du SO₂ et des cendres volcaniques avec Iasi. *La Météorologie, Météo et Climat*, 2011, Août (n°74), pp.35-41. hal-00665433, 2011.

Coheur P. F., Barret B., Turquety S., Hurtmans D., Hadji-Lazaro J., & Clerbaux, C. : Retrieval and characterization of ozone vertical profiles from a thermal infrared nadir sounder. *Journal of Geophysical Research*, 110, D24303. <https://doi.org/10.1029/2005JD005845>, 2005.

Coheur P.-F., Clarisse L., Turquety S., Hurtmans D., Clerbaux C.: IASI measurements of reactive trace species in biomass burning plumes. *Atmospheric Chemistry and Physics, European Geosciences Union*, 2009, 9 (15), pp.5655-5667, 10.5194/acp-9-5655-2009, hal-00409704, 2009.

Collard A.D., McNally A.P., Hilton F.I., Healy S.B. and Atkinson N.C.: The use of principal component analysis for the assimilation of high-resolution infrared sounder observations for numerical weather prediction. *Q.J.R. Meteorol. Soc.*, 136: 2038-2050. <https://doi.org/10.1002/qj.701>, 2010.

Collins M., An S.I., Cai W. et al.: The impact of global warming on the tropical Pacific Ocean and El Niño. *Nature Geosci* 3, 391–397 (2010). <https://doi.org/10.1038/ngeo868>, 2010.

Coopmann O., Fourrié N., Guidard V.: Analysis of MTG-IRS observations and general channel selection for numerical weather prediction models. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 148 (745), 1864– 1885. Available from: <https://doi.org/10.1002/qj.4282>, 2022.

Corradini S., Merucci L., and Prata A. J.: Retrieval of SO₂ from thermal infrared satellite measurements: correction procedures for the effects of volcanic ash, *Atmos. Meas. Tech.*, 2, 177–191, <https://doi.org/10.5194/amt-2-177-2009>, 2009.

Crafford A.E., Venzke E., eds.: *Bulletin of the Global Volcanism Network*, 42:9. Smithsonian Institution, Global Volcanism Program, 2017. Report on Popocatepetl (Mexico), <https://doi.org/10.5479/si.GVP.BGVN201709-341090>, 2017.

Crevoisier C., Chédin A., Matsueda H., Machida T., Armante R., and Scott N. A.: First year of upper tropospheric integrated content of CO₂ from IASI hyperspectral infrared observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 4797–4810, <https://doi.org/10.5194/acp-9-4797-2009>, 2009.

Crevoisier C., Nobileau D., Armante R., Crépeau L., Machida T., Sawa Y., Matsueda H., Schuck T., Thonat T., Pernin J., Scott N. A., and Chédin A.: The 2007–2011 evolution of tropical methane in the mid-troposphere as seen from space by MetOp-A/IASI, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 4279–4289, <https://doi.org/10.5194/acp-13-4279-2013>, 2013.

Crevoisier, C., Clerbaux, C., Guidard, V., Phulpin, T., Armante, R., Barret, B., Camy-Peyret, C., Chaboureaud, J.-P., Coheur, P.-F., Crépeau, L., Dufour, G., Labonnote, L., Lavanant, L., Hadji-Lazaro, J., Herbin, H., Jacquinet-Husson, N., Payan, S., Péquignot, E., Pierangelo, C., Sellitto, P., and Stubenrauch, C.: Towards IASI-New Generation (IASI-NG): impact of improved spectral resolution and radiometric noise on the retrieval of thermodynamic, chemistry and climate variables, *Atmos. Meas. Tech.*, 7, 4367–4385, <https://doi.org/10.5194/amt-7-4367-2014>, 2014.

Deeds D.A.: *The natural geochemistry of tetrafluoromethane and sulfur hexafluoride: studies of ancient Mojave Desert groundwaters, North Pacific seawaters and the summit emissions of Kilauea Volcano*. University of California, San Diego, 2008.

De Leeuw J., Schmidt A., Witham C. S., Theys N., Taylor I. A., Grainger R. G., Pope R. J., Haywood J., Osborne M., and Kristiansen N. I.: The 2019 Raikoke volcanic eruption – Part 1: Dispersion model simulations and satellite retrievals of volcanic sulfur dioxide, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 10851–10879, <https://doi.org/10.5194/acp-21-10851-2021>, 2021.

De Longueville H., Clarisse L., Whitburn S., Franco B., Bauduin S., Clerbaux C., Camy-Peyret C., Coheur P.-F.: Identification of Short and Long-Lived Atmospheric Trace Gases from IASI Space Observations, *Geophysical Research Letters*, 48, 5, (2021). <https://doi.org/10.1029/2020GL091742>, 2021..

Delmas R., Mégie G., et Peuch V.-H. : *Physique et chimie de l’atmosphère*, Editions Belin, collection Echelles, 2005.

Delmelle P., Wadsworth F. B., Maters E. C., Ayris P. M.: High Temperature Reactions Between Gases and Ash Particles in Volcanic Eruption Plumes. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry* 2018; 84 (1): 285–308. doi: <https://doi.org/10.2138/rmg.2018.84.8>, 2018.

Divakarla M., Barnet C., Goldberg M., Maddy E., Irion F., Newchurch M., Liu X., Wolf W., Flynn L., Labow G., Xiong X., Wei J., Zhou L.: Evaluation of Atmospheric Infrared Sounder ozone profiles and total ozone retrievals with matched ozonesonde measurements, ECMWF ozone data, and Ozone Monitoring Instrument retrievals, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, *J. Geophys. Res.*, 113, D15, 0148-0227, <https://doi.org/10.1029/2007JD009317>, 2008.

Dolan W., Payne V.H., Susan S. Kualwik K., Bowman W.: Satellite observations of ethylene (C₂H₄) from the Aura Tropospheric Emission Spectrometer: A scoping study, *Atmospheric Environment*, Volume 141, 2016, Pages 388-393, ISSN 1352-2310, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.07.009>, 2016.

Duane A., Piqué M., Castellnou M., Brotons L.: Predictive modelling of fire occurrences from different fire spread patterns in Mediterranean landscapes. *International Journal of Wildland Fire* 24, 407-418, <https://doi.org/10.1071/WF14040>, 2015.

Duflot V., Hurtmans D., Clarisse L., R'honi Y., Vigouroux C., De Mazière M., Mahieu E., Servais C., Clerbaux C., and Coheur P.-F.: Measurements of hydrogen cyanide (HCN) and acetylene (C₂H₂) from the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI), *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 917–925, <https://doi.org/10.5194/amt-6-917-2013>, 2013.

Duflot V., Wespes C., Clarisse L., Hurtmans D., Ngadi Y., Jones N., Paton-Walsh C., Hadji-Lazaro J., Vigouroux C., De Mazière M., Metzger J.-M., Mahieu E., Servais C., Hase F., Schneider M., Clerbaux C., and Coheur, P.-F. : Acetylene (C₂H₂) and hydrogen cyanide (HCN) from IASI satellite observations : global distributions, validation, and comparison with model, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 10509–10527, <https://doi.org/10.5194/acp-15-10509-2015>, 2015.

Dufour G. and Boone C. D., Rinsland C. P., Bernath P. F.: First space-borne measurements of methanol inside aged southern tropical to mid-latitude biomass burning plumes using the ACE-FTS instrument, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 2006, 11, 3463–3470, 10.5194/acp-6-3463-2006, 2006.

Dufour G., Eremenko M., Siour G., Sellitto P., Cuesta, J., Perrin, A., Beekmann M.: 24 h Evolution of an Exceptional HONO Plume Emitted by the Record-Breaking 2019/2020 Australian Wildfire Tracked from Space. *Atmosphere* 2022, 13, 1485, <https://doi.org/10.3390/atmos13091485>, 2022.

Duncan B. N., Logan J. A.: Model analysis of the factors regulating the trends and variability of carbon monoxide between 1988 and 1997, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 7389–7403, 2008, <http://www.atmos-chem-phys.net/8/7389/2008/>, 2008.

Fan X., Cai J., Yan C., Zhao J., Guo Y., Li C., Dällenbach K. R., Zheng F., Lin Z., Chu B., Wang Y., Dada L., Zha Q., Du W., Kontkanen J., Kurtén T., Iyer S., Kujansuu J. T., Petäjä T., Worsnop D. R., Kerminen V.-M., Liu Y., Bianchi F., Tham Y. J., Yao L., Kulmala M.: Atmospheric gaseous hydrochloric and hydrobromic acid in urban Beijing, China: detection, source identification and potential atmospheric impacts, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 11437–11452, <https://doi.org/10.5194/acp-21-11437-2021>, 2021.

Field R.D., van der Werf G.R., Fanin T., Fetzer E.J., Fuller R., Jethva H., Levy R., Livesey N.J., Luo M., Torres O., Worden H.M.: Indonesian fire activity and smoke pollution in 2015 show persistent nonlinear sensitivity to El Niño-induced drought, *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 113, 33, 9204-9209, 2016, [10.1073/pnas.1524888113](https://doi.org/10.1073/pnas.1524888113), 2016.

Fiolek A.: Selected Publications on TIROS Satellites and Satellite Meteorology Available from the NOAA Central Library Network, 2011.

Fischer T.P., Arellano S., Carn S. et al.: The emissions of CO₂ and other volatiles from the world's subaerial volcanoes. *Sci Rep* 9, 18716, <https://doi.org/10.1038/s41598-019-54682-1>, 2019.

Fortems-Cheiney A., Chevallier F., Pison I., Bousquet P., Szopa S., Deeter M. N., Clerbaux C. : Ten years of CO emissions as seen from Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT), *J. Geophys. Res.*, 116, D05304, doi:10.1029/2010JD014416, 2011.

Franco B., Clarisse L., Stavrakou T., Müller J.-F., Van Damme M., Whitburn S., et al.: A general framework for global retrievals of trace gases from IASI: Application to methanol, formic acid, and PAN. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 123, 13,963– 13,984. <https://doi.org/10.1029/2018JD029633>, 2018.

Franco B., Clarisse L., Stavrakou T., Müller J.-F., Taraborrelli D., Hadji-Lazaro J., Hannigan J., Hase F., Hurtmans D., Lutsch E., Mahieu E., Ortega I., Schneider M., Strong K., Vigouroux C., Clerbaux C., Coheur P.-F. : Spaceborne Measurements of Formic and Acetic Acid: A Global View of the Regional Sources. *Geophysical Research Letters*. 47. e2019GL086239. [10.1029/2019GL086239](https://doi.org/10.1029/2019GL086239), 2020.

Franco B., Blumenstock T., Cho C. et al.: Ubiquitous atmospheric production of organic acids mediated by cloud droplets. *Nature* 593, 233–237 (2021). <https://doi.org/10.1038/s41586-021-03462-x>, 2021.

Franco B., Clarisse L., Van Damme M. et al.: Ethylene industrial emitters seen from space. *Nat Commun* 13, 6452 (2022). <https://doi.org/10.1038/s41467-022-34098-8>, 2022.

Fuzzi S., Baltensperger U., Carslaw K., Decesari S., Denier van der Gon H., Facchini M. C., Fowler D., Koren I., Langford B., Lohmann U., Nemitz E., Pandis S., Riipinen I., Rudich Y., Schaap M., Slowik J. G., Spracklen D. V., Vignati E., Wild M., Williams M., and Gilardoni S.: Particulate matter, air quality and climate: lessons learned and future needs, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 8217–8299, <https://doi.org/10.5194/acp-15-8217-2015>, 2015.

Ganci G., Harris A. J. L., Del Negro C., Guehenneux Y., Cappello A., Labazuy P., Calvari S., and Gouhier M.: A year of lava fountaining at Etna: Volumes from SEVIRI, *Geophys. Res. Lett.*, 39, L06305, doi:10.1029/2012GL051026, 2012.

Garcia M. O., Pietruszka A. J, Norman M. D., Rhodes J. M.: Kīlauea's Pu'ū Ō'ō Eruption (1983–2018): A synthesis of magmatic processes during a prolonged basaltic event, *Chemical Geology*, Volume 581, 2021, 120391, ISSN 0009-2541, <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2021.120391> , 2021.

García-Sobrino J., Serra-Sagrístà J., Bartrina-Rapesta J. : Hyperspectral IASI L1C Data Compression. *Sensors* (Basel), 2017 Jun 16; 17(6):1404, doi: 10.3390/s17061404, PMID: 28621705; PMCID: PMC5492166, 2017.

Gentner D.R., Worton D.R., Isaacman G., Davis L.C., Dallmann T.R., Wood E.C., Herndon S.C., Goldstein A.H., Harley R.A.: Chemical composition of gas-phase organic carbon emissions from motor vehicles and implications for ozone production, *Environ. Sci. Technol.*, 47 (20) (2013), pp. 11837-11848, 10.1021/es401470e, 2013.

George M., Clerbaux C., Hurtmans D., Turquety S., Coheur P.-F., Pommier M., Hadji-Lazaro J., Edwards D. P., Worden H., Luo M., Rinsland C., and McMillan W.: Carbon monoxide distributions from the IASI/METOP mission: evaluation with other space-borne remote sensors, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 8317–8330, <https://doi.org/10.5194/acp-9-8317-2009>, 2009.

Girmay M. E., Chikobvu D.: Quantifying South Africa's sulphur dioxide emission efficiency in coal-powered electricity generation by fitting the three-parameter log-logistic distribution. *Journal of Energy in Southern Africa*, 28(1), 91-103, 2017.

Goldberg M. D., Qu Y., McMillan L. M., Wolf W., Zhou L., Divakarla M.: AIRS near-real-time products and algorithms in support of operational numerical weather prediction, in *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, vol. 41, no. 2, pp. 379-389, Feb. 2003, doi: 10.1109/TGRS.2002.808307, 2003.

Gordon, L.S. Rothman I.E., Hill C., Kochanov R.V., Tan Y., Bernath P.F., Birk M., Boudon V., Campargue A., Chance K.V., Drouin B.J., Flaud J.-M., Gamache R.R., Hodges J.T., Jacquemart D., Perevalov V.I., Perrin A., Shine K.P., Smith M.-A.H., Tennyson J., Toon G.C., Tran H., Tyuterev V.G., Barbe A., Császár A.G., Devi V.M., Furtenbacher T., Harrison J.J., Hartmann J.-M., Jolly A., Johnson T.J., Karman T., Kleiner I., Kyuberis A.A., Loos J., Lyulin O.M., Massie S.T., Mikhailenko S.N., Moazzen-Ahmadi N., Müller H.S.P., Naumenko O.V., Nikitin A.V., Polyansky O.L., Rey M., Rotger M., Sharpe S.W., Sung K., Starikova E., Tashkun S.A., Vander Auwera J., Wagner G., Wilzewski J., Wcisło P., Yu S., Zak E.J.: The HITRAN2016 molecular spectroscopic database, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, Volume 203, 2017, Pages 3-69, ISSN 0022-4073, <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2017.06.038>, 2017.

Gordon, I.E., Rothman, L.S., Hargreaves, R.J., Hashemi, R., Karlovets, E.V., Skinner, F.M., Conway, E.K., Hill, C., Kochanov, R.V., Tan, Y., Wcisło, P., Finenko, A.A., Nelson, K., Bernath, P.F., Birk, M., Boudon, V., Campargue, A., Chance, K.V., Coustenis, A., Drouin, B.J., Flaud, J. –M., Gamache, R.R., Hodges, J.T., Jacquemart, D., Mlawer, E.J., Nikitin, A.V., Perevalov, V.I., Rotger, M., Tennyson, J., Toon, G.C., Tran, H., Tyuterev, V.G., Adkins, E.M., Baker, A., Barbe, A., Canè, E., Császár, A.G., Dudaryonok, A., Egorov, O., Fleisher, A.J., Fleurbaey, H., Foltynowicz, A., Furtenbacher, T., Harrison, J.J., Hartmann, J. –M., Horneman, V. –M., Huang, X., Karman, T., Karns, J., Kassi, S., Kleiner, I., Kofman, V., Kwabia–Tchana, F., Lavrentieva, N.N., Lee, T.J., Long, D.A., Lukasheskaya, A.A., Lyulin, O.M., Makhnev, V.Y., Matt, W., Massie, S.T., Melosso, M., Mikhailenko, S.N., Mondelain, D., Müller, H.S.P., Naumenko, O.V., Perrin, A., Polyansky, O.L., Raddaoui, E., Raston, P.L., Reed, Z.D., Rey, M., Richard, C., Tóbiás, R., Sadiék, I., Schwenke, D.W., Starikova, E., Sung, K., Tamassia, F., Tashkun, S.A., Auwera,

J. Vander, Vasilenko, I.A., Vighin, A.A., Villanueva, G.L., Vispoel, B., Wagner, G., Yachmenev, A., Yurchenko, S.N. The HITRAN2020 molecular spectroscopic database. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* 277, 107949 (2022). doi:10.1016/j.jqsrt.2021.107949, 2022.

Graf H.-F., Feichter J., Langmann B. : Volcanic sulfur emissions: Estimates of source strength and its contribution to the global sulfate distribution, *J. Geophys. Res.*, 102(D9), 10727– 10738, doi:10.1029/96JD03265, 1997.

Grainger R. G., Lambert A., Taylor F. W., Remedios J. J., Rodgers C. D., Corney M., Kerridge B. J.: Infrared absorption by volcanic stratospheric aerosols observed by ISAMS, *Geophysical Research Letters*, *Geophys. Res. Lett.*, 20, 12, 0094-8276, <https://doi.org/10.1029/93GL00823>, 1993.

Grutter M., Basaldud R., Rivera C., Harig R., Junkerman W., Caetano E., and Delgado-Granados H.: SO₂ emissions from Popocatepetl volcano: emission rates and plume imaging using optical remote sensing techniques, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 6655–6663, <https://doi.org/10.5194/acp-8-6655-2008>, 2008.

Guedj S., Guidard V., Mahfouf J. F. : Preliminary studies towards the use of IASI PC products in the Météo-France global data assimilation system, 2015.

Gutiérrez X., Schiavi F., Keppler H.: The adsorption of HCl on volcanic ash. *Earth and Planetary Science Letters*, Elsevier, 2016, 438, pp.66-74. 10.1016/j.epsl.2016.01.019. hal-02404351, 2016.

Gutmann A., Bobrowski N., Roberts T.J., Rüdiger J., and Hoffmann T.: Advances in Bromine Speciation in Volcanic Plumes. *Front. Earth Sci.* 6:213. doi: 10.3389/feart.2018.00213, 2018.

Hadji-Lazaro J. : Utilisation des réseaux de neurones pour l'inversion d'observations spatiales et la détermination des concentrations de constituants minoritaires dans la troposphère, 1 vol., 245 p., Thèse de doctorat Océanologie, météorologie et environnement Paris 6 1999, 1999PA066609, <http://www.theses.fr/1999PA066609>, 1999.

Hadji-Lazaro J., Clerbaux C., Thiria S.: An inversion algorithm using neural networks to retrieve atmospheric CO total columns from high-resolution nadir radiances, *J. Geophys. Res.*, 104(D19), 23841– 23854, doi:10.1029/1999JD900431, 1999.

Hao N., Koukouli M. E., Inness A., Valks P., Loyola D. G., Zimmer W., Balis D. S., Zyrichidou I., Van Roozendaal M., Lerot C., and Spurr R. J. D.: GOME-2 total ozone columns from MetOp-A/MetOp-B and assimilation in the MACC system, *Atmos. Meas. Tech.*, 7, 2937–2951, <https://doi.org/10.5194/amt-7-2937-2014>, 2014.

Harrison J. J., Chipperfield M. P., Dudhia A., Cai S., Dhomse S., Boone C. D., and Bernath, P. F.: Satellite observations of stratospheric carbonyl fluoride, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 11915–11933, <https://doi.org/10.5194/acp-14-11915-2014>, 2014.

Hart M. A., Cooper N., Green D., Lipson M.: Urban Climate Science for Planning Healthy Cities, The Synergistic Impacts of Urban Air Pollution Compounding Our Climate Emergency, 978-3-03-087597-8, 978-3-03-087598-5, 10.1007/978-3-030-87598-5_16, 2022.

Heikes B. G., et al.: Atmospheric methanol budget and ocean implication, *Global Biogeochem. Cycles*, 16 (4), 1133, doi:10.1029/2002GB001895, 2002.

Herzberg G.: *Molecular spectra and molecular structure*. (2nd ed.). New York: Prentice-Hall, 1950.

Hirtl M., Arnold D., Baro R., Brenot H., Coltelli M., Eschbacher K., Hard-Stremayer H., Lipok F., Maurer C., Meinhard D., Mona L., Mulder M. D., Papagiannopoulos N., Pernsteiner M., Plu M., Robertson L., Rokitansky C.-H., Scherllin-Pirscher B., Sievers K., Sofiev M., Som de Cerff W., Steinheimer M., Stuefer M., Theys N., Uppstu A., Wagenaar S., Winkler R., Wotawa G., Zobl F., and Zopp R.: A volcanic-hazard demonstration exercise to assess and mitigate the impacts of volcanic ash clouds on civil and military aviation, *Nat. Hazards Earth Syst. Sci.*, 20, 1719–1739, <https://doi.org/10.5194/nhess-20-1719-2020>, 2020.

Hodnebrog Ø., Myhre G., Samset B. H., Alterskjær K., Andrews T., Boucher O., Faluvegi G., Fläschner D., Forster P. M., Kasoar M., Kirkevåg A., Lamarque J.-F., Olivie D., Richardson T. B., Shawki D., Shindell D., Shine K. P., Stier P., Takemura T., Voulgarakis A., Watson-Parris D.: Water vapour adjustments and responses differ between climate drivers, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 12887–12899, <https://doi.org/10.5194/acp-19-12887-2019>, 2019.

Hoffmann L., Hoppe C., Müller R., Dutton G., Gille J., Griessbach S., Jones A., Meyer C., Spang R., Volk C., Walker K.: Stratospheric lifetime ratio of CFC-11 and CFC-12 from satellite and model climatologies. *Atmospheric Chemistry and Physics*. 14. 10.5194/acp-14-12479-2014, 2014.

Hollas M. J.: *Modern spectroscopy*. (3rd ed.). Chichester: John Wiley & Sons, 1996.

Hollas M. J.: *Basic atomic and molecular spectroscopy*. Cambridge: The Royal Society of Chemistry, 2002.

Holzinger R., Warneke C., Hansel A., Jordan A., Lindinger W.: Biomass burning as a source of formaldehyde, acetaldehyde, methanol, acetone, acetonitrile, and hydrogen cyanide, *Geophys. Res. Lett.*, 26(8), 1161–1164, 1999.

Huang H.-L. , Smith W., Woolf H.: Vertical resolution and accuracy of atmospheric infrared sounding spectrometers, *J. Appl. Meteorol.*, 31, 265–274, 1992.

Hultberg T., August T., Lenti F.: Local or global? How to choose the training set for principal component compression of hyperspectral satellite measurements: a hybrid approach, *Proc. SPIE 10423, Sensors, Systems, and Next-Generation Satellites XXI*, 104231G (29 September 2017), <https://doi.org/10.1117/12.2278349>, 2017.

Hulley G. C., and Hook S. J.: A radiance-based method for estimating uncertainties in the Atmospheric Infrared Sounder (AIRS) land surface temperature product, *J. Geophys. Res.*, 117, D20117, doi:10.1029/2012JD018102, 2012.

Hurtmans D., Coheur P.-F., Wespes C., Clarisse L., Scharf O., Clerbaux C., Hadji-Lazaro J., George M., Turquety S.: FORLI radiative transfer and retrieval code for IASI, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, Volume 113, Issue 11, 2012, Pages 1391-1408, ISSN 0022-4073, <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2012.02.036>, 2012.

Ichoku C., Kahn R., Chin M.: Satellite contributions to the quantitative characterization of biomass burning for climate modeling, *Atmospheric Research*, Volume 111, 2012, Pages 1-28, ISSN 0169-8095, <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2012.03.007>, 2012.

INERIS- Complément au guide sur la surveillance dans l'air autour des installations classées- DRC-16- 158882- 10272A, 2016.

Jacob D. J., Field B. D., Li Q., Blake D. R., de Gouw J., Warneke C., Hansel A., Wisthaler A., Singh H. B., and Guenther A.: Global budget of methanol: constraints from atmospheric observations, *J. Geophys. Res.*, 110, D08303, doi:10.1029/2004JD005172, 2005.

Jacquinet-Husson N., Armante R., Scott N.A., Chédin A., Crépeau L, et al.: The 2015 edition of the GEISA spectroscopic database. *Journal of Molecular Spectroscopy*, Elsevier, 2016, 327, pp.31-72, 10.1016/j.jms.2016.06.007. hal-01535662, 2016.

Jethva H., Torres O., Field R.D. et al.: Connecting Crop Productivity, Residue Fires, and Air Quality over Northern India. *Sci Rep* 9, 16594 (2019). <https://doi.org/10.1038/s41598-019-52799-x>, 2019.

Jiang X., Tsona N.T., Jia L., Liu S., Zhang H., Xu Y., Du L. : Secondary organic aerosol formation from photooxidation of furan: effects of NO_x and humidity. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019.

Kablick G. P., Allen D. R., Fromm M. D., Nedoluha G. E.: Australian pyroCb smoke generates synoptic-scale stratospheric anticyclones. *Geophysical Research Letters*, 47, e2020GL088101. <https://doi.org/10.1029/2020GL088101>, 2020.

Kar J., et al.: Evidence of vertical transport of carbon monoxide from Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT), *Geophys. Res. Lett.*, 31, L23105, doi:10.1029/2004GL021128, 2004.

Karagulian F., Clarisse L., Clerbaux C., Prata A.J., Hurtmans D., Coheur P.-F.: Detection of volcanic SO₂, ash, and H₂SO₄ using the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI). *J. Geophys. Res.*, 115, D00L02, doi: 10.1029/2009JD012786, 2010.

Kearney C. S., Dean K., Realmuto V. J., Watson I. M., Dehn J., Prata F.: Observations of SO₂ production and transport from Bezymianny volcano, Kamchatka using the MODerate resolution Infrared Spectroradiometer (MODIS), *International Journal of Remote Sensing*, 29, 22, 6647-6665, 2008, Taylor & Francis, doi = 10.1080/01431160802168392, 2008.

Kern, C., Masias, P., Apaza, F., Reath, K. A., and Platt, U. : Remote measurement of high preeruptive water vapor emissions at Sabancaya volcano by passive differential optical absorption spectroscopy, *J. Geophys. Res. Solid Earth*, 122, 3540– 3564, doi:10.1002/2017JB014020, 2017.

Khan M. A. H., Lyons K., Chhantyal-Pun R., McGillen M. R., Caravan R. L., Taatjes C. A. et al. : Investigating the tropospheric chemistry of acetic acid using the global 3-D chemistry transport model, STOCHEM-CRI. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 123, 6267– 6281. <https://doi.org/10.1029/2018JD028529>, 2018.

Kielhorn J., Pohlenz-Michel, C., Schmidt S., Mangelsdorf I.: Glyoxal, 924153057X, 2004.

Kobayashi H., Shimota A., Yoshigahara C., Yoshida I., Uehara Y. and Kondo K.: Satellite-borne high-resolution FTIR for lower atmosphere sounding and its evaluation, in *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, vol. 37, no. 3, pp. 1496-1507, May 1999, doi: 10.1109/36.763262, 1999.

Kovács T., Feng W., Totterdill A., Plane J. M. C., Dhomse S., Gómez-Martín J. C., Stiller G. P., Haenel F. J., Smith C., Forster P. M., García R. R., Marsh D. R., and Chipperfield, M. P.: Determination of the atmospheric lifetime and global warming potential of sulfur hexafluoride using a three-dimensional model, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 883–898, <https://doi.org/10.5194/acp-17-883-2017>, 2017.

Krotkov N. A., McLinden C. A., Li C., Lamsal L. N., Celarier E. A., Marchenko S. V., Swartz W. H. Bucsela E. J., Joiner J., Duncan B. N., Boersma K. F., Veefkind J. P., Levelt P. F., Fioletov V. E., Dickerson R. R., He H., Lu Z., and Streets D. G.: Aura OMI observations of regional SO₂ and NO₂ pollution changes from 2005 to 2015, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 4605–4629, <https://doi.org/10.5194/acp-16-4605-2016>, 2016.

Kutterolf S., Hansteen T.H., Appel K., Freundt A., Krüger K., Pérez W., Wehrmann H.: Combined bromine and chlorine release from large explosive volcanic eruptions: A threat to stratospheric ozone?, *Geology* 2013; 41 (6): 707–710. doi: <https://doi.org/10.1130/G34044.1>, 2013.

Lacis A. A., Schmidt G. A., Rind D., Ruedy R. A.: Atmospheric CO₂: Principal Control Knob Governing Earth's Temperature, *Science*, 330, 6002, p.356-359, 2010, doi:10.1126/science.1190653, 2010.

Lahoz W. A., Peuch V., Orphal J., Attié J., Chance K., Liu X., Edwards D., Elbern H., Flaud J., Claeys M., and Amraoui L. E.: Monitoring Air Quality from Space: The Case for the Geostationary Platform. *Bulletin of the American Meteorological Society* 93, 2, 221-233, <https://doi.org/10.1175/BAMS-D-11-00045.1>, 2012.

Lahuis F., Dishoeck, E.: ISO-SWS spectroscopy of gas-phase C₂H₂ and HCN toward massive young stellar objects, *Astronomy and Astrophysics*, 355. 699-712, 2000.

Le Guen M. : La boîte à moustaches de TUKEY, un outil pour initier à la Statistique. *Statistiquement Votre- SFDS*, 2001, pp.1-3. halshs-00287697, 2001.

Leblanc F.: Modélisation et mesure des exosphères de quelques objets du système solaire. Astrophysique [astro-ph]. Université de Versailles-Saint Quentin en Yvelines, 2009. tel-00446915, 2009.

Lecina-Diaz J., Alvarez A., Retana J.: Extreme Fire Severity Patterns in Topographic, Convective and Wind-Driven Historical Wildfires of Mediterranean Pine Forests. PLoS ONE 9(1): e85127. <https://doi.org/10.1371/journal.pone.0085127>, 2014.

Lee C., Randall M., Donkelaar A., Lee H., Dickerson R., Hains J., Krotkov N., Richter A., Vinnikov K., Schwab J.: SO₂ emissions and lifetimes: Estimates from inverse modeling using in situ and global, space-based (SCIAMACHY and OMI) observations. Journal of Geophysical Research. 116. 1-13. 10.1029/2010JD014758, 2011.

Lee C. J., Randal M.V., Daven H.K., Brauer M., Cohen A., Van Donkelaar A.: Response of Global Particulate-Matter-Related Mortality to Changes in Local Precursor Emissions, Environmental Science & Technology, 49, 7, 4335-4344, 10.1021/acs.est.5b00873, 2015.

Leonelli L.: Caractérisation des fumées issues de feux de végétation contrôlés : termes sources, phases d'émissions et impact sur les opérationnels. Sciences de la Terre. Université Pascal Paoli, 2018. Français, NNT : 2018CORT0003. tel-03448827, 2018.

Li C., Cohen R. C.: Space-borne estimation of volcanic sulfate aerosol lifetime. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 126, e2020JD033883. <https://doi.org/10.1029/2020JD033883>, 2021.

Li Q., Jacob D. J., Bey I., Yantosca R. M., Zhao Y., Kondo Y., Notholt J.: Atmospheric hydrogen cyanide (HCN): Biomass burning source, ocean sink?, Geophys. Res. Lett., 27, 357–360, 2000.

Li Q., Jacob D. J., Yantosca R. M., Heald C. L., Singh H. B., Koike M., Streets D. G.: A global three-dimensional model analysis of the atmospheric budgets of HCN and CH₃CN: Constraints from aircraft and ground measurements. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 108 (D21), 2003.

Li Q., Palmer P. I., Pumphrey H. C., Bernath P., Mahieu E.: What drives the observed variability of HCN in the troposphere and lower stratosphere?, Atmos. Chem. Phys., 9, 8531–8543, <https://doi.org/10.5194/acp-9-8531-2009>, 2009.

Robert J. M., Scharffe D. H., Hao W. M., Crutzen P. J.: Importance of biomass burning in the atmospheric budgets of nitrogen-containing gases, Nature, 346, 552–554, 1990.

Logan J. A., Prather M. J., Wofsy S. C., and McElroy M. B.: Tropospheric, chemistry: A global perspective, J. Geophys. Res., 86, 7210–7254, 1981.

Lorentz H.A.: The absorption and emission lines of gaseous bodies Proceedings Koninklijke Akademie van Wetenschappen 8: 591-611, 1906.

Ma P.F., Chen L.F., Tao J.H., Su L., Tao M.H., Wang Z.F., Zou M.M., Zhang Y.: Simulation of Atmospheric Temperature and Moisture Profiles Retrieval from CrIS Observations. *Spectrosc. Spectr. Anal.* 2014, 34, 1894–1897, 2014.

Mahieu E., Duchatelet P., Demoulin P., Walker K. A., Dupuy E., Froidevaux L., Randall C., Catoire V., Strong K., Boone C. D., Bernath P. F., Blavier J.-F., Blumenstock T., Coffey M., De Mazière M., Griffith D., Hannigan J., Hase F., Jones N., Jucks K. W., Kagawa A., Kasai Y., Mebarki Y., Mikuteit S., Nassar R., Notholt J., Rinsland C. P., Robert C., Schrems O., Senten C., Smale D., Taylor J., Tétard C., Toon G. C., Warneke T., Wood S. W., Zander R., and Servais C.: Validation of ACE-FTS v2.2 measurements of HCl, HF, CCl₃F and CCl₂F₂ using space-, balloon- and ground-based instrument observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 6199–6221, <https://doi.org/10.5194/acp-8-6199-2008>, 2008.

Maiss M., Brenninkmeijer C. A. M.: Atmospheric SF₆: Trends, Sources, and Prospects, *Environmental Science & Technology* 1998 32 (20), 3077-3086, doi: 10.1021/es9802807, 1998.

Martin R.S., Wheeler, J.C., Ilyinskaya, E., Braban C.F., Oppenheimer C.: The uptake of halogen (HF, HCl, HBr and HI) and nitric (HNO₃) acids into acidic sulphate particles in quiescent volcanic plumes. *Chemical Geology*, 296-297. 19-25. <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2011.12.013>, 2012.

Mather T. A., Pyle D. M., Oppenheimer C. : Tropospheric volcanic aerosol. *Geophysical Monograph-American Geophysical Union*, 139, 189-212, 2003.

Mather T.A., Allen A.G., Davison B., Pyle D., Oppenheimer C., McGonigle A.J.S.: Nitric acid from volcanoes. *Earth and Planetary Science Letters*. 218. 17-30. 10.1016/S0012-821X(03)00640-X, 2004.

Matricardi M., A principal component based version of the RTTOV fast radiative transfer model. *Q.J.R. Meteorol. Soc.*, 136: 1823-1835. <https://doi.org/10.1002/qj.680>, 2010.

Matricardi M. and McNally A.P: The direct assimilation of principal components of IASI spectra in the ECMWF 4D-Var. *Q.J.R. Meteorol. Soc.*, 140: 573-582. <https://doi.org/10.1002/qj.2156>, 2014.

Mayerhöfer T.G., Popp J.: Quantitative Evaluation of Infrared Absorbance Spectra – Lorentz Profile versus Lorentz Oscillator, *Chem Phys Chem*, 20, 1, 31-36, absorbance, band deconvolution, band fitting, dispersion analysis, IR spectroscopy, <https://doi.org/10.1002/cphc.201800961>, 2019.

McCulloch A., Midgley P.M., Lindley A.A.: Recent changes in the production and global atmospheric emissions of chlorodifluoromethane (HCFC-22), *Atmospheric Environment*, Volume 40, Issue 5, 2006, Pages 936-942, ISSN 1352-2310, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.10.015>, 2006.

McGee K. A., Doukas M. P., Gerlach T. M.: Quiescent hydrogen sulfide and carbon dioxide degassing from Mount Baker, Washington, *Geophysical Research Letters*, *Geophys. Res. Lett.*, 28, 23, 0094-8276, <https://doi.org/10.1029/2001GL013250>, 2001.

McMillan W. W., Barnet C., Strow L., Chahine M. T., McCourt M. L., Warner J. X., Novelli P. C., Korontzi S., Maddy E. S., and Datta S.: Daily global maps of carbon monoxide from NASA's Atmospheric Infrared Sounder, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L11801, doi:10.1029/2004GL021821, 2005.

Miles G. M., Siddans R., Kerridge B. J., Latter B. G., Richards N. A. D.: Tropospheric ozone and ozone profiles retrieved from GOME-2 and their validation, *Atmos. Meas. Tech.*, 8, 385–398, <https://doi.org/10.5194/amt-8-385-2015>, 2015.

Millard G. A., Mather T. A., Pyle D. M., Rose W. I., Thornton B.: Halogen emissions from a small volcanic eruption: Modeling the peak concentrations, dispersion, and volcanically induced ozone loss in the stratosphere. *Geophys. Res. Lett.*, 33, Article number L19815, doi:10.1029/2006GL026959, 2006.

Montzka S. A., Myers R. C., Butler J. H., Elkins, J. W., Cummings S. O.: Global tropospheric distribution and calibration scale of HCFC-22, *Geophysical Research Letters*, 20, 8, 703-706, <https://doi.org/10.1029/93GL00753>, 1993.

Moussallam Y., Tamburello G., Peters N., Apaza F., Schipper C. I., Curtis A., Aiuppa A., Masias P., Boichu M., Bauduin S., Barnie T., Bani Philipson, Giudice G., Moussallam M.: Volcanic gas emissions and degassing dynamics at Ubinas and Sabancaya volcanoes: implications for the volatile budget of the central volcanic zone. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 343, p. 181-191. ISSN 0377-0273, 2017.

Murphy D.: EUMETSAT Geostationary Meteorological Satellite Programs. In: Pelton J.N., Madry S., Camacho-Lara S. (eds) *Handbook of Satellite Applications*. Springer, New York, NY. https://doi.org/10.1007/978-1-4419-7671-0_55, 2013.

Nair A. A., Yu F. Quantification of Atmospheric Ammonia Concentrations: A Review of Its Measurement and Modeling. *Atmosphere*. 2020; 11(10):1092. <https://doi.org/10.3390/atmos11101092>, 2020.

Newhall C. G., and Self S.: The volcanic explosivity index (VEI) an estimate of explosive magnitude for historical volcanism, *J. Geophys. Res.*, 87 (C2), 1231– 1238, doi:10.1029/JC087iC02p01231, 1982.

Newland M. J., Ren Y., McGillen M. R., Michelat L., Daële V., Mellouki A.: NO₃ chemistry of wildfire emissions: a kinetic study of the gas-phase reactions of furans with the NO₃ radical, *Atmos. Chem. Phys.*, 22, 1761–1772, <https://doi.org/10.5194/acp-22-1761-2022>, 2022.

Noël S., Mieruch S., Bovensmann H., Burrows J. P.: Preliminary results of GOME-2 water vapour retrievals and first applications in polar regions. *Atmospheric Chemistry and Physics*, European Geosciences Union, 2008, 8 (6), pp.1519-1529. hal-00296487, 2008.

Omaye S.T.: Metabolic modulation of carbon monoxide toxicity, *Toxicology*, Volume 180, Issue 2, 2002, Pages 139-150, ISSN 0300-483X, [https://doi.org/10.1016/S0300-483X\(02\)00387-6](https://doi.org/10.1016/S0300-483X(02)00387-6), 2002.

Oppenheimer C., Tsanev V.I., Braban C.F., Cox R.A., Adams J.W., Aiuppa A., Bobrowski N., Delmelle P., Barclay J., McGonigle A.J.S.: BrO formation in volcanic plumes, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, Volume 70, Issue 12, 2006, Pages 2935-2941, ISSN 0016-7037, <https://doi.org/10.1016/j.gca.2006.04.001>, 2006.

Oppenheimer C., et al.: Atmospheric chemistry of an Antarctic volcanic plume, *J. Geophys. Res.*, 115, D04303, doi:10.1029/2009JD011910, 2010.

Oppenheimer C., Scaillet B., Martin R.S.: Sulfur Degassing From Volcanoes: Source Conditions, Surveillance, Plume Chemistry and Earth System Impacts. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, Mineralogical Society, 2011, 73, pp.363-421. 10.2138/rmg.2011.73.13, insu-00614926, 2011.

Pankoke B., Yamada K.M., Winnewisser G.F.: High Resolution IR-Spectra of Furane and Thiophene. *Zeitschrift für Naturforschung A*, 48, 1193 – 1202, 1993.

Pardini F., Burton M., Arzilli F., La Spina G., Polacci M.: SO₂ emissions, plume heights and magmatic processes inferred from satellite data: The 2015 Calbuco eruptions, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, Volume 361, 2018, Pages 12-24, ISSN 0377-0273, <https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2018.08.001>, 2018.

Parmesan C., Morecroft M.D, Trisurat Y., Adrian R., Anshari G.Z., Arneth A., Gao Q., Gonzalez P., Harris R., Price J., Stevens N., and Talukdarr G.H.: Terrestrial and Freshwater Ecosystems and Their Services. In: *Climate Change 2022: Impacts, Adaptation and Vulnerability. Contribution of Working Group II to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* Portner H.-O., Roberts D.C., Tignor M., Poloczanska E.S., Mintenbeck K., Alegria A., Craig M., Langsdorf S., Loschke S., Moller V., Okem A., Rama B. (eds.)). Cambridge University Press, Cambridge, UK and New York, NY, USA, pp. 197–377, doi:10.1017/9781009325844.004, 2022.

Paulot F., Wunch D., Crouse J. D., Toon G. C., Millet D. B., DeCarlo P. F., Vigouroux C., Deutscher N. M., González Abad G., Notholt J., Warneke T., Hannigan J. W., Warneke C., de Gouw J. A., Dunlea E. J., De Mazière M., Griffith D. W. T., Bernath P., Jimenez J. L., and Wennberg P. O.: Importance of secondary sources in the atmospheric budgets of formic and acetic acids, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 1989–2013, <https://doi.org/10.5194/acp-11-1989-2011>, 2011.

Payne V. H., Kulawik S. S., Fischer E. V., Brewer J. F., Huey L. G., Miyazaki K., Worden J. R., Bowman K. W., Hintsa E. J., Moore F., Elkins J. W., Juncosa Calahorrano J.: Satellite measurements of peroxyacetyl nitrate from the Cross-Track Infrared Sounder: comparison with ATom aircraft measurements, *Atmos. Meas. Tech.*, 15, 3497–3511, <https://doi.org/10.5194/amt-15-3497-2022>, 2022.

Perrin A., Vander Auwera J., and Zelinger Z.: High-resolution Fourier transform study of the ν_3 fundamental band of transformic acid, *J. Quant. Spectrosc. Ra.*, 110, 743–755, 2009.

Perrin A., Flaud J., Ridolfi M., Carlotti M.: The ν_3 and ν_4 Bands of Nitric Acid (HNO₃) at 7.6 μm for Atmospheric Studies, 2012.

Pfister G., Emmons L., Hess P., Lamarque, J.-F., Orlando J., Walters S., Guenther A., Palmer P., Lawrence P.: Contribution of isoprene to chemical budgets: a model tracer study with the NCAR CTM MOZART-4. *Journal of Geophysical Research*. 113. 10.1029/2007JD008948, 2008.

Pommier M., Clerbaux C., Coheur P.-F., Mahieu E., Müller J.-F., Paton-Walsh C., Stavrakou T., and Vigouroux C. : HCOOH distributions from IASI for 2008–2014: comparison with ground-based FTIR measurements and a global chemistry-transport model, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 8963-8981, doi:10.5194/acp-16-8963-2016, 2016.

Pommier M., Clerbaux C., Coheur P.-F.: Determination of enhancement ratios of HCOOH relative to CO in biomass burning plumes by the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI), *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 11089–11105, <https://doi.org/10.5194/acp-17-11089-2017>, 2017.

Prata A. J., Bernardo C.: Retrieval of volcanic SO₂ column abundance from Atmospheric Infrared Sounder data, *J. Geophys. Res.*, 112, D20204, doi:10.1029/2006JD007955, 2007.

Prata F., Grant I.: Determination of mass loadings and plume heights of volcanic clouds from satellite data, 2001.

Prata F., Kerkmann J.: Simultaneous retrieval of volcanic ash and SO₂ using MSG-SEVIRI measurements. *Geophysical Research Letters*. 34. 5813-. 10.1029/2006GL028691, 2007.

Prather M.J., Hsu J., DeLuca N.M., Jackman C.H., Oman L.D., Douglass A.R., Fleming E.L., Strahan S.E., Steenrod S.D., Søvde O.A., Isaksen I.S., Froidevaux L., Funke B. : Measuring and modeling the lifetime of nitrous oxide including its variability. *J Geophys Res Atmos*. 2015 Jun 16;120(11):5693-5705. doi: 10.1002/2015JD023267, 2015.

Razavi A., Karagulian F., Clarisse L., Hurtmans D., Coheur P.-F., Clerbaux C., Müller J.-F., Stavrakou T.: First global distributions of methanol and formic acid retrieved from the IASI/MetOp thermal infrared sounder. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*. 10. 10.5194/acpd-10-21475-2010, 2010.

Razavi A., Karagulian F., Clarisse L., Hurtmans D., Coheur P.-F., et al.: Global distributions of methanol and formic acid retrieved for the first time from the IASI/MetOp thermal infrared sounder. *Atmospheric Chemistry and Physics, European Geosciences Union*, pp.857-872. 10.5194/acp-11-857-2011. hal-00516518, 2011.

Reath K., Pritchard M., Poland M., Delgado F., Carn S., Coppola D., et al. : Thermal, deformation, and degassing remote sensing time series (CE 2000–2017) at the 47 most active volcanoes in Latin America: Implications for volcanic systems. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 124, 195–218. <https://doi.org/10.1029/2018JB016199>, 2019.

Rezaie F.K.: *Infrared Emission Spectroscopy Of Hot Carbon Monoxide*, 2011.

R'Honi Y., Clarisse L., Clerbaux C., Hurtmans D., Duflot V., Turquety S., Ngadi, Y., Coheur P.-F.: Exceptional emissions of NH₃ and HCOOH in the 2010 Russian wildfires, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 2013, 8, 4171--4181, 10.5194/acp-13-4171-2013, 2013.

Richardson D., Black A.S., Irving, D. et al. : Global increase in wildfire potential from compound fire weather and drought. *npj Clim Atmos Sci* **5**, 23, <https://doi.org/10.1038/s41612-022-00248-4>, 2022.

Richter A.: Nitrogen oxides in the troposphere – What have we learned from satellite measurements? *EPJ Web of Conferences* 1 149-156 (2009), DOI: 10.1140/epjconf/e2009-00916-9, 2009.

Rinsland C. P., Goldman A., Murcray F. J., Blatherwick R. D., Kusters J. J., Murcray D. G., Sze N. D., and Massie S. T. : Long-term trends in the concentrations of SF₆, CHClF₂, and COF₂ in the lower stratosphere from analysis of high-resolution infrared solar occultation spectra, *J. Geophys. Res.*, 95(D10), 16477– 16490, doi:10.1029/JD095iD10p16477, 1990.

Rinsland C. P., Mahieu E., Zander R., Goldman A., Wood S., and Chiou L.: Free tropospheric measurements of formic acid (HCOOH) from infrared ground-based solar absorption spectra: Retrieval approach, evidence for a seasonal cycle, and comparison with model calculations, *J. Geophys. Res.*, 109, D18308, doi:10.1029/2004JD004917, 2004.

Roberts T.J., Braban C.F., Martin R.S., Oppenheimer C., Adams J.W., Cox R.A., Jones R.L., Griffiths P.T.: Modelling reactive halogen formation and ozone depletion in volcanic plumes, *Chemical Geology*, Volume 263, Issues 1–4, 2009, Pages 151-163, ISSN 0009-2541, <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2008.11.012>, 2009.

Rodgers C.D.: *Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice*, World Scientific, Series on Atmospheric, Oceanic and Planetary Physics, 2, Hackensack, N.J., 2000.

Ronsmans G., Langerock B., Wespes C., Hannigan J. W., Hase F., Kerzenmacher T., Mahieu E., Schneider M., Smale D., Hurtmans D., De Mazière M., Clerbaux C., and Coheur P.-F.: First characterization and validation of FORLI-HNO₃ vertical profiles retrieved from IASI/Metop, *Atmos. Meas. Tech.*, 9, 4783–4801, <https://doi.org/10.5194/amt-9-4783-2016>, 2016.

Rose W.I., Millard G.A., Mather T.A., Hunton D.E. Anderson B., Oppenheimer C., Thornton B.F., Gerlach T.M., Viggiano A.A., Kondo Y., Miller T.M., Ballenthin J.O.: Atmospheric chemistry of a 33–34 hour old volcanic cloud from Hekla Volcano (Iceland): Insights from direct sampling and the application of chemical box modeling. *J. Geophys. Res.* 111, article number D20206, doi:10.1029/2005JD006872, 2006.

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., Vander Auwera J.: The HITRAN 2008 molecular spectroscopic database, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, Volume 110, Issues 9–10, 2009, Pages 533-572, ISSN 0022-4073, <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2009.02.013>, 2009.

Rothman L. S., Gordon I. E., Babikov Y. et al.: The HITRAN 2012 Molecular Spectroscopic Database, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 130, 4-50, 2013.

Sagan V., Pasken R., Zarauz J., Krotkov N.: SO₂ trajectories in a complex terrain environment using CALPUFF dispersion model, OMI and MODIS data, *International Journal of Applied Earth Observation and Geoinformation*, Volume 69, 2018, Pages 99-109, ISSN 1569-8432, <https://doi.org/10.1016/j.jag.2018.03.003>, 2018.

Santos F., Longo K., Guenther A., Kim S., Gu D., Oram D., Forster G., Lee J., Hopkins J., Brito J., Freitas S.: Biomass burning emission disturbances of isoprene oxidation in a tropical forest, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 12715–12734, <https://doi.org/10.5194/acp-18-12715-2018>, 2018.

Saunders R. W., Blackmore T. A., Candy B., Francis P. N., and Hewison T. J.: Ten Years of Satellite Infrared Radiance Monitoring With the Met Office NWP Model, *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 59, 4561–4569, <https://doi.org/10.1109/tgrs.2020.3015257>, 2021.

Seifert R., Delling N., Richnow H.H. et al.: Ethylene and methane in the upper water column of the subtropical Atlantic. *Biogeochemistry* 44, 73–91 (1999). <https://doi.org/10.1023/A:1006090917059>, 1999.

Schlatter T. W.: Atmospheric Composition. *Green Aviation*, 447, 2016.

Schmauss, Deborah & Keppler, Hans. : Adsorption of sulfur dioxide on volcanic ashes. *American Mineralogist*. 99. 1085-1094. 10.2138/am.2014.4656, 2014.

Schmidt A., Carslaw K. S., Mann G. W., Rap A., Pringle K. J., Spracklen D. V., Wilson M., and Forster, P. M.: Importance of tropospheric volcanic aerosol for indirect radiative forcing of climate, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 7321–7339, <https://doi.org/10.5194/acp-12-7321-2012>, 2012.

Sellitto P., Legras B.: Sensitivity of thermal infrared nadir instruments to the chemical and microphysical properties of UTLS secondary sulfate aerosols. *Atmospheric Measurement Techniques*, European Geosciences Union, 2016, 9 (1), pp.115-132, 10.5194/amt-9-115-2016, hal-01323729, 2016.

Seneviratne S.I., Nicholls N., Easterling D., Goodess C.M, Kanae S., Kossin J., Luo Y., Marengo J., McInnes K., Rahimi M., Reichstein M., Sorteberg A., Vera C., and Zhang X.: Changes in climate extremes and their impacts on the natural physical environment. In: *Managing the Risks of Extreme Events and Disasters to Advance Climate Change Adaptation* [Field, C.B., V. Barros, T.F. Stocker, D. Qin, D.J. Dokken, K.L. Ebi, M.D. Mastrandrea, K.J. Mach, G.-K. Plattner, S.K. Allen, M. Tignor, and P.M. Midgley (eds.)]. A Special Report of Working Groups I and II of the Intergovernmental Panel on

Climate Change (IPCC). Cambridge University Press, Cambridge, UK, and New York, NY, USA, pp. 109-230, 2012.

Sennert S.K. (ed.): Global Volcanism Program, 2015. Report on Calbuco (Chile), Weekly Volcanic Activity Report, 19 August-25 August 2015. Smithsonian Institution and US Geological Survey, 2015.

Sennert S K (ed.): Global Volcanism Program, 2015. Report on Wolf (Ecuador), Weekly Volcanic Activity Report, 20 May-26 May 2015, In: Smithsonian Institution and US Geological Survey, 2015b.

Sennert S.K. (ed.): Global Volcanism Program, 2019. Report on Raikoke (Russia). Weekly Volcanic Activity Report, 19 June-25 June 2019. Smithsonian Institution and US Geological Survey, 2019.

Sennert S.K. (ed.): Global Volcanism Program, 2019. Report on Ubinas (Peru). Weekly Volcanic Activity Report, 17 July-23 July 2019. Smithsonian Institution and US Geological Survey, 2019b.

Shephard M., Dammers E., Cady-Pereira K., Kharol S., Thompson J., Gainariu-Matz Y., Zhang J., Mclinden C., Kovachik A., Moran M., Bittman S., Sioris C., Griffin D., Alvarado M., Lonsdale C., Savic-Jovicic V., Zheng Q.: Ammonia measurements from space with the Cross-track Infrared Sounder (CrIS): characteristics and applications. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*. 1-38. 10.5194/acp-2019-705. 2019.

Sicard P., De Marco A., Agathokleous E., Feng Z., Xu X., Paoletti E., Rodriguez J.J.D., Calatayud V.: Amplified ozone pollution in cities during the COVID-19 lockdown. *Sci. Total Environ.* 735, 139542, <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.139542>, 2020.

Siméoni D., Singer C., Chalon G., Infrared atmospheric sounding interferometer, *Acta Astronautica*, Volume 40, Issues 2–8, 1997, Pages 113-118, ISSN 0094-5765, [https://doi.org/10.1016/S0094-5765\(97\)00098-2](https://doi.org/10.1016/S0094-5765(97)00098-2). 1997.

Simkhovich B. Z., Kleinman M. T., Kloner R. A.: Particulate air pollution and coronary heart disease. *Current Opinion in Cardiology: November 2009 - Volume 24 - Issue 6 - p 604-609* doi: 10.1097/HCO.0b013e32833161e5, 2009.

Singh, A., Agrawal M.: Acid rain and its ecological consequences. *Journal of Environmental Biology*, 29(1), 15, 2007.

Slade J. H., Knopf D. A.: Multiphase OH oxidation kinetics of organic aerosol: The role of particle phase state and relative humidity, *Geophys. Res. Lett.*, 41, 5297– 5306, doi:10.1002/2014GL060582, 2014.

Solomon S.: Stratospheric ozone depletion: A review of concepts and history, *Rev. Geophys.*, 37(3), 275– 316, doi:10.1029/1999RG900008, 1999.

Sörgel M., Trebs I., Serafimovich A., Moravek A., Held A., Zetzsch C.: Simultaneous HONO measurements in and above a forest canopy: influence of turbulent exchange on mixing ratio differences. *Atmospheric Chemistry and Physics*. 11. 10.5194/acp-11-841-2011, 2011.

Sowden M., Blake D. : Using infrared geostationary remote sensing to determine particulate matter ground-level composition and concentration. *Air Qual Atmos Health* (2021). <https://doi.org/10.1007/s11869-021-01061-3>, 2021.

Stephenson D.B., Casati B., Ferro C.A.T. and Wilson C.A.: The extreme dependency score: a non-vanishing measure for forecasts of rare events. *Met. Apps*, 15: 41-50. <https://doi.org/10.1002/met.53>, 2008.

Stinecipher J. R., Cameron-Smith P. J., Blake N. J., Kuai L., Lejeune B., Mahieu E., et al.: Biomass burning unlikely to account for missing source of carbonyl sulfide. *Geophysical Research Letters*, 46, 14912– 14920. <https://doi.org/10.1029/2019GL085567>, 2019.

Tamburello G., Aiuppa A., McGonigle A. J. S., Allard P., Cannata A., Giudice G., Kantzas E. P., and Pering T. D.: Periodic volcanic degassing behavior: The Mount Etna example, *Geophys. Res. Lett.*, 40, 4818– 4822, doi:10.1002/grl.50924, 2013.

Theys N., De Smedt I., Van Roozendaal M., Froidevaux L., Clarisse L., and Hendrick, F.: First satellite detection of volcanic OCIO after the eruption of Puyehue-Cordón Caulle, *Geophys. Res. Lett.*, 41, 667– 672, doi:10.1002/2013GL058416, 2014.

Theys N., Volkamer R., Müller J.-F., Zarzana K., Kille N., Clarisse L., De Smedt I., Lerot C., Finkenzeller H., Hendrick F., Koenig T., Lee C., Knote C., Yu H., Van Roozendaal M.: Global nitrous acid emissions and levels of regional oxidants enhanced by wildfires. *Nature Geoscience*. 13. 1-6. [10.1038/s41561-020-0637-7](https://doi.org/10.1038/s41561-020-0637-7), 2020.

Tilmes S., Mills M. : Stratospheric Sulfate Aerosols and Planetary Albedo. In: Freedman, B. (eds) *Global Environmental Change. Handbook of Global Environmental Pollution*, vol 1. Springer, Dordrecht. https://doi.org/10.1007/978-94-007-5784-4_11, 2014.

Toohey M., Jia Y., Tegetmeier S.: Stratospheric residence time and the lifetime of volcanic aerosol, doi:10.5194/egusphere-egu21-12131, 2021.

Trentmann J., Yokelson R. J., Hobbs P. V., Winterrath T., Christian T. J., Andreae M. O., and Mason S. A.: Analysis of the chemical processes in the smoke plume from a savanna fire, *J. Geophys. Res.*, 110, D12301, doi:10.1029/2004JD005628, 2005.

Tsai W.-T.: The decomposition products of sulfur hexafluoride (SF₆): Reviews of environmental and health risk analysis, *Journal of Fluorine Chemistry*, Volume 128, Issue 11, 2007, Pages 1345-1352, ISSN 0022-1139, <https://doi.org/10.1016/j.jfluchem.2007.06.008>, 2007.

Turquety, S., Hadji-Lazaro, J., and Clerbaux, C., First satellite ozone distributions retrieved from nadir high-resolution infrared spectra, *Geophys. Res. Lett.*, 29(24), 2198, doi:10.1029/2002GL016431, 2002.

Turquety S., Hurtmans D., Hadji-Lazaro J., Coheur P.-F., Clerbaux C., Josset D., Tsamalis C.: Tracking the emission and transport of pollution from wildfires using the IASI CO retrievals: analysis of the

summer 2007 Greek fires, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9, 2009, 14, 4897–4913, [10.5194/acp-9-4897-2009](https://doi.org/10.5194/acp-9-4897-2009), 2009.

Val Martin M., Logan J. A., Kahn R. A., Leung F.-Y., Nelson D. L., and Diner D. J.: Smoke injection heights from fires in North America: analysis of 5 years of satellite observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 1491–1510, <https://doi.org/10.5194/acp-10-1491-2010>, 2010.

Van Damme M., Clarisse L., Heald C. L., Hurtmans D., Ngadi Y., Clerbaux C., Dolman A. J., Erismann J. W., and Coheur P. F.: Global distributions and trends of atmospheric ammonia (NH₃) from IASI satellite observations, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 13, 24,301–24,342, [doi:10.5194/acpd-13-24301-2013](https://doi.org/10.5194/acpd-13-24301-2013), 2013.

Van Damme M., 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, *Atmos. Meas. Tech.*, 10, 4905–4914, <https://doi.org/10.5194/amt-10-4905-2017>, 2017.

Van Damme, M., Clarisse, L., Whitburn, S. et al. Industrial and agricultural ammonia point sources exposed. *Nature* 564, 99–103 (2018). <https://doi.org/10.1038/s41586-018-0747-1>, 2018.

Van Damme M., Clarisse L., Whitburn S., Hadji-Lazaro J., Hurtmans D., Clerbaux C., Coheur P. F.: Industrial and agricultural ammonia point sources exposed. *Nature*, 564(7734), 99-103, 2018.

Varley N., Taran Y.: Degassing processes of Popocatepetl and Volcán de Colima, Mexico. [10.1144/GSL.SP.2003.213.01.16](https://doi.org/10.1144/GSL.SP.2003.213.01.16), 2003.

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., 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*, Volume 120, 2012, Pages 70-83, ISSN 0034-4257, <https://doi.org/10.1016/j.rse.2011.09.027>, 2012.

Venzke E. (ed.): Report on Ubinas (Peru), *Bulletin of the Global Volcanism Network*, 44:9. Smithsonian Institution. <https://doi.org/10.5479/si.GVP.BGVN201909-354020>, Global Volcanism Program, 2019.

Viatte C., Strong K., Paton-Walsh C., Mendonca J., O'Neill N., Drummond J. : Measurements of CO, HCN, and C₂H₆ Total Columns in Smoke Plumes Transported from the 2010 Russian Boreal Forest Fires to the Canadian High Arctic. *Atmosphere-Ocean*. 51. [10.1080/07055900.2013.823373](https://doi.org/10.1080/07055900.2013.823373), 2013.

Viatte C., Petit J.-E., Yamanouchi S., Van Damme M., Doucerain C., Germain-Piaulenne E., Gros V., Favez O., Clarisse L., Coheur P.-F., et al.: Ammonia and PM_{2.5} Air Pollution in Paris during the 2020 COVID Lockdown. *Atmosphere* 2021, 12, 160. <https://doi.org/10.3390/atmos12020160>, 2021.

Vinatier S.: Analyse des spectres infrarouges thermiques émis par l'atmosphère de Titan enregistrés par l'instrument CIRS à bord de la sonde Cassini. Astrophysique [astro-ph]. Université Paris-Diderot- Paris VII, 2007. Français. tel-00463734, 2007.

Voigt C., Jessberger P., Jurkat T. et al.: Reply to comment from Liotta and Rizzo on "Evolution of CO₂, SO₂, HCl and HNO₃ in the volcanic plumes from Etna" by Voigt et al. [Geophys. Res. Lett.; 41, doi:10.1002/2013GL058974]. Bull Volcanol 76, 865 (2014). <https://doi.org/10.1007/s00445-014-0865-z>, 2014.

Volkamer R., Molina L., Molina M., Terry S., Brune W.: DOAS measurement of glyoxal as an indicator for fast VOC chemistry in urban air. Geophys. Res. Lett. 32. 10.1029/2005GL022616, 2005.

Volkamer R., Ziemann P. J., and Molina M. J.: Secondary Organic Aerosol Formation from Acetylene (C₂H₂), seed effect on SOA yields due to organic photochemistry in the aerosol aqueous phase, Atmos. Chem. Phys., 9, 1907–1928, doi:10.5194/acp-9-1907-2009, 2009.

Von Clarmann T. and Johansson S.: Chlorine nitrate in the atmosphere, Atmos. Chem. Phys., 18, 15363–15386, <https://doi.org/10.5194/acp-18-15363-2018>, 2018.

Von Glasow R., Bobrowski N., Kern C.: The effects of volcanic eruptions on atmospheric chemistry. Chemical Geology, 263(1-4), 131-142, 2009.

Watanabe M., Shiogama H., Imada Y., Mori M., Ishii M., Kimoto M.: Event attribution of the August 2010 Russian heat wave. SOLA, 9, 65-68, 2013.

Weaver D., Strong K., Walker K. A., Sioris C., Schneider M., McElroy C. T., Vömel H., Sommer M., Weigel K., Rozanov A., Burrows J. P., Read W. G., Fishbein E., and Stiller, G.: Comparison of ground-based and satellite measurements of water vapour vertical profiles over Ellesmere Island, Nunavut, Atmos. Meas. Tech., 12, 4039–4063, <https://doi.org/10.5194/amt-12-4039-2019>, 2019.

Wespes C., Hurtmans D., Herbin H., Barret B., Turquety S., et al. : First global distributions of nitric acid in the troposphere and the stratosphere derived from infrared satellite measurements. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, American Geophysical Union, 2007, 112, pp.D13311. 10.1029/2006JD008202. hal-00164678, 2007.

Wespes C., Hurtmans D., Clerbaux C., Santee M. L., Martin R. V., and Coheur P. F.: Global distributions of nitric acid from IASI/MetOP measurements, Atmos. Chem. Phys., 9, 7949–7962, <https://doi.org/10.5194/acp-9-7949-2009>, 2009.

Whitburn S., Van Damme M., Kaiser J.W., van der Werf G.R., Turquety S., Hurtmans D., Clarisse L., Clerbaux C., Coheur P.F.: Ammonia emissions in tropical biomass burning regions: Comparison between satellite-derived emissions and bottom-up fire inventories, Atmos. Environ., 121, 42–54, 2015.

Whitburn S., Van Damme M., Clarisse L., Hurtmans D., Clerbaux C., and Coheur P.-F.: IASI-derived NH₃ enhancement ratios relative to CO for the tropical biomass burning regions, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 12239–12252, <https://doi.org/10.5194/acp-17-12239-2017>, 2017.

Worden H. M., Deeter M. N., Edwards D. P., Gille J. C., Drummond J. R., and Nédélec P. : Observations of near-surface carbon monoxide from space using MOPITT multispectral retrievals, *J. Geophys. Res.*, 115, D18314, doi:10.1029/2010JD014242, 2010.

Xiao Y., Jacob D. J., and Turquety S.: Atmospheric acetylene and its relationship with CO as an indicator of air mass age, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 112, D12305, doi:10.1029/2006JD008268, 2007.

Xiong X., Barnet C., Maddy E., Gambacorta A., King T., Wofsy S.: Mid-upper tropospheric methane retrieval from IASI and its validation. *Atmospheric Measurement Techniques*. 6. 10.5194/amt-6-2255-2013, 2013.

Zhang X, Zhang Y, Bai L, Tao J, Chen L, Zou M, Han Z, Wang Z. : Retrieval of Carbon Dioxide Using Cross-Track Infrared Sounder (CrIS) on S-NPP. *Remote Sensing*. 2021; 13(6):1163. <https://doi.org/10.3390/rs13061163>, 2021.

Zhong Z. C., Victor T., Balasubramanian R.: Measurement of major organic acids in rainwater in Southeast Asia during burning and non-burning periods. *Water, Air, and Soil Pollution*, 130(1), 457-462, 2001.

Zhu Y., Toon O.B., Jensen E.J. et al : Persisting volcanic ash particles impact stratospheric SO₂ lifetime and aerosol optical properties. *Nat Commun* 11, 4526 (2020). <https://doi.org/10.1038/s41467-020-18352-5>, 2020.