UNIVERSITÉ DE REIMS CHAMPAGNE-ARDENNE

ÉCOLE DOCTORALE MATHÉMATIQUES PHYSIQUE SCIENCES DU NUMÉRIQUE ET DE L'INGÉNIEUR n°620

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE REIMS CHAMPAGNE-ARDENNE

Discipline : Physique

Spécialité : Sciences de l'atmosphère

Présentée et soutenue publiquement par

EL HABCHI EL FENNIRI Hajar

Le 9 juin 2026

Déploiement et exploitation du spectromètre portable EM27/SUN pour la surveillance des gaz à effet de serre : analyse du contenu en information et optimisation des restitutions atmosphériques

---

Thèse dirigée par **Pr. Lilian JOLY**

Co-encadrée par **Dr. Bruno GROUIEZ**

JURY

Marielle SAUNOIS, Professeur, Université de Versailles Saint-Quentin-en-Yvelines	Rapporteur
Pascale CHELIN, Maître de conférences, Université Paris-Est Créteil	Rapporteur
Sébastien PAYAN, Professeur, Sorbonne Université	Examinateur
Thomas LAUVAUX, Directeur de recherche, LSCE	Examinateur
Hervé HERBIN, Professeur, Université de Lille	Invité
Lilian JOLY, Professeur, Université de Reims Champagne-Ardenne	Directeur de thèse
Bruno GROUIEZ, Ingénieur de recherche, Université de Reims Champagne-Ardenne	Co-encadrant

Table des matières

Liste des acronymes **1**

Liste des unités **5**

Liste des symboles **7**

Liste des notations **9**

Introduction générale **11**

Première partie : Contexte scientifique et instrumentation FTIR pour la mesure des gaz à effet de serre **15**

1 Contexte général **17**

1.1 Changement climatique et gaz à effet de serre 17

1.1.1 Principe de l'effet de serre 19

1.1.2 Cycle du carbone 20

1.1.3 Les gaz à effet de serre et le changement climatique : enjeux et mesures mondiaux 24

1.2 Mesure des gaz à effet de serre 25

1.2.1 Télédétection active et passive 26

1.2.2 Approches d'observation et de suivi des gaz à effet de serre 29

2 Spectroscopie FTIR solaire et description de l'instrument EM27/SUN **37**

2.1 Principe physique de la spectroscopie FTIR solaire 38

2.1.1 Rayonnement solaire : nature et spectre 38

2.1.2 Interaction rayonnement-matière 40

2.1.3 Mécanismes d'absorption 45

2.1.4 Autres phénomènes spectraux 51
2.1.5 Principes interférométriques et instrumentaux de la spectroscopie FTIR 53
2.1.5.1 Spectroscopie FTIR : principe instrumental 54
2.1.5.2 L'interféromètre de Michelson 54
2.1.5.3 Interférogramme et différence de marche optique 56
2.1.5.4 Résolution spectrale 59
2.1.5.5 Fonction d'appareil 61
2.2 Les caractéristiques et les éléments constitutifs de EM27/SUN et réseau COCCON 64
2.2.1 Principe de fonctionnement du spectromètre à transformée de Fourier EM27/SUN 64
2.2.1.1 Principe de fonctionnement du tracker 65
2.2.1.2 Système interférométrique de EM27/SUN 66
2.2.1.3 ILS spécifique aux EM27/SUN 70
2.2.1.4 Système de caisson automatique (SAAS-A02) 73
2.2.2 COCCON, contexte de création et rôle dans la surveillance des gaz traces atmosphériques 74

Deuxième partie : Modélisation du transfert radiatif et outils d'inversion des mesures FTIR avec PROFFAST et ARAHMIS 77

3 L'équation du transfert radiatif : calcul direct 79
3.1 Description du milieu atmosphérique 80
3.1.1 Structure thermodynamique de l'atmosphère 80
3.1.2 Profil de mélange volumique VMR 82
3.1.3 Colonne totale intégrée $Xgaz$ 84
3.2 Équation de transfert radiatif (ETR) 86
3.3 Bases de données spectroscopiques pour le calcul direct 93
3.3.1 Bases de données spectroscopiques 93
3.3.2 Modèles de transfert radiatif ligne par ligne (*line by line* LBL) . . 95
3.3.3 Exemples de codes de résolution de l'équation du transfert radiatif 96

4 Description et principes des logiciels d'inversion PROFFAST et ARAHMIS 99
4.1 Principe de fonctionnement et description du logiciel PROFFAST 100
4.1.1 Prétraitement (Preprocess) 101
4.1.2 Calcul des épaisseurs optiques (Pcxs) 101
4.1.3 Inversion (Invers) 101
4.1.4 Automatisation de PROFFAST 102
4.1.5 Site Moulin de la Housse et la variation saisonnière des GES . . . 103
4.1.5.1 Variation saisonnière des GES sur le site MDH avec PROFFAST 104
4.2 Présentation générale de l'algorithme ARAHMIS et la calibration radiométrique 106
4.2.1 Principe de fonctionnement général de ARAHMIS 106
4.2.2 Étallonnage radiométrique 108
4.2.2.1 Adaptation du spectre solaire 109
4.3 Paramètres d'entrée du logiciel ARAHMIS 114
4.3.1 Profil atmosphérique a priori 114
4.3.2 Intégration des données HITRAN et des absorptions CIA dans ARAHMIS 115
4.3.3 Modélisation de la résolution instrumentale 115
4.3.4 Rapport signal sur bruit (SNR) 116
4.3.5 Données sur les aérosols et les nuages 118
4.4 Structure fonctionnelle d'ARAHMIS 118

Troisième partie : Analyse du contenu d'information des mesures EM27/SUN et optimisation des canaux spectraux 121

5 Analyse du contenu d'information et optimisation de la sélection des canaux spectraux du spectromètre EM27/SUN par l'algorithme ARAHMIS 123
5.1 Du modèle direct à la méthode d'estimation inverse 124
5.1.1 Le modèle direct 126
5.1.2 Problème inverse 127
5.1.3 Principe de la méthode d'estimation 127

5.2 Linéarisation de la fonction de transfert 128
5.2.1 Le modèle linéarisé dans la fonction de transfert 129
5.2.2 Matrice des noyaux moyens (*Averaging Kernels*) 130
5.2.3 Analyse des erreurs et matrices de covariance 131
5.3 Analyse et interprétation du contenu en information des mesures EM27/SUN 135
5.3.1 Définition des zones spectrales spécifiques à chaque contribution . 136
5.3.2 Averaging kernel et DOFS 141
5.3.3 Effet de la matrice de covariance de l'a priori sur les DOFS et les erreurs de lissage pour le CO_2 et le CH_4 pour les deux voies . . . 161
5.3.4 Sélection des canaux 164

Conclusion générale et perspectives **169**

Références **175**

Liste des figures

1.1 Illustration de l'évolution du climat depuis 1850 : À gauche, l'évolution des concentrations atmosphériques des principaux gaz à effet de serre (CO_2, CH_4 et N_2O; à droite, l'augmentation de la température moyenne de surface globale observée (par rapport à la période 1850-1900)) [IPCC, 2023a]. . . 19

1.2 Schéma de la perturbation globale du cycle du carbone causée par les activités anthropiques en moyenne mondiale pour la décennie 2014-2023 [Friedlingstein *et al.*, 2025] 22

1.3 Schéma descriptif de télédétection active 27

1.4 Schéma descriptif de télédétection passive 28

1.5 Carte mondiale regroupant les différentes stations de mesures au sol du réseau TCCON (`https://tccon-wiki.caltech.edu`) 33

1.6 Carte mondiale regroupant les différentes stations de mesures au sol du réseau NDACC (`https://tccon-wiki.caltech.edu`) 34

1.7 Carte des différents sites d'exploitation du réseau COCCON dans le monde, basée sur des mesures réelles (points rouges), des campagnes de mesure (points bleus) ou des mesures prévues à l'avenir (points cyan). (`https://www.coccon.kit.edu/26.php`) 35

2.1 Un spectre électromagnétique qui s'étend des ondes hertziennes aux rayons gamma, en passant par les ondes radio, l'infrarouge, le visible, l'ultraviolet, les rayons X (https://www.cea.fr) 38

2.2 Les bandes d'absorption des principales molécules entrant dans la composition de l'atmosphère 39

2.3 Schéma qualitatif des niveaux d'énergie électroniques, vibrationnels et rotationnels d'une molécule (non à l'échelle) 41

2.4 Schéma des branches P ($\Delta J = -1$), Q ($\Delta J = 0$) et R ($\Delta J = +1$) dans une transition ro-vibrationnelle entre les niveaux v et $v + 1$. Les positions relatives des raies résultent des variations du nombre quantique rotationnel J [Brchnelova, 2020] 43
2.5 Les modes normaux de vibration de la molécule linéaire de CO_2 45
2.6 Les modes normaux de vibration de la molécule non linéaire de H_2O . . . 45
2.7 Élargissement par pression : comparaison des profils de Lorentz pour différentes valeurs de pression avec $\gamma_0 = 0.07$ cm^{-1}.atm^{-1} 49
2.8 Les profils des raies : Gaussienne, Lorentzienne et de Voigt 50
2.9 Comparaison des simulations du spectre de la voie (1) du EM27/SUN avec (haut) et sans (bas) les contributions d'absorption induite par collision (CIA) pour les paires $O_2 - O_2$ et $O_2 - air$, dans la région centrée autour de 7883 cm^{-1}. L'ajout des termes CIA permet de mieux reproduire la forme observée des bandes d'oxygène. 52
2.10 Schéma simplifié de l'interféromètre de Michelson 56
2.11 Transformation de Fourier entre l'interférogramme (domaine de la différence de marche) et le spectre (domaine des fréquences), pour un domaine de différence de marche fini (fonction porte de type Boxcar). 58
2.12 a) Le spectre est composé de deux raies d'intensités égales, séparées par une différence de nombre d'onde $\Delta\tilde{\nu} = 0.2\,\tilde{\nu}_1$ avec $\tilde{\nu} = \sigma$. b) Interférogrammes représentant chacune des deux raies spectrales prises séparément. c) L'interférogramme résultant de leur superposition est le suivant : Les maxima du battement sont séparés par un intervalle de $\Delta\delta = 5\lambda_1$. Pour pouvoir distinguer les deux raies, il est essentiel de reproduire un retard optique d'au moins cette valeur [mos, 1991]. 60
2.13 Le spectromètre EM27/SUN (`www.bruker.com`) 65
2.14 Schéma du tracker. Les flèches rouges indiquent le sens de rotation des axes de suivi du Soleil, tandis que la flèche jaune représente le trajet de la lumière solaire jusqu'à l'entrée du spectromètre. ([Gisi *et al.*, 2011a]) . . 66
2.15 Schéma détaillé du fonctionnement de l'EM27/SUN ([Gisi *et al.*, 2012]) . 67
2.16 Images du disque solaire sur le diaphragme de champ du spectromètre EM27/SUN, avec les cercles bleus dans l'image sont les contours détectés et utilisés par CamTracker pour assurer la précision du suivi ([Gisi *et al.*, 2012]) 69

2.17 Schémas de la partie détecteur modifiée du système EM27/SUN, avec déplacement de la caméra vers la droite sur le schéma ([Hase *et al.*, 2016]) 70
2.18 Variation de la forme de ILS en fonction des valeurs des deux paramètres MEA et PE [Hase *et al.*, 1999]. 72
2.19 ILS calculé par LINEFIT à l'aide des paramètres déterminés par l'équipe de Monaris pour EM27/SUN #130. 73
2.20 Le caisson automatique EM27/SUN du site de GSMA 74

3.1 Structure verticale des différentes couches atmosphériques, avec les variations de température (en rouge), de pression (en vert), de densité (en marron) et de vitesse du son (en bleu) [Tourasse, 2016]. 82
3.2 Représentation schématique du spectre électromagnétique du soleil en position de visée au zénith traversant les différentes couches de l'atmosphère 87
3.3 Relation géométrique entre la distance élémentaire le long du rayon ds et sa projection verticale dz dans une géométrie plane-parallèle. 89

4.1 Ajustement par la méthode de calcul du facteur d'échelle (Scaling factor) 100
4.2 Organigramme des étapes automatisées de traitement des données EM27/SUN avec PROFFAST 103
4.3 Exemple de la journée du 19 septembre 2023 de l'événement MAGIC2023 : à gauche, la carte d'installation des différents spectromètres EM27/SUN, et à droite, la variation de XCO_2 au cours de la journée pour les cinq spectromètres. 104
4.4 Cycle annuel EM27/SUN et ICOS. En haut, données ICOS moyennées et lissées autour de midi. En bas, variations journalières EM27/SUN en gris, moyennes en rouge 106
4.5 Extrapolation de l'AOD à l'aide de la loi d'Ångström le long de notre zone spectrale 111
4.6 La variation calculer des deux paramètres a et b en fonction de nombre d'ondes. 112
4.7 Spectre brut EM27/SUN et son lissage. 113
4.8 Spectre EM27/SUN calibré en radiance. 113
4.9 Le bruit et leur lissage en rouge pour la voie 1 de EM27/SUN. 117
4.10 Le bruit et leur lissage en rouge pour la voie 2 de EM27/SUN. 117

4.11 Représentation schématique du processus de simulation et d'inversion de l'algorithme ARAHMIS 119

5.1 Trois types de problémes d'estimation en fonction du temps 126
5.2 Photo des conditions d'ensoleillement du 13 juin 2023 135
5.3 Spectre calibré et simulé du spectre pour la voie 1 136
5.4 Spectre calibré et simulé du spectre pour la voie 2 136
5.5 Spectre calibré et simulé avec la contribution de chaque espèce pour la voie 1 139
5.6 Spectre calibré et simulé avec la contribution de chaque espèce pour la voie 2 140
5.7 Averaging kernels (panneaux a, c, e, g) et bilans d'erreur a posteriori (panneaux b, d, f, h) pour les profils verticaux de CO_2 dans les quatre bandes spectrales de la voie 1. Chaque courbe d'AVK correspond à un niveau d'altitude défini à partir du profil a priori GGG2020. Les couleurs indiquent l'altitude : les teintes sombres représentent les niveaux les plus bas, et les teintes claires les plus élevés. Le DOFS associé à chaque bande est indiqué en haut de chaque panneau d'AVK. Les panneaux d'erreurs montrent la contribution relative de chaque source d'incertitude (lissage, modèle, mesure, etc.) telle que détaillée dans la légende. 144
5.8 Averaging kernels (panneaux a, c, e, g) et bilans d'erreur a posteriori (panneaux b, d, f, h) obtenus pour le couplage de deux bandes consécutives de CO_2 dans la voie 1 de l'EM27/SUN. Chaque courbe d'AVK correspond à un niveau d'altitude défini à partir du profil a priori GGG2020. Les couleurs indiquent l'altitude, les teintes sombres représentant les niveaux les plus bas et les teintes claires les plus élevés. Les valeurs du DOFS associées à chaque combinaison de bandes sont indiquées dans les panneaux correspondants. Les différentes sources d'erreur contribuant à l'incertitude totale sont détaillées dans la légende des panneaux d'erreur. 145

5.9 Les AVK et les bilans d'erreur des profils verticaux de CH_4 et de H_2O de la voie 1 : (a) AVK du CH_4, (b) bilans d'erreur du CH_4, (c) AVK du H_2O, (d) bilans d'erreur du H_2O. Chaque courbe d'AVK correspond à un niveau d'altitude défini à partir du profil a priori GGG2020. Les couleurs représentent les altitudes : les teintes sombres correspondent aux niveaux les plus bas et les teintes claires aux plus élevés. Les différentes sources d'erreur sont détaillées dans la légende de la figure. 147

5.10 Averaging kernels et bilans d'erreur des profils verticaux de CO_2 et de CH_4 dans la voie 2. (a) AVK du CO_2, (b) bilans d'erreur du CO_2, (c) AVK du CH_4, (d) bilans d'erreur du CH_4. Chaque courbe d'AVK correspond à un niveau d'altitude défini à partir du profil a priori GGG2020. Les couleurs représentent les altitudes : les teintes sombres indiquent les basses altitudes et les teintes claires les niveaux les plus élevés. Les différentes sources d'erreur sont indiquées dans la légende. 149

5.11 Averaging kernels et bilans d'erreur des profils verticaux de CO dans la voie 2. (a) AVK du CO ; (b) bilans d'erreur correspondants. Chaque courbe d'AVK représente un niveau d'altitude défini à partir du profil a priori GGG2020. Les couleurs indiquent l'altitude : les teintes sombres correspondent aux basses altitudes et les teintes claires aux niveaux plus élevés. Les différentes contributions à l'erreur totale sont précisées dans la légende. 151

5.12 XCO inversé par PROFFAST le 13 juin 2023. 153

5.13 Différence entre les deux profils a priori CO (GGG2020) du 3 juin 2025: profil normal vs profil VMR du 13 juin 2023. 153

5.14 XCO inversé par PROFFAST le 3 juin 2025 avec a priori 13 juin 2023 en haut (courbe bleu), XCO inversé et le 3 juin 2025 avec a priori normal au milieu (courbe rouge., et différence entre les variations $\Delta\Delta$XCO en bas (courbe verte) 154

5.15 Averaging kernels et bilans d'erreur des profils verticaux de N_2O dans la voie 2. (a) AVK de la bande 1 ; (b) bilans d'erreur associés ; (c) AVK de la bande 2 ; (d) bilans d'erreur associés. Chaque courbe d'AVK correspond à un niveau d'altitude défini à partir du profil a priori GGG2020. Les couleurs représentent l'altitude : teintes sombres pour les basses altitudes et teintes claires pour les niveaux plus élevés. Les différentes contributions à l'erreur totale sont indiquées dans la légende. 155

5.16 La concentration moyenne de N_2O entre 2000 et 2025 [NOAA Global Monitoring Laboratory, 2026] 156

5.17 La selection des canaux pour la bande de couplage 2 et 3 de la voie 1 (jaune = 90%, vert = 10% de l'information cumulée). la figure (a) sans ajustement de la ligne de base et (b) avec 1% d'ajustement 166

Liste des tableaux

4.1 Valeurs SNR pour différentes gammes spectrales. 116

5.1 Résumé des entrées de la voie 1 pour chaque intervalle de molécule étudié. 137
5.2 Résumé des entrées de la voie 2 pour chaque intervalle de molécule étudié. 138
5.3 Contribution des différentes sources d'erreur et DOFS pour les bandes spectrales considérées. 159
5.4 Contribution des différentes sources d'erreur et DOFS pour les bandes spectrales considérées (voie 2). 160
5.5 Comparaison des DOFS et de l'erreur de lissage avec et sans matrice de covariance pour le CO_2 et le CH_4 pour les deux voies. 163
5.6 Nombre de canaux contenant 90 % de l'information avec et sans ajustement de la ligne de base de la voie 1 de CO_2 et deCH_4. 167

Liste des acronymes

AERONET	Aerosol Robotic Network
AirCore	Balloon-borne Atmospheric Air Sampler
AOD	Aerosol Optical Depth
ARAHMIS	Atmospheric Retrieval Algorithm for High-resolution Measurements and Information Studies
ATM	Atmospheric Profile
AVK	Averaging Kernel Matrix
CAMS	Copernicus Atmosphere Monitoring Service
CHRIS	Compact High Resolution Imaging Spectrometer
CIA	Collision-Induced Absorption
COCCON	Collaborative Carbon Column Observing Network
DMF	Dry Mole Fraction
DOFS	Degrees of Freedom for Signal
EM27/SUN	Portable Fourier Transform Spectrometer for Solar Absorption Measurements
ETR	Équation de Transfert Radiatif
FTIR	Fourier Transform Infrared Spectroscopy
FTS	Fourier Transform Spectrometer
GEISA	Gestion et Étude des Informations Spectroscopiques Atmosphériques
GES	Gaz à Effet de Serre
GFIT	Gas Fitting Algorithm
GHG	Greenhouse Gas

GIEC	Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat
GOSAT	Greenhouse Gases Observing Satellite
GSMA	Groupe de Spectrométrie Moléculaire et Atmosphérique
HITRAN	High-resolution Transmission Molecular Absorption Database
HR-FTS	High Resolution Fourier Transform Spectrometer
IASI	Infrared Atmospheric Sounding Interferometer
IASI-NG	Infrared Atmospheric Sounding Interferometer – New Generation
ICOS	Integrated Carbon Observation System
ILS	Instrument Line Shape
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change
IPDA	Integrated Path Differential Absorption
IR	Infrared
KIT	Karlsruhe Institute of Technology
LATMOS	Laboratoire Atmosphères, Milieux, Observations Spatiales
LBL	Line-By-Line
LBLRTM	Line-By-Line Radiative Transfer Model
LINEFIT	Logiciel de caractérisation de la fonction instrumentale
LOA	Laboratoire d'Optique Atmosphérique
LSCE	Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement
MEA	Modulation Efficiency Amplitude
NASA	National Aeronautics and Space Administration
NB	Norton-Beer
NDACC	Network for the Detection of Atmospheric Composition Change
NIR	Near Infrared
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration
OCO-2	Orbiting Carbon Observatory-2
OCO-3	Orbiting Carbon Observatory-3
OPD	Optical Path Difference

PCHIP	Piecewise Cubic Hermite Interpolating Polynomial
PE	Phase Error
PROFFAST	PROFile FITting FAST
ROD	Rayleigh Optical Depth
SF	Spectre de Fraunhofer
SNR	Signal-to-Noise Ratio
SWIR	Short-Wave Infrared
SZA	Solar Zenith Angle
TANSO-FTS	Thermal And Near Infrared Sensor for Carbon Observation – Fourier Transform Spectrometer
TANSO-FTS-2	Version 2 de TANSO-FTS
TCCON	Total Carbon Column Observing Network
TIR	Thermal Infrared
TROPOMI	TROPOspheric Monitoring Instrument
UV	Ultraviolet
VMR	Volume Mixing Ratio
WMO	World Meteorological Organization
Xgas	Column-averaged dry-air mole fraction of a gas
ZPD	Zero Path Difference

Liste des unités

%	Pourcentage
°C	Degré Celsius
K	Kelvin
m	Mètre
km	Kilomètre
cm	Centimètre
mm	Millimètre
µm	Micromètre
nm	Nanomètre
kg	Kilogramme
g	Gramme
mg	Milligramme
s	Seconde
min	Minute
h	Heure
Pa	Pascal
hPa	Hectopascal
atm	Atmosphère standard
J	Joule
W	Watt
sr	Stéradian
mol	Mole
$\mathbf{mol\,m^{-2}}$	Mole par mètre carré

ppm	Partie par million
ppb	Partie par milliard
ppt	Partie par billion
cm^{-1}	Nombre d'onde
mW	Milliwatt
GtC	Gigatonne de carbone
$GtCO_2$	Gigatonne de dioxyde de carbone

Liste des symboles

σ	Nombre d'onde (cm^{-1})
λ	Longueur d'onde
ν	Fréquence
δ	Différence de marche optique
I	Intensité du rayonnement
L	Radiance spectrale
B	Fonction de Planck
T	Température
P	Pression atmosphérique
z	Altitude
s	Distance parcourue par le rayonnement
θ	Angle zénithal solaire (SZA)
τ	Épaisseur optique
α	Coefficient d'Ångström
γ	Demi-largeur de raie
χ	Fraction molaire
ρ	Densité
ε	Coefficient d'absorption
Ω	Angle solide

Liste des notations

$\mathbf{x}$	Vecteur d'état atmosphérique recherché
$\mathbf{x_a}$	État atmosphérique a priori
$\mathbf{y}$	Vecteur des observations
$\mathbf{F}(\mathbf{x})$	Modèle direct
$\mathbf{K}$	Matrice jacobienne (matrice des sensibilités)
$\mathbf{G}$	Matrice de gain
$\mathbf{A}$	Matrice des noyaux de moyennage (Averaging Kernel Matrix)
$\mathbf{S_a}$	Matrice de covariance a priori
$\mathbf{S_e}$	Matrice de covariance des erreurs de mesure
$\mathbf{S_s}$	Matrice de covariance de l'erreur de lissage
$\mathbf{S_m}$	Matrice de covariance des erreurs de modèle
$\mathbf{S_r}$	Matrice de covariance de la restitution
$\mathbf{I}$	Matrice identité
$\hat{\mathbf{x}}$	État atmosphérique restitué
$\Delta\mathbf{x}$	Erreur sur le vecteur d'état
ΔL	Différence entre radiance simulée et observée
$DOFS$	Nombre de degrés de liberté pour le signal
SF	Facteur d'échelle (Scaling Factor)
X_{gas}	Fraction molaire sèche moyenne en colonne d'un gaz

Introduction générale

Depuis toujours, la présence des gaz à effet de serre est fondamentale pour que la vie sur Terre puisse exister, car elle permet de maintenir une température moyenne de 14 °C à la surface de la Terre, contre environ -18 °C dans l'hypothèse où ces gaz seraient absents [Cassia *et al.*, 2018]. Au XIXe siècle, la révolution industrielle a entraîné une accumulation de gaz à effet de serre dans l'atmosphère, notamment le dioxyde de carbone CO_2 et le méthane CH_4. Ces gaz proviennent de la combustion de combustibles fossiles, de la déforestation et des activités industrielles. Leur accumulation modifie profondément l'équilibre radiatif de l'atmosphère et influence de nombreux systèmes naturels et humains [Guivarch, 2020, Galipeau, 2024]. Le réchauffement de la planète est un phénomène complexe, dont les causes sont multiples. L'augmentation des gaz à effet de serre (GES) d'origine anthropique, c'est-à-dire liés aux activités humaines, renforce l'effet de serre. Ce renforcement entraîne un réchauffement supplémentaire et continu. Entre 2011 et 2020, la température à la surface du globe a augmenté de 1,1 °C par rapport à la période 1850-1900 [IPCC, 2023b]. En 2023, un nouveau record a été atteint concernant la concentration moyenne mondiale de CO_2 dans l'atmosphère, avec une valeur de $420 \pm 0{,}1$ ppm. C'est ce que révèle le dernier rapport (2025) de l'Organisation météorologique mondiale (OMM), avec une augmentation de 2,3 ppm par rapport à 2022, ce qui est un indicateur clair des changements climatiques en cours [World Meteorological Organization (WMO), 2025]. Face aux enjeux du réchauffement climatique, il est essentiel d'obtenir des estimations précises des émissions de GES afin d'élaborer des politiques d'atténuation et d'adaptation au changement climatique [La Notte *et al.*, 2018]. Les méthodes de comptabilisation des émissions de GES offrent des avantages et des limites selon l'échelle considérée. Les mesures *in situ* sont plus précises, mais présentent des limites liées à leur couverture spatiale et temporelle. [Bastviken *et al.*, 2022]. Les inventaires sectoriels des émissions de GES sont souvent imprécis et ne donnent pas une vision d'ensemble [Bruhwiler *et al.*, 2021]. Par

ailleurs, la concentration des GES peut être suivie de manière continue et globale grâce aux satellites [Buchwitz *et al.*, 2013].
Même si ces observations spatiales présentent des incertitudes plus élevées à l'échelle locale que les mesures depuis la surface, elles sont utiles pour surveiller les GES à l'échelle mondiale (300 000 estimations par jour avec l'instrument IASI) [Membrive, 2016]. Une amélioration continue des mesures de télédétection permet de renforcer la fiabilité des mesures à grande échelle et d'affiner les estimations des inventaires nationaux d'émissions, en mettant en évidence certaines sous-estimations des émissions réelles [Erland *et al.*, 2022].
En 2004, face à la nécessité impérieuse de disposer d'un réseau de surveillance au sol hautement précis des gaz à effet de serre (GES), afin de réduire les biais des modèles climatiques et de calibrer et valider ces missions spatiales à l'aide d'instruments au sol, conformément à l'objectif européen de développer des systèmes satellites pour la surveillance des émissions de carbone avec une précision de l'ordre de 1 ppm et des erreurs systématiques inférieures à 0,5 ppm à long terme d'ici 2030 [Ciais *et al.*, 2015], le réseau d'observation de la colonne de carbone total TCCON, qui regroupe des spectromètres à transformée de Fourier (HR-FTS) a été créé [Wunch *et al.*, 2011]. Cependant, en raison de leur taille et de leur coût élevé, ces équipements sont généralement réservés aux centres de test et aux laboratoires de recherche [Chai *et al.*, 2020]. Pour répondre à l'objectif principal d'élargissement du réseau *Total Carbon Column Observing Network* (TCCON), un spectromètre FTIR (*Fourier Transform Infrared Spectroscopy*) à basse résolution, correctement calibré selon un protocole d'analyse de données standardisé, a été ajouté. Il s'agit du spectromètre EM27/SUN, qui offre des performances suffisantes pour compléter le FTS (*Fourier Transform Spectrometer*) [Tu *et al.*, 2021]. Après avoir été comparé et vérifié avec l'instrument FTS, EM27/SUN a prouvé sa stabilité sur plusieurs années et sa capacité à compléter le réseau TCCON dans les zones reculées [Frey *et al.*, 2019]. C'est dans cette optique que le réseau de suivi des GES avec l'EM27/SUN a été créé. Il a été baptisé « *Collaborative Carbon Column Observing Network* » (COCCON). Ce dispositif, qui est au cœur de ma thèse, a été développé par le KIT (*Karlsruhe Institute of Technology*) en collaboration avec Bruker Optics^{TM}. Il offre une résolution spectrale de 0,5 cm^{-1} dans le proche infrarouge. Il dispose de deux voies : la voie 1 de 5 500 à 12 000 cm^{-1} et la voie 2 de 4 000 à 5 200 cm^{-1}. Les spectres mesurés par l'EM27/SUN permettent d'extraire les fractions molaires sèches (DMF) moyennées par colonne (représentées par X_{gas}) de CO_2, CH_4, CO et H_2O. Cette méthode offre une précision et une exactitude

similaires ou supérieures à celles du TCCON [Gisi *et al.*, 2012]. Dans le but d'assurer une qualité uniforme dans l'ensemble du réseau COCCON, le traitement des mesures brutes de l'EM27/SUN s'effectue à l'aide de l'ensemble de logiciels PROFFAST. Les spectres mesurés par l'EM27/SUN contiennent plusieurs milliers de signatures spectrales caractéristiques des différentes molécules rencontrées, mais le traitement avec PROFFAST ne fournit pas d'analyse explicite en ce qui concerne le contenu en information et le choix des canaux de chaque gaz trace.
Dans cette perspective, l'algorithme ARAHMIS a été utilisé pour la première fois dans cette thèse afin d'étudier le contenu en information de l'instrument EM27/SUN. Cette recherche doctorale s'est articulée autour de la résolution des questions suivantes :

- Identifier les gaz traces absorbants dans les deux voies spectrales de l'EM27/SUN ;
- Établir la liste des bandes d'absorption correspondantes à chaque espèce ;
- Calculer le nombre d'informations indépendantes qui peuvent être extraites de la colonne verticale de chaque gaz pour les deux voies ;
- Identifier les sources d'erreur dominantes pour chaque gaz et chaque voie ;
- Vérifier que les bandes sélectionnées avec ARAHMIS correspondent bien à celles définies dans PROFFAST ;
- Souligner l'importance de la matrice de covariance du profil a priori et examiner son influence sur la distribution et la dispersion de l'information ;
- Sélectionner les canaux spectraux les plus informatifs pour l'estimation des colonnes verticales.

Le premier chapitre introductif présente le contexte du sujet et les enjeux liés aux estimations mondiales des gaz à effet de serre. Le deuxième chapitre aborde ensuite les principes physiques et instrumentaux essentiels, ainsi que les caractéristiques de l'instrument EM27/SUN et présente le réseau COCCON. Les principes physiques et

numériques régissant la modélisation du transfert radiatif, ainsi que des exemples de logiciels d'inversion permettant de résoudre cette équation, sont présentés dans le troisième chapitre. Le cœur du sujet est abordé dans le quatrième chapitre, avec une description détaillée du logiciel PROFFAST et du logiciel principal de cette étude, ARAHMIS. Ce dernier formalise le cadre opérationnel de l'étude, faisant la transition entre les concepts théoriques et l'application pratique. Le dernier chapitre, est consacré à la présentation des résultats et répond aux questions de cette thèse.

Première partie

Contexte scientifique et instrumentation FTIR pour la mesure des gaz à effet de serre

Chapitre 1

Contexte général

Ce chapitre présente le contexte général du sujet en abordant les enjeux et les mesures mondiales des concentrations de gaz à effet de serre. Il fournit une description succincte des concepts fondamentaux (changement climatique, cycle du carbone, gaz à effet de serre), des techniques et approches (satellitaires et *in situ*) ainsi que des technologies (actives et passives) et des instruments au sol permettant d'estimer la concentration de ces gaz.

1.1 Changement climatique et gaz à effet de serre

Le changement climatique correspond à l'augmentation générale des températures moyennes à l'échelle mondiale liées à l'augmentation de la concentration de gaz à effet de serre dans l'atmosphère. Jusqu'alors, les changements climatiques observés étaient liés à des activités naturelles, comme les cycles solaires (sur des échelles de temps allant de quelques décennies à plusieurs siècles) ou les éruptions volcaniques. Cependant, le changement climatique actuel est dû aux activités humaines, ce dernier est principalement attribué à l'utilisation de combustibles fossiles comme le charbon, le pétrole et le gaz. Dès 1897, Arrhenius et Holden ont ouvert la question majeure du lien étroit entre la concentration de dioxyde de carbone CO_2 dans l'atmosphère et la température terrestre.

Ils ont notamment suggéré que l'augmentation de la température suivrait une progression presque arithmétique lorsque la concentration de CO_2 augmente. D'après leurs calculs, ils ont par ailleurs estimé que la température des régions arctiques pourrait augmenter d'environ 8 à 9 °C si la concentration de CO_2 atteignait 2,5 à 3 fois sa valeur initiale [Arrhenius et Holden, 1897]. Aujourd'hui, plus d'un siècle plus tard, cette relation entre l'augmentation du CO_2 atmosphérique et le réchauffement climatique est suivie par les grandes institutions internationales. En 2023, la concentration moyenne mondiale de CO_2 dans l'atmosphère a atteint un nouveau record, avec une concentration de $420 \pm 0{,}1$ ppm, comme l'indique le dernier rapport (2025) de l'Organisation météorologique mondiale (OMM). Cette valeur a augmenté de 2,3 ppm en un an, et si l'on considère la période entre 1750 (début de l'ère préindustrielle) et 2023, on constate une augmentation d'environ 51 % [World Meteorological Organization (WMO), 2025]. L'activité humaine est la principale cause de l'augmentation de la concentration de CO_2 dans l'atmosphère, ce qui contribue largement au changement climatique.

Depuis la publication de son premier rapport en 1990, le groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat (GIEC) publie des rapports d'évaluation tous les cinq à sept ans. Le plus récent, publié le 20 mars 2023, synthétise les connaissances scientifiques actuelles sur le changement climatique et ses principaux facteurs déterminants. Les activités humaines, en particulier celles liées à l'utilisation des terres, aux changements d'affectation des terres et à la sylviculture, ont contribué à l'augmentation des concentrations atmosphériques de plusieurs gaz à effet de serre (GES), comme le montre ce rapport. La figure 1.1 (panneau en bas) illustre cette augmentation en montrant que la concentration des trois principaux GES (CO_2, CH_4 et N_2O) a fortement augmenté depuis 1850. Parallèlement, le panneau supérieur de la figure 1.1 montre une augmentation d'environ 1,1 °C de la température moyenne mondiale de surface sur la période 2011-2020 par rapport à 1850-1900, confirmant ainsi l'accélération récente du réchauffement climatique à l'échelle mondiale [IPCC, 2023a].

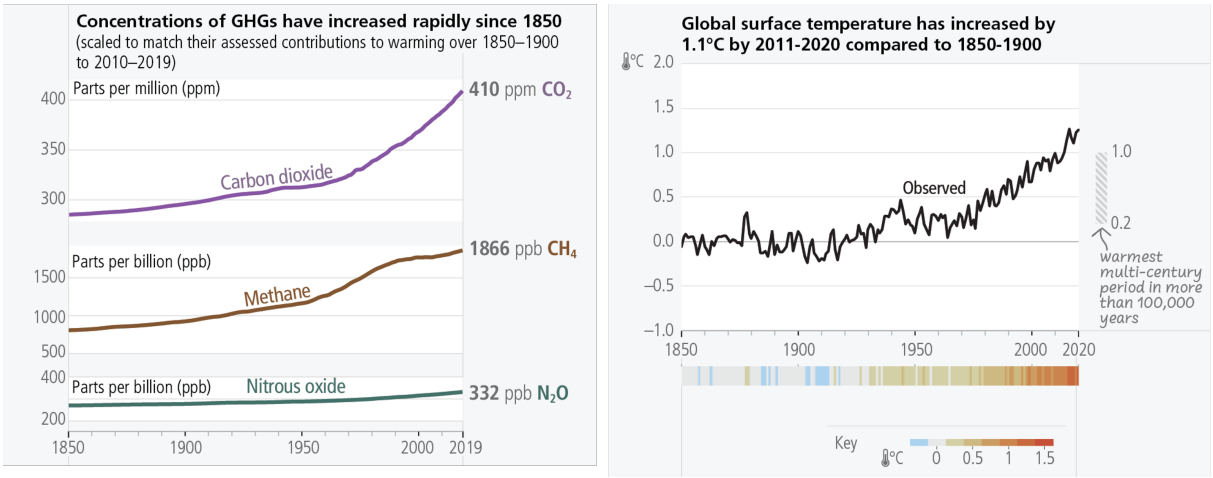


Figure 1.1: Illustration de l'évolution du climat depuis 1850 : À gauche, l'évolution des concentrations atmosphériques des principaux gaz à effet de serre (CO_2, CH_4 et N_2O; à droite, l'augmentation de la température moyenne de surface globale observée (par rapport à la période 1850-1900)) [IPCC, 2023a].

Il est essentiel de comprendre les mécanismes du phénomène des changements importants que nous observons en ce qui concerne la concentration de gaz à effet de serre dans l'atmosphère et du réchauffement climatique.

1.1.1 Principe de l'effet de serre

Les gaz à effet de serre retiennent une partie de la chaleur présente dans l'atmosphère, contribuant à maintenir une température compatible avec la vie. Les GES absorbent les rayons infrarouges émis par la Terre réchauffée par le rayonnement solaire et ils redistribuent cette chaleur dans l'atmosphère rendant la planète habitable. Sans ce processus la température moyenne de la Terre serait de -18 °C. Cependant, l'excès de leurs concentrations dans l'atmosphère dû aux activités humaines surtout depuis la révolution industrielle amplifie cet effet, piégeant ainsi plus de chaleur, entraînant une hausse des températures provoquant le réchauffement climatique. En effet, l'équilibre entre l'énergie solaire captée et celle que la Terre émet vers l'espace sous forme de rayonnement infrarouge permet de réguler le flux thermique de la Terre. Le Groupe d'experts intergouvernemen-

tal sur l'évolution du climat (GIEC) définit le forçage radiatif comme la perturbation imposée au système dans le bilan énergétique radiatif du système climatique de la Terre [Schimel *et al.*, 1996]. Le changement climatique rapide que nous observons actuellement est en grande partie attribuable aux activités humaines qui constituent une part importante des émissions de gaz à effet de serre (GES) dans l'atmosphère [Nayak *et al.*, 2020, Evseeva *et al.*, 2021, Tang *et al.*, 2021, Xi-Liu et Qing-Xian, 2018]. L'augmentation de la concentration de certains gaz à effet de serre dans l'atmosphère, qui sont radiativement actifs, a des répercussions majeures sur l'équilibre énergétique de la planète. Certains de ces gaz à effet de serre possèdent la capacité d'absorber une partie du rayonnement infrarouge émis par la Terre. L'atmosphère contient naturellement des gaz à effet de serre (GES). Il s'agit notamment de la vapeur d'eau (H_2O), du dioxyde de carbone (CO_2), du méthane (CH_4), du protoxyde d'azote (N_2O) et de l'ozone (O_3). L'énergie qu'ils captent se propage ensuite dans toutes les directions. L'effet de serre naturel résulte de l'absorption puis de la réémission du rayonnement infrarouge par les gaz atmosphériques. Ce mécanisme limite le refroidissement de la Terre et maintient une température moyenne d'environ 15 °C, au lieu d'environ −18 °C dans un bilan radiatif simplifié sans atmosphère absorbante. L'effet de serre naturel est principalement causé par la vapeur d'eau (H_2O) qui représente environ 70% de ce phénomène [Jain, 1993]. Le dioxyde de carbone (CO_2) est le deuxième contributeur majeur avec environ 20% de l'effet de serre atmosphériques [Jain, 1993]. Les autres gaz à effet de serre ont également un impact sur l'équilibre énergétique terre-atmosphère-soleil, mais avec des proportions contributives inférieures à celles du H_2O et CO_2. Conséquemment, l'équilibre climatique dans son ensemble est influencé par la concentration atmosphérique des différents GES. Ainsi, toute perturbation de l'environnement, qu'elle soit naturelle ou anthropique, et qui entraîne des émissions de gaz à effet de serre, affecte l'équilibre énergétique du système Terre-atmosphère-Soleil.

1.1.2 Cycle du carbone

Le cycle du carbone fait référence au transfert continu du carbone entre l'atmosphère, les océans, la terre (biosphère et sol) et les roches (lithosphère). Ce cycle est vital pour le climat et la vie. Il implique des échanges continus du CO_2 entre les composantes du système de la Terre via la photosynthèse (absorption du CO_2 par les plantes et le

phytoplancton), la respiration (libération de CO_2 par les êtres vivants), la décomposition, et des processus géologiques lents. Avant l'ère industrielle, ces échanges naturels maintenaient le cycle du carbone dans un quasi-équilibre à l'échelle globale [Lüthi *et al.*, 2008]. Cependant, les activités humaines en libérant massivement du CO_2 dans l'atmosphère perturbent cet équilibre et entraînent une augmentation de l'effet de serre anthropique. L'augmentation rapide des concentrations des gaz à effet de serre, tels que le CO_2 et le CH_4, résulte directement des émissions liées aux activités industrielles depuis le début de la révolution industrielle [Filonchyk *et al.*, 2024, Soeder, 2025, Chatterjee, 1999, Nunes, 2023, Ruddiman, 2003]. Cette augmentation est principalement attribuable au développement de nouvelles sources d'énergie fossiles, telles que le charbon, le pétrole et le gaz naturel. Une partie des gaz émis est absorbée par les océans et la biosphère terrestre, qui constituent les principaux puits naturels de carbone. Toutefois, leur capacité d'absorption est insuffisante pour compenser l'ensemble des émissions anthropiques, ce qui entraîne une accumulation progressive de ces gaz dans l'atmosphère. Dans ce contexte, le suivi des concentrations atmosphériques de ces gaz est devenu essentiel pour mieux comprendre les échanges de carbone entre les différents réservoirs terrestres et quantifier l'impact des activités humaines sur le climat. Pour améliorer les stratégies de surveillance, contraindre les modèles climatiques et anticiper les changements environnementaux futurs, il est indispensable de posséder une connaissance approfondie du cycle du carbone.
Le cycle du carbone tel que présenté par la figure 1.2 est caractérisé par les échanges de carbone entre les différents réservoirs du système terrestre, à savoir l'atmosphère, l'hydrosphère et la biosphère terrestre , ainsi que la lithosphère. L'unité de référence pour quantifier le cycle du carbone est la gigatonne de carbone (GtC), soit 10^{12} kg de carbone. En revanche, pour le dioxyde de carbone, la conversion s'effectue selon la relation 1GtC=3,667 $GtCO_2$ [IPCC, 2013a]. Il existe deux catégories de réservoirs du cycle du carbone. D'un côté, le cycle rapide fait intervenir des processus biologiques comme la photosynthèse et la décomposition. De l'autre, le cycle lent implique des transformations du carbone inorganique, comme l'altération des roches et des sols. Le cycle lent a un impact déterminant sur les changements climatiques sur une échelle de temps de millions d'années, tandis que le cycle rapide joue un rôle dans les changements climatiques à l'échelle décennale à millénaire [Hannah, 2015].

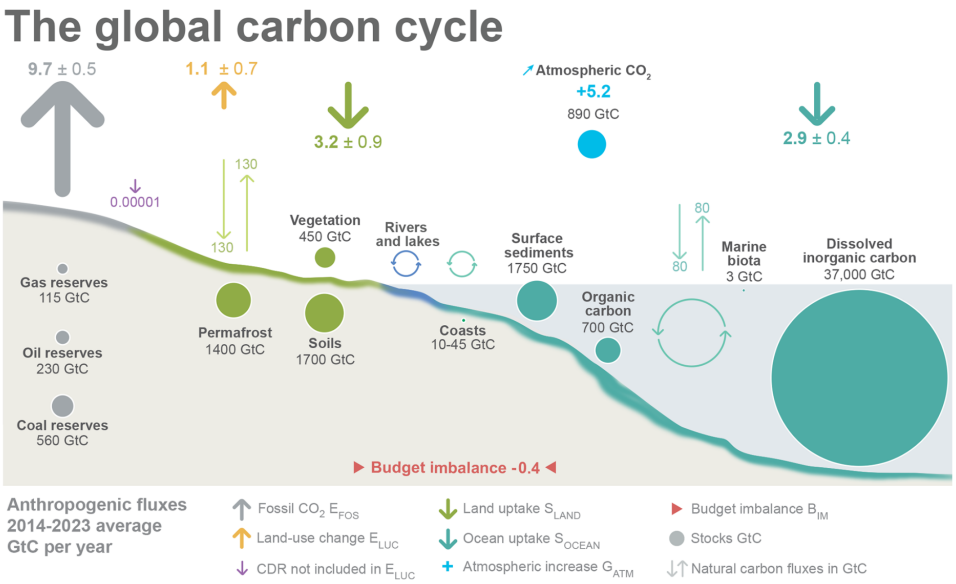


Figure 1.2: Schéma de la perturbation globale du cycle du carbone causée par les activités anthropiques en moyenne mondiale pour la décennie 2014-2023 [Friedlingstein *et al.*, 2025]

Les principaux réservoirs du cycle du carbone :

- **L'atmosphère** : Le réservoir qui rassemble tous les gaz qui enveloppent la Terre, il contient des gaz à effet de serre tels que sont le dioxyde de carbone (CO_2), le méthane (CH_4) et le protoxyde d'azote (N_2O). L'atmosphère échange en permanence avec les autres réservoirs, comme la biosphère (les plantes et les animaux), l'océan de surface, la lithosphère et les activités humaines. En 1750, la concentration atmosphérique de CO_2 était d'environ 278 ppm [Friedlingstein *et al.*, 2025]. Elle a atteint 300 ppm au début des années 1900, puis 350 ppm à la fin des années 1980, avec 419,13 ± 0,1 ppm en 2023 [Friedlingstein *et al.*, 2025]. La quantité de carbone atmosphérique a donc augmenté de 51 % entre 1750 et 2023, passant de 590 GtC à 890 GtC [Fässler, 2026, Rodrigues *et al.*, 2025]. Le taux d'augmentation actuel de CO_2 dans l'atmosphère est le plus rapide jamais enregistré depuis 8,8 millions d'années [Friedlingstein *et al.*, 2025].

- **L'océan** : la majeure partie du carbone présent sur Terre se trouve dans l'océan, sous différentes formes chimiques de dioxyde de carbone dissous et les ions bicarbonates HCO_3^-. L'absorption du CO_2 de l'atmosphère par la diffusion entre la surface de l'océan et sa surface, ainsi que le relâchement de ce gaz permettent à l'océan d'agir comme puits et sources de carbone. Au fil du temps, le puits océanique a connu une croissance parallèle à la hausse rapide des émissions causées par les activités humaines. Depuis 1850, l'océan a permis l'élimination de 26% des émissions anthropiques totales [Friedlingstein *et al.*, 2025]. De 1960 à 2023, le puits de CO_2 des océans a connu une augmentation significative, passant de $1{,}2 \pm 0{,}4$ GtC/an à $2{,}9 \pm 0{,}4$ GtC/an [Friedlingstein *et al.*, 2025]. Cette tendance s'inscrit dans une variabilité interannuelle de l'ordre de quelques dixièmes de gigatonnes de carbone par an [Friedlingstein *et al.*, 2025].

- **La biosphère terrestre** : il s'agit d'un réservoir qui regroupe l'ensemble des êtres vivants (végétaux, animaux et micro-organismes), de la matière organique morte présente dans la litière et le sol, ainsi que du carbone ancien présent dans les sols des terres humides et du pergélisol. Le CO_2 est absorbé depuis la basse atmosphère par la photosynthèse, puis recyclé dans les plantes et la litière, avant d'être à nouveau libéré dans l'atmosphère. Cette libération peut avoir lieu par la respiration autotrophe et hétérotrophe, ainsi que par d'autres processus, comme les incendies [IPCC, 2013b]. De 1960 à 1999, les émissions de CO_2 dues à la déforestation et aux changements d'usage des terres sont restées stables, autour de 1,5 GtC/an, mais depuis l'année 2000, ces émissions ont légèrement diminué, d'environ 0,2 GtC par décennie, pour arriver à environ 1,1 GtC/an entre 2014 et 2023 [Friedlingstein *et al.*, 2025] principalement en raison du ralentissement de la déforestation dans les régions tropicales du fait de la mise en place de politiques de protection des forêts et de la reforestation de plusieurs zones tempérées [Forster *et al.*, 2025].

1.1.3 Les gaz à effet de serre et le changement climatique : enjeux et mesures mondiaux

Le suivi continu des gaz à effet de serre (GES) dans l'atmosphère constitue un enjeu majeur pour notre société actuelle et les générations futures. Cette nécessité est renforcée par l'augmentation rapide des concentrations de GES depuis le milieu du 19e siècle du fait de l'utilisation croissante des combustibles fossiles pour l'industrie, les transports et la production d'énergie. Les émissions anthropiques de GES peuvent être directes, c'est-à-dire liées à l'utilisation directe de combustibles fossiles, ou indirectes, associées aux différentes étapes de production, de distribution et de consommation des biens et services [Long *et al.*, 2021]. Ces dernières années, l'augmentation des GES d'origine anthropique a renforcé l'effet de serre atmosphérique, entrainant un réchauffement supplémentaire et continu de la planète. Les conséquences de ce réchauffement sont diverses, notamment l'augmentation de la température à la surface du globe avec 1,1 °C de plus, en moyenne mondiale, entre 2011-2020 et 1850-1900 [IPCC, 2023b]. Ce changement climatique induit par l'augmentation continu des GES intensifie continuellement les phénomènes météorologiques extrêmes tels que les ouragans, les sécheresses, les inondations et les vagues de chaleur induisant des vulnérabilités multiformes considérables pour les écosystèmes, les économies et les sociétés [Xu *et al.*, 2024, Gakaev *et al.*, 2024]. Compte tenu les enjeux et implications considérables du réchauffement climatique, les estimations précises des émissions de GES sont d'une importance cruciale à la fois pour quantifier l'évolution de la concentration des GES au fil du temps mais aussi pour générer des données fiables pour l'élaboration des politiques d'adaptation au nouveau paradigme du changement climatique [La Notte *et al.*, 2018]. Les approches actuelles d'estimation quantitative des concentrations de GES incluent les méthodes de mesures *in situ*, les inventaires basés sur les facteurs d'activité, les mesures satellitaires et la modélisation climatique. Ces méthodes peuvent être scindeés en deux catégories : les méthodes ascendantes et descendantes [Erland *et al.*, 2022]. Les approches directes sont souvent effectuées au niveau national en utilisant les données sur la consommation d'énergie pour la comptabilisation des émissions directes de GES alors qu'à l'échelle mondiale, les observations satellitaires sont beaucoup plus utilisées à cet effet [Long *et al.*, 2021]. Pour les approches dites descendantes, celles-ci s'appuient sur les techniques d'inversion atmosphérique pour estimer quantitativement le

flux et la concentration des GES en milieu urbain [Moore et Jacobson, 2015]. En règle générale, chacune des méthodes de comptabilisation des émissions de GES offrent un certain avantage et des limites en fonction de l'échelle spatiale et temporelle. Les mesures *in situ* des GES sont plus précises mais présentent des limites liées à leurs faibles couvertures spatiales et temporelles [Bastviken *et al.*, 2022]. Les inventaires par secteur des émissions de GES présentent souvent des incertitudes liées aux estimations des modèles et ne fournissent pas une perspective globale [Bruhwiler *et al.*, 2021]. En revanche, le suivi des GES par satellites offre une perspective globale et continue de la concentration des GES [Buchwitz *et al.*, 2013].
Bien que ces observations spatiales soient moins précises lorsqu'on les compare individuellement aux mesures effectuées depuis la surface, les observations spatiales présentent des outils précieux pour la surveillance des concentrations des GES à une échelle globale, avec environ 300 000 estimations par jour, comme l'illustre l'exemple de l'instrument IASI [Membrive, 2016]. Une amélioration continue des mesures de la télédétection permet de renforcer la fiabilité des mesures à grande échelle et remédier à la sous-estimation des inventaires d'émissions des modèles climatiques à l'échelle nationale [Erland *et al.*, 2022]. Dans cette perspective, en 2015, la Commission européenne a mandaté l'unité Copernicus de la direction générale du Marché intérieur, de l'Industrie, de l'Entrepreneuriat et des PME d'élaborer un rapport d'expertise qui devait définir les objectifs d'un système d'observation opérationnel européen permettant de surveiller les émissions de CO_2 fossile. A court terme avant 2025, plusieurs objectifs en matière de mission carbone ont été fixés, dont celui de fournir des concentrations de CO_2 à haute résolution avec une précision de 1 ppm pour des mesures individuelles et des erreurs systématiques inférieures à 0.5ppm [Ciais *et al.*, 2015].

1.2 Mesure des gaz à effet de serre

Il existe deux approches complémentaires pour le suivi des gaz à effet de serre (GES). La première méthode implique des mesures directes *in situ*, c'est-à-dire sur le terrain. Ces mesures consistent à déterminer la concentration locale des GES par un contact direct avec le milieu atmosphérique. Généralement, ce type de mesure est limité à

une gamme d'altitudes restreinte. Il permet d'obtenir des données précises et ponctuelles sur la composition de l'air.
La seconde approche utilise des mesures à distance réalisées par télédétection. Cette technique permet de détecter et d'interpréter, sans contact direct, les caractéristiques physiques et/ou spectrales des surfaces ou des masses atmosphériques à différentes échelles spatiales et temporelles. La télédétection consiste à analyser les propriétés de réflexion, d'absorption et d'émission des radiations électromagnétiques. Elle permet d'en extraire les informations sur la nature, les propriétés physico-chimiques et l'état des éléments observés. Les techniques de télédétection fournissent des informations essentielles pour analyser le système terrestre et ses composantes.
Pour évaluer la qualité et l'utilité pratique des données de télédétection, on se base sur différents types de résolution. On parle de résolution spatiale, de résolution spectrale, de résolution radiométrique et de résolution temporelle. Selon la source d'énergie utilisé pour illuminer la cible, il existe deux types d'instruments de télédétection : les capteurs passifs et les capteurs actifs.

1.2.1 Télédétection active et passive

La télédétection active est une technique qui repose sur l'utilisation des capteurs produisant un rayonnement artificiel. Ce rayonnement est généré par la propre énergie du capteur et permet d'illuminer la cible. Le rayonnement réfléchi par la cible est alors perçu par le capteur, qui le mesure. Les capteurs actifs ont l'avantage de pouvoir prendre des mesures indépendamment du rayonnement solaire. C'est à dire qui ils peuvent le faire à n'importe quel moment de la journée ou de la saison, le jour comme la nuit. En outre, leur consommation en énergie est supérieure à celle des capteurs passifs, car ils doivent produire une grande quantité d'énergie pour pouvoir illuminer efficacement une cible. La figure 1.3 suivante présente le principe du fonctionnement de la télédétection active.

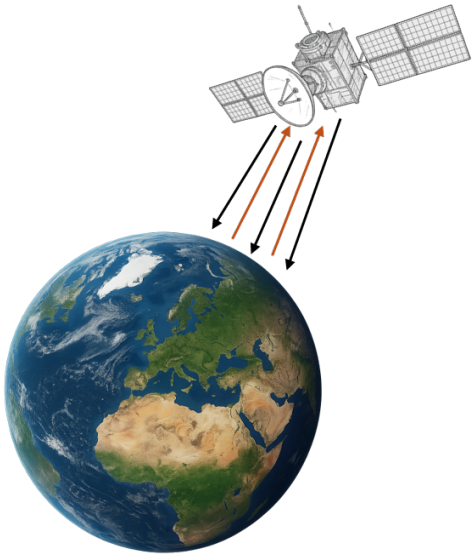


Figure 1.3: Schéma descriptif de télédétection active

Le lidar et le radar sont deux exemples de télédétecteurs actifs. Parmi eux les lidars de télédétection active pour le suivi des GES sont, entre autres:

- Lidar spatial *Integrated Path Differential Absorption* (**IPDA**) sur le satellite chinois DQ-1, lancé en 2022, est le premier lidar de télédétection active au monde pour des mesures globales de la concentration de la colonne de CO_2. C'est une technique de la télédétection active avancée dédiée aux mesures de la concentration de gaz atmosphérique (CO_2 et CH_4)[Zhang *et al.*, 2025]. Son principe consiste à envoyer des impulsions laser vers la surface de la Terre et analyse la lumière rétrodiffusée en comparant l'absorption des deux longueurs d'onde (l'une fortement absorbée, l'autre servant de référence) pour déterminer la colonne totale de gaz entre le capteur et le sol. Ce qui lui permet de fournir de données globales précises sur la concentration des gaz à effet de serre [Patiño Rosas et Cézard, 2024]. Cette technologie a été validée par rapport aux observations du réseau TCCON et comble le manque d'observations de XCO_2 aux hautes latitudes et de nuit[Zhang *et al.*, 2025].

- Le *Differential Absorption Lidar* (**DIAL**) est un lidar à absorption différentielle mobile conçu par l'Institut d'optique atmosphérique de la branche sibérienne de l'Académie des sciences de Russie (IAO SB RAS) pour le sondage du méthane atmosphérique terrestre et aéroporté dans la région infrarouge moyen. Il permet l'analyse des gaz (notamment du méthane) dans l'atmosphère [Yakovlev *et al.*, 2022].

La télédétection passive (Figure 1.4) utilise des sources de rayonnement naturel, principalement le soleil. Elle repose sur l'interaction du rayonnement avec les espèces présentes dans l'atmosphère et la surface de la terre. Elle permet ainsi de mesurer les propriétés physiques et chimiques de la couche atmosphérique et des éléments à la surface de la terre. À la différence de la télédétection active, la télédétection passive ne permet pas les mesures la nuit car elle dépend du rayonnement solaire, ce qui donne lieu à des observations non continues. Ce type de télédétection se base sur deux sources de rayonnement naturel la lumière solaire réfléchie et les rayonnements infrarouges émis naturellement par la Terre.

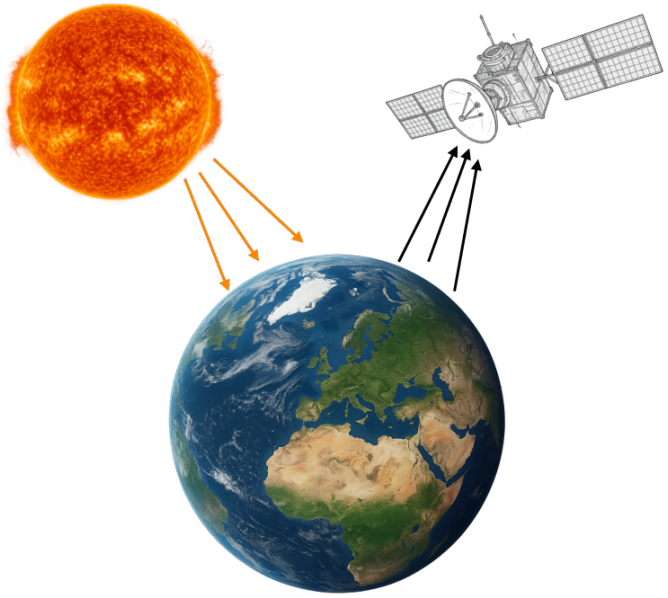


Figure 1.4: Schéma descriptif de télédétection passive

La télédétection passive peut être classée en trois types :

- **Spatial** : plusieurs satellites mesurent les GES par télédétection passive (comme OCO-2 premier satellite de la NASA qui vise la fraction molaire de CO_2, XCO_2). Ils fournissent des données sur les sources et puits de CO_2 à l'échelle régionale, avec un spectromètre à réseau imageur (3 canaux) qui analyse la lumière solaire réfléchie dans les bandes de dioxyde de carbone (1,61 et 2,06 microns) [Crisp *et al.*, 2017]. Le satellite GOSAT, mis en orbite, est équipé d'un capteur spatial (TANSO-FTS) qui permet de mesurer les gaz à effet de serre. Ces mesures sont effectuées à partir de spectres à haute résolution aux longueurs d'onde SWIR [Zhou *et al.*, 2016].

- **Aéroportés** : en 2021 et 2022, l'organisation Carbon Mapper a fourni plus de 250 mesures du taux d'émission de CH_4 à partir du spectromètre imageur *Global Airborne Observatory* (GAO) embarqué à bord de ses avions, afin de valider plusieurs technologies de détection du méthane au sol, dans l'air et par satellite. Les algorithmes de récupération des émissions de CH_4 ont été testés et comparés à l'aide de ces données [Ayasse *et al.*, 2023].

- **Réseaux et instruments aux sol** : la télédétection passive depuis le sol nécessite la mise en place de plusieurs réseaux infrarouges à transformée de Fourier (FTIR). Parmi eux, on peut citer le réseau à haute résolution d'observation de colonne totale de carbone TCCON (qui sera détaillé dans la section suivante) et le groupe de travail infrarouge du réseau pour la détection des changements de composition atmosphérique (NDACC-IRWG). Ces réseaux sont essentiels pour la validation des satellites qui mesurent les gaz à effet de serre (GES tels que le CO_2, le CH_4 et le N_2O) et les gaz polluants (CO).

1.2.2 Approches d'observation et de suivi des gaz à effet de serre

Après avoir présenté le principe et les différentes formes de la télédétection, nous allons maintenant présenter les principaux types d'observations des gaz à effet de serre. Ces observations reposent sur trois approches complémentaires : les mesures *in situ*,

les inventaires d'émissions et les observations par télédétection. Ces méthodologies d'observation sont fondamentales pour saisir les enjeux climatiques actuels et futurs, car elles permettent un meilleur suivi de la concentration des gaz à effet de serre dans l'atmosphère. Les mesures *in situ* constituent la première catégorie. Celles-ci mesurent directement la concentration du gaz. En parallèle, les observations par télédétection reposent notamment sur les satellites. Ils offrent un complément nécessaire, avec des incertitudes plus élevées à l'échelle locale que celle des observations *in situ*, mais avec une densité très largement supérieure.
Les principaux satellites dédiés à l'observation et à la surveillance des gaz à effet de serre sont les suivants :

- *Greenhouse Gases Observing Satellite* (**GOSAT**) : lancé en 2009 par l'Agence d'exploration aérospatiale japonaise (JAXA). Il s'agit du premier satellite spécialisé dans l'observation des gaz à effet de serre, tels que le dioxyde de carbone (CO_2) et le méthane (CH_4). En octobre 2018, GOSAT-2 a été lancé avec une nouvelle bande spectrale d'observation de monoxyde de carbone (CO) et des performances supérieures, notamment un rapport signal-sur-bruit (SNR) plus élevé dans les bandes SWIR et TIR de son capteur TANSO-FTS-2, ce qui a permis d'améliorer la précision de l'analyse des concentrations de GES et d'acquérir des données dans les régions de hautes latitudes de l'hémisphère Nord en hiver. Grâce à une caméra embarquée de pointage intelligent du TANSO-FTS-2, les données sont de meilleure qualité, car le capteur peut éviter les zones nuageuses et ne conserver que les données les plus précises [Imasu *et al.*, 2023].

- *Orbiting Carbon Observatory* (**OCO**) : est une série de satellites de la NASA conçue pour mesurer le CO2 à l'échelle mondiale pour comprendre le changement climatique. La première mission (OCO) ayant échoué au lancement en 2009, ce qui a conduit à son successeur réussi, OCO-2, a été lancé en 2014. Cette mission visait essentiellement à comprendre comment l'augmentation de la concentration du CO_2 atmosphérique modifie la productivité de la biosphère et l'absorption de CO_2 par les océans. Elle fournit des données sur la colonne totale de dioxyde de carbone (XCO_2) et la fluorescence de la chlorophylle des plantes terrestres [Eldering *et al.*, 2017]. Le 10 mai 2019, un nouveau système de pointage (PMA) a été combiné au spectromètre

de rechange de la mission OCO-2 par OCO-3. Grâce à ce nouveau système, des données peuvent être collectées dans tous les modes scientifiques, notamment le mode nadir (ND), le mode réflexion solaire (GL), le mode cible (TG) et le nouveau mode de cartographie instantanée de zones (SAM). Ce dernier permet d'obtenir des images 2D à haute résolution (environ 85 × 85 km) de points chauds d'émission comme les villes à l'échelle locale [Taylor *et al.*, 2020].

Parmi les satellites de suivi des gaz à effet de serre qui ont été développés et lancés par l'Europe, on trouve :

- *The Sentinel-5 Precursor* (**Sentinel-5P**) : l'Agence spatiale européenne (ESA) a développé le Sentinel-5P dans le but de combler certains passages de la mission ENVISAT au lancement de Sentinel-5. Le programme Copernicus de la Commission européenne (CE) et de l'Agence spatiale européenne (ESA) a donné naissance à un spectromètre imageur à visée nadirale du Tropospheric Monitoring Instrument (TROPOMI). Ce capteur a été utilisé pour la collecte de données destinées à à un large éventail de disciplines telles que la cartographie de la concentration de GES, la surveillance environnementale et la modélisation de la pollution atmosphérique etc. Parmi les gaz atmosphériques susceptibles d'être évalués avec une précision raisonnable, nous pouvons citer l'ozone (O_3), le dioxyde de soufre (SO_2), le dioxyde d'azote (NO_2), le monoxyde de carbone (CO) ainsi que le méthane (CH_4). Le capteur fournit une couverture mondiale quotidienne avec une résolution spatiale d'environ 5,5 × 3,5 km. Grâce à son cycle de passage inférieur à une journée, il offre une haute résolution temporelle permettant ainsi la cartographie et la surveillance quasi en temps réel des concentrations de polluants atmosphériques [Reshi *et al.*, 2024].

Dans le cadre de la COP21 qui s'est tenue à Paris en 2015, la France a joué un rôle essentiel dans les négociations sur la recherche scientifique. Lors de cette réunion d'envergure mondiale, un accord général a été conclu sur l'importance d'intensifier les efforts mondiaux pour un suivi global et continu des émissions de dioxyde de carbone. Cette initiative a été prise à travers la mise en œuvre d'un nouveau satellite nommé MicroCarb, conçu spécifiquement pour cet usage :

- **MicroCarb**: lancé en juillet 2025 sur une orbite circulaire héliosynchrone à 650 km d'altitude par le centre national d'étude spatial (CNES) en partenariat avec le centre d'étude aérospatiale (CEA), Météo France, les universités et aussi d'autres partenaires européens comme l'agence spatiale européenne (ESA). Il a été embarqué sur une plateforme de microsatellite Myriade développée par le CNES. L'objectif principal est de fournir à la communauté scientifique un suivi continu des sources et des puits du principal gaz à effet de serre le CO_2, grâce à un sondage passif opérant dans quatre bandes spectrales (0.76 et 1.27 μm pour l'O_2, 1.6 and 2 μm pour le CO_2). Ce satellite a pris le relais de OCO-2 avec une grande précision de l'ordre de 1 ppm, et sur un pixel de base rectangulaire de 4,5 km par 9 km.

Les données obtenues par satellite sont fournies à grande échelle spatiale et temporelle. Toutefois, elles ne couvrent pas toujours l'ensemble de la planète. En effet, la réflexion du rayonnement solaire est inefficace dans certaines zones comme l'hémisphère nord en hiver. Cela rend les données non fiables en présence de nuages ou aérosols épais. Par conséquent, les mesures peuvent contraindre de manière inégale le cycle saisonnier des flux. Par ailleurs, les observations au limbe fournissent des informations sur la concentration des GES dans la haute atmosphère, mais ne permettent pas de mesurer les flux de surface [Chevallier *et al.*, 2017]. De plus, les caractéristiques de la surface telles que les forêts tropicales humides, les surfaces enneigées et les déserts peuvent également influer sur les observations satellitaires en fonction de l'albédo [Li *et al.*, 2025]. Pour déterminer précisément les éventuels biais ou les incertitudes susceptibles d'affecter les mesures satellitaires, une évaluation de ces dernières est indispensable pour répondre aux exigences d'applications opérationnelles. Cette évaluation passe par la calibration et la validation des données par des mesures *in situ* au sol. La première approche pour l'évaluation des estimations réalisées depuis l'espace consiste à utiliser des spectromètres à transformée de Fourier (FTS) notamment :

- *TotalCarbon Column Observing Network* (**TCCON**) : fondé en 2004, ce réseau mondial de spectromètres FTS est la principale source de calibration et de validation des mesures satellitaires. Il comprend plus de 30 sites (figure 1.5) exploités par diverses institutions à travers le monde. Il est également un outil fournissant des informations sur le cycle du carbone. Sa capacité de mesure du dioxyde de carbone

est d'environ 0.25% (1 ppm)(1- σ)par rapport aux mesures satellitaires, et il peut atteindre 0.1% dans des conditions de ciel dégagé. Lors de la première campagne de calibration d'un site TCCON, le référencement des mesures de ce type de station a été réalisé à l'aide des profils d'avions et de ballons au-dessus des stations FTS [Messerschmidt *et al.*, 2011].

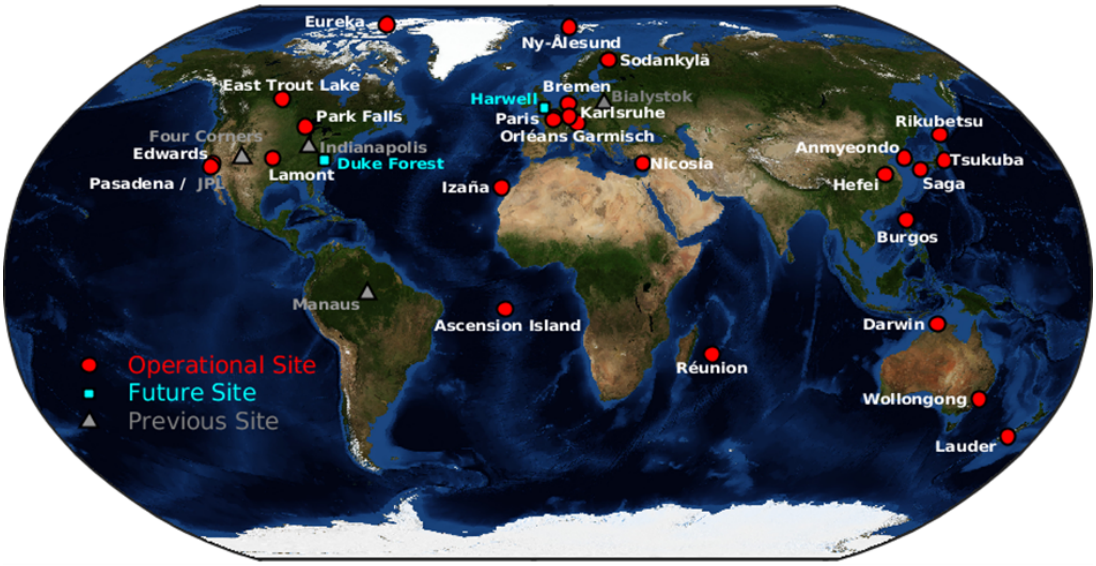


Figure 1.5: Carte mondiale regroupant les différentes stations de mesures au sol du réseau TCCON (`https://tccon-wiki.caltech.edu`)

- *Network for the Detection of atmospheric Composition Change* (**NDACC**): a commencé ses opérations en janvier 1991 sous le nom de réseau de détection des changements stratosphériques (NDSC). Ce réseau international est composé de plus de 110 stations de recherche au sol. Celles-ci sont réparties dans le monde entier. Il comprend aussi plus de 160 instruments ont pour objectif de permettre l'observation et la compréhension de l'état physique et chimique de la stratosphère et de la troposphère. Ce groupe est composé de plusieurs instruments, notamment des spectromètres Dobson et Brewer qui servent à la mesure de l'ozone total en colonne. Il comprend également plus de trente instruments lidar qui surveillent l'ozone atmosphérique, la température, les aérosols, la vapeur d'eau et les nuages stratosphérique polaires. Les radiomètres à micro-ondes sont utilisés pour mesurer les profils verticaux d'O_3, H_2O et CIO dans la stratosphère et la mésosphère. Des

ballons et des spectroradiomètres UV sont aussi mis à profit pour mieux comprendre les variations géographiques et temporelles de l'irradiance solaire UV à la surface de Terre et pour valider les observations satellitaires d'UV. Enfin, vingt spectromètres infrarouges à transformée de Fourier (FTIR) servent à mesurer la concentration de plusieurs gaz traces (O_3, HCl, HF, $ClONO_2$, HNO_3, N_2O, CH_4, CO, C_2H_6, HCN, H_2CO et OCS) dans l'atmosphère par la méthode d'estimation optimale [for the Detection of Atmospheric Composition Change (NDACC),].

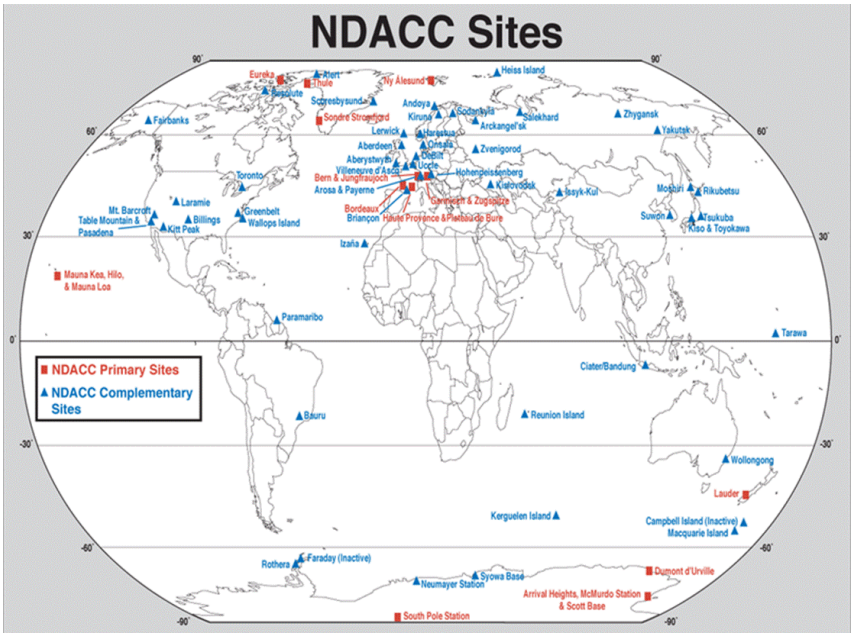


Figure 1.6: Carte mondiale regroupant les différentes stations de mesures au sol du réseau NDACC (`https://tccon-wiki.caltech.edu`)

- *Collaborative Carbon Column Observing Network* (**COCCON**) : est l'un des dispositifs majeurs de surveillance au sol des gaz à effet de serre mis en place pour compléter les stations TCCON existantes [Alberti *et al.*, 2024]. Ce dispositif est dédié à la quantification des principaux constituants atmosphériques grâce au spectromètre FTIR portable EM27/SUN qui est également l'instrument utilisé dans le cadre de la présente étude. Une description détaillée de ce réseau et de cet instrument est présentée dans la section 2.2.2 du chapitre 2.

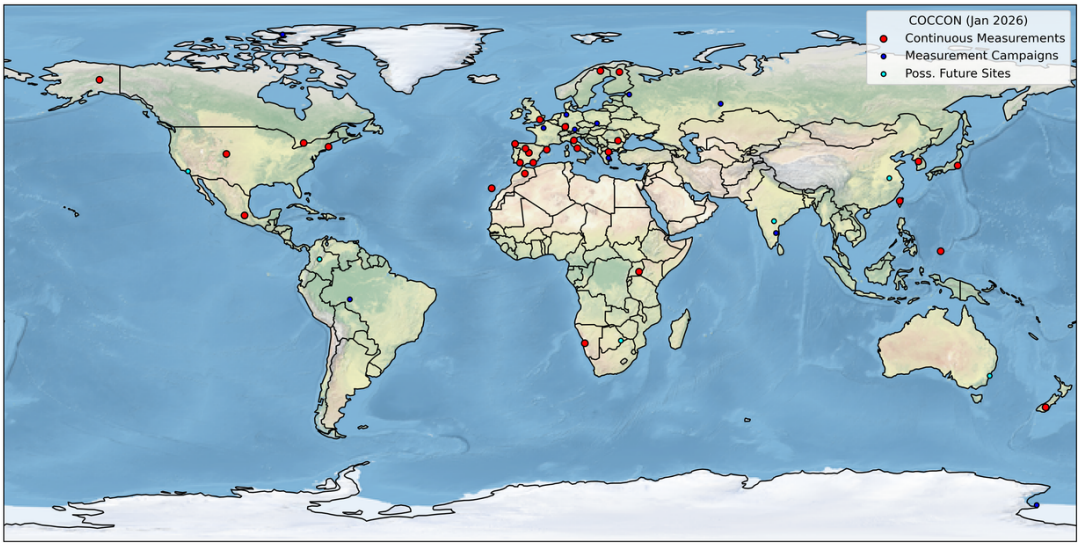


Figure 1.7: Carte des différents sites d'exploitation du réseau COCCON dans le monde, basée sur des mesures réelles (points rouges), des campagnes de mesure (points bleus) ou des mesures prévues à l'avenir (points cyan). (`https://www.coccon.kit.edu/26.php`)

Conclusion du chapitre

Ce chapitre a permis de poser le cadre général de cette thèse. Les principaux enjeux liés au changement climatique et à l'augmentation des gaz à effet de serre ont été présentés, ainsi que les méthodes utilisées à l'échelle mondiale pour les quantifier. Les notions fondamentales relatives au cycle du carbone et au rôle des gaz à effet de serre ont d'abord été rappelées, puis les différentes approches d'observation, qu'elles soient satellitaires ou *in situ*, ont été décrites. Enfin, un aperçu des technologies actuellement utilisables a été donné. Il s'agit des technologies actives et passives, ainsi que des instruments au sol. Dans ce contexte, le but du chapitre suivant est de vous présenter la spectroscopie infrarouge et la physique théorique qui la sous-tend. Cet outil est essentiel pour la mesure précise de la concentrations des gaz atmosphériques.

Chapitre **2**

Spectroscopie FTIR solaire et description de l'instrument EM27/SUN

La télédétection solaire par spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) est une technique largement utilisée pour le suivi des constituants atmosphériques, notamment des gaz à effet de serre. Cette méthode permet d'identifier et de quantifier différents éléments grâce à leurs spectres d'absorption. Pour ce faire, il faut analyser le rayonnement solaire après sa traversée de l'atmosphère. Les données collectées sous forme de colonnes intégrées constituent une source d'informations essentielle pour étudier la variabilité spatiale et temporelle de la composition atmosphérique. Elles permettent également de valider les modèles de transport chimique et les observations satellitaires. Les principes physiques et instrumentaux essentiels à la compréhension des mesures FTIR solaires utilisées dans le présent travail sont abordés dans ce chapitre. Il décrit ensuite les caractéristiques de l'instrument EM27/SUN. Enfin, il présente le réseau COCCON et l'algorithme PROFFAST.

2.1 Principe physique de la spectroscopie FTIR solaire

2.1.1 Rayonnement solaire : nature et spectre

À 149,6 millions de kilomètres de la Terre, le Soleil est l'étoile la plus proche de notre planète. Le processus de fusion nucléaire entre les atomes d'hydrogène, qui aboutit à la production d'hélium, est à l'origine de la libération de protons, de neutrinos et de photons dans cette étoile. Cette réaction nucléaire entraîne une libération d'énergie issue d'un processus de conversion de masse en énergie, se manifestant sous la forme d'un rayonnement électromagnétique. L'énergie émise par la surface du Soleil est proche de celle d'un corps noir porté à une température légèrement inférieure à 6100 kelvins. Ce rayonnement se caractérise par un spectre étendu de longueurs d'onde, allant des ondes radio aux rayons gamma (Figure 2.1). Cette large plage spectrale en fait une source lumineuse idéale pour une grande diversité d'applications.

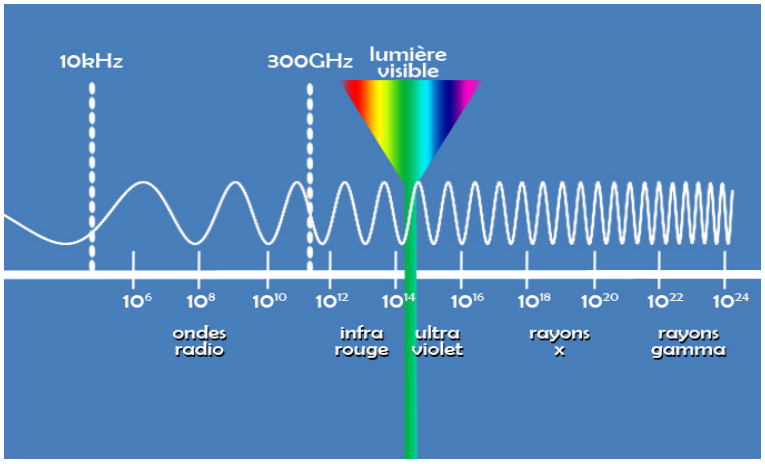


Figure 2.1: Un spectre électromagnétique qui s'étend des ondes hertziennes aux rayons gamma, en passant par les ondes radio, l'infrarouge, le visible, l'ultraviolet, les rayons X (https://www.cea.fr)

L'absorption du rayonnement solaire est grandement influencée par la composition chimique des différentes couches atmosphériques [Fabry et Buisson, 1913, Wang *et al.*, 2023,

Horvath, 1993]. Cette absorption fluctue en fonction de la hauteur, en raison des disparités de densité et de composition des constituants de l'atmosphère [Keilhauer *et al.*, 2004, Prölss, 2011].Lors de sa traversée, la lumière interagit avec les particules en suspension : ces interactions entre la lumière et la matière peuvent provoquer un changement de sa direction (diffusion) et/ou son absorption partielle ou complète. L'ozone absorbe la totalité du rayonnement ultraviolet inférieur à 0,29 μm ($\tilde{\nu} \simeq 34500\,\mathrm{cm}^{-1}$), avec une forte absorption de l'oxygène autour de 0,75 μm ($\tilde{\nu} \simeq 13300\,\mathrm{cm}^{-1}$). Les autres absorptions sont dues à la présence de gaz à effet de serre comme l'H_2O et le CO_2, qui couvrent des bandes plus larges.

Les longueurs d'onde qui sont peu ou pas absorbées sont appelées « fenêtres atmosphériques». Ces longueurs d'onde qui ne sont pas absorbées par les constituants de l'atmosphère constituent les fenêtres du spectre du rayonnement électromagnétique qui peuvent être détectées par des capteurs spatiaux ou au sol pour l'observation de notre planète.

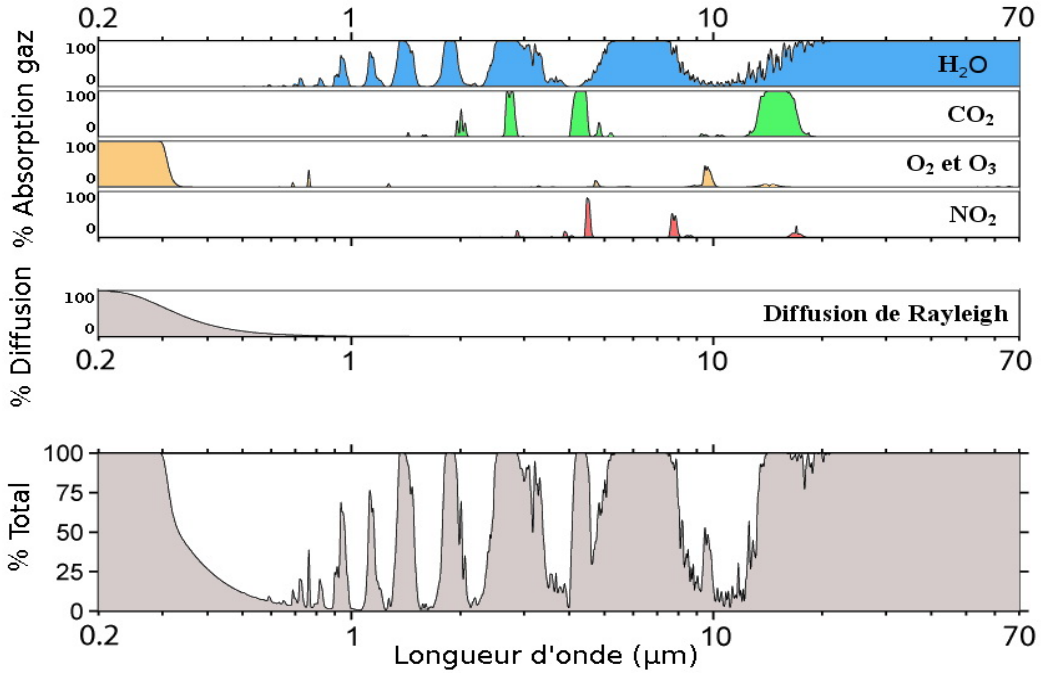


Figure 2.2: Les bandes d'absorption des principales molécules entrant dans la composition de l'atmosphère

2.1.2 Interaction rayonnement-matière

L'interaction entre un rayonnement électromagnétique et des atomes ou des molécules peut provoquer des phénomènes de diffusion ou d'absorption. Ainsi, ce rayonnement peut être dévié de sa trajectoire ou bien être absorbé, en partie ou en totalité. L'absorption correspond à la transition des atomes ou des molécules de leur état fondamental vers un état excité. Le type d'interaction et ses conséquences sont déterminés par la nature du rayonnement électromagnétique. Par exemple, la zone UV (Figure 2.1), à haute énergie, induit principalement des transitions électroniques. Il s'agit de transitions entre des niveaux d'énergie électronique distincts d'atomes ou de molécules, sans contribution significative des niveaux vibrationnels, qui sont principalement associées aux domaines infrarouge. En revanche, dans le cas de l'infrarouge (IR), l'énergie est plus faible. On observe alors principalement des transitions de type vibrationnel et rotationnel. Dans le domaine des micro-ondes et de l'IR lointain, les niveaux vibrationnels et électroniques ne sont pas atteints par les molécules qui restent en mode rotationnel.
La lumière infrarouge se répartit en trois régions : le proche infrarouge, le moyen infrarouge et l'infrarouge lointain. Notre étude se concentre donc principalement sur le domaine de l'infrarouge, et plus particulièrement sur le proche infrarouge (NIR), compris entre 4 000 et 12 800 cm^{-1}.
L'interaction entre la lumière et la matière a mis en évidencer que l'onde électromagnétique a une nature corpusculaire. En outre, toute forme de radiation possède une énergie caractéristique (énergie d'un photon) déterminée par la relation de Planck-Einstein :

$$\boldsymbol{E = h\nu = \frac{hc}{\lambda}} \tag{2.1}$$

Avec h la constante de Planck, c la vitesse de la lumière, ν la fréquence et λ la longueur d'onde. Chaque molécule possède des noyaux et des électrons. La masse des noyaux est beaucoup plus importante que celle des électrons. On peut donc écrire la dynamique électronique indépendamment des noyaux, dans le cadre de l'approximation de Born-Oppenheimer. On suppose alors ces derniers immobiles, car leur mouvement est très lent par comparaison avec les déplacements des électrons. L'énergie totale d'une molécule peut donc être séparée en trois types d'énergie : l'énergie de translation uniforme d'ensemble

de la molécule E_t, dont l'énergie n'est pas quantifiée, et l'énergie électronique des électrons E_e, ainsi que deux composantes d'énergie pour les noyaux : l'énergie vibrationnelle E_v et l'énergie rotationnelle E_r. L'énergie totale peut donc être exprimée comme suit :

$$\boldsymbol{E_T = E_t + E_e + E_v + E_r} \tag{2.2}$$

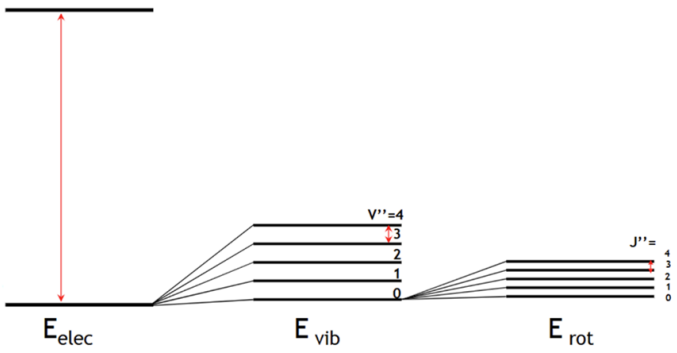


Figure 2.3: Schéma qualitatif des niveaux d'énergie électroniques, vibrationnels et rotationnels d'une molécule (non à l'échelle)

Spectroscopie de type absorption IR et de nature ro-vibrationnelle

Dans une première approximation, le mouvement vibrationnel d'une molécule peut être décrit par un oscillateur harmonique. Dans ce modèle, les noyaux oscillent autour de leur position d'équilibre, et les niveaux vibrationnels quantifiés, tels que $v = 0$ et $v = 1$, correspondent aux états d'énergie successifs associés à cette oscillation. Chaque niveau de vibration est constitué d'un ensemble de niveaux rotationnels caractérisés par le nombre quantique rotationnel. Dans le domaine infrarouge, l'observation des transitions ro-vibrationnelles est rendue possible par la combinaison de transitions vibrationnelles et rotationnelles.
L'énergie totale d'une molécule diatomique s'obtient en sommant l'énergie de rotation et l'énergie vibrationnelle, selon l'équation suivante :

$$\boldsymbol{E_{\mathrm{tot}}(v, J) = E_{\mathrm{v}}(v) + E_{\mathrm{rot}}(v, J)} \tag{2.3}$$

Avec v le niveau vibrationnel quantifié et J le nombre quantique rotationnel. L'énergie vibrationnelle s'exprime par celle d'un oscillateur harmonique. Pour prendre en compte l'anharmonicité réelle du potentiel interatomique, on ajoute un terme correctif. L'expression est alors la suivante :

$$\boldsymbol{E}_{\text{vib}}(\boldsymbol{v}) = \boldsymbol{h\nu_e}\left(\boldsymbol{v} + \tfrac{\mathbf{1}}{\mathbf{2}}\right) - \boldsymbol{h\nu_e x_e}\left(\boldsymbol{v} + \tfrac{\mathbf{1}}{\mathbf{2}}\right)^{\mathbf{2}} \tag{2.4}$$

Avec ν_e, la fréquence vibrationnelle fondamentale ; x_e, la constante d'anharmonicité; et v, le nombre quantique vibrationnel. L'énergie rotationnelle s'exprime en deux termes. Une partie correspond à l'énergie cinétique de rotation d'une molécule. Cette dernière tourne autour de son centre de masse. L'autre terme corrige la distorsion centrifuge. Cela permet de réduire l'énergie réelle. Il prend également en compte l'effet de la rotation rapide. Cet effet étire la liaison. L'intégralité de l'énergie s'exprime alors comme suit :

$$\boldsymbol{E}_{\text{rot}} = \boldsymbol{B_v J(J+1)} - \boldsymbol{D_v}[\boldsymbol{J(J+1)}]^{\mathbf{2}} \tag{2.5}$$

D_v représente la constante de distorsion centrifuge et $B_v = \dfrac{h}{8\pi^2 c I_v}$, où I_v est le moment d'inertie pour le niveau vibrationnel v.

Dans le cas simple, le processus se déroule comme suit : lorsque la molécule absorbe un photon dans l'infrarouge, la transition vibrationnelle de v à v+1 est accompagnée de $J = \pm 1$ ou nulle selon les cas suivants :

- Si $\Delta J = +1$, les raies sont à droite de la fréquence centrale $J' = J + 1$. On appelle cela la branche R.

- Si $\Delta J = -1$, les raies sont à gauche de la fréquence centrale $J' = J - 1$. On appelle cela la branche P.

- Si $\Delta J = 0$, les raies sont proches du centre $J' = J$. On appelle cela branche Q. Pour les molécules diatomiques strictement linéaires, la branche Q ($\Delta J = 0$) est interdite par symétrie dans les transitions ro-vibrationnelles infrarouges. En revanche, les

molécules polyatomiques présentent fréquemment une branche Q, et des raies faibles peuvent également apparaître dans certains cas particuliers pour les diatomiques en raison d'effets de couplage ou d'anharmonicité.

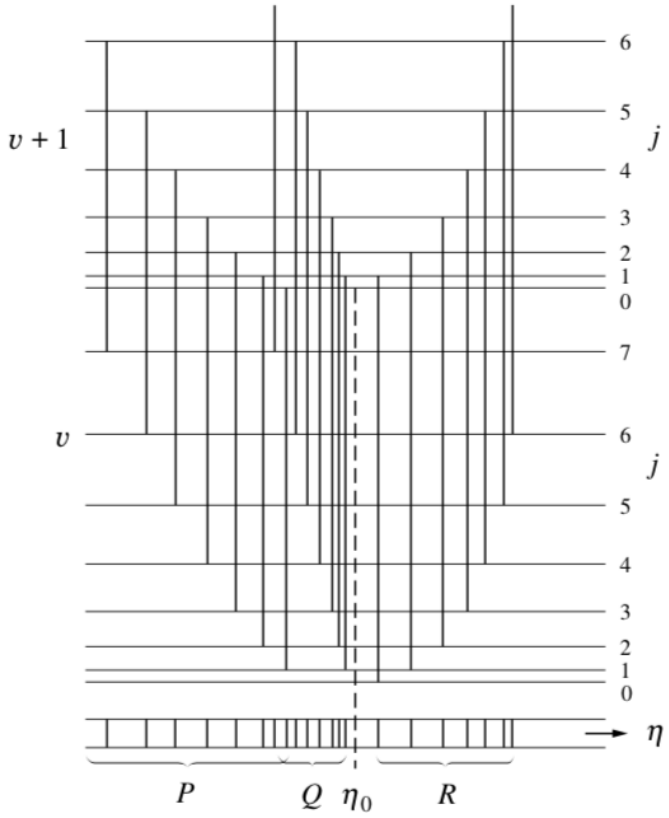


Figure 2.4: Schéma des branches P ($\Delta J = -1$), Q ($\Delta J = 0$) et R ($\Delta J = +1$) dans une transition ro-vibrationnelle entre les niveaux v et $v + 1$. Les positions relatives des raies résultent des variations du nombre quantique rotationnel J [Brchnelova, 2020]

Les deux formules de l'énergie rotationnelle et vibrationnelle changent pour une molécule polyatomique. L'énergie vibrationnelle s'écrit alors comme suit :

$$\boldsymbol{E}_{\text{vib}} = \sum_{\boldsymbol{i=1}}^{\boldsymbol{f}} \boldsymbol{h\vartheta_i} \left(\boldsymbol{v_i} + \tfrac{\mathbf{1}}{\mathbf{2}} \right) \tag{2.6}$$

Dans cette équation, ϑ_i représente la fréquence du mode i. Cette fréquence dépend de la

rigidité et des masses. v_i est le nombre quantique du mode i. f est le nombre de modes normaux de vibration d'une molécule ou nombre de degrés de liberté vibrationnels. Pour les molécules non linéaires, f est égal à $3N-6$ (N représente le nombre total d'atomes constituant la molécule). Pour les molécules linéaires, f est égal à $3N-5$. L'expression de l'énergie de rotation pour une molécule polyatomique est la suivante :

$$\boldsymbol{E}_{\text{rot}} = \boldsymbol{A}\boldsymbol{J}_{\boldsymbol{x}}^{\boldsymbol{2}} + \boldsymbol{B}\boldsymbol{J}_{\boldsymbol{y}}^{\boldsymbol{2}} + \boldsymbol{C}\boldsymbol{J}_{\boldsymbol{z}}^{\boldsymbol{2}} \tag{2.7}$$

A, B et C sont les constantes de rotation $\dfrac{h}{8\pi^2 cI}$, avec le moment d'inertie I qui est le seul paramètre qui change selon l'axe x, y ou z, respectivement pour A, B et C. J_x, J_y et J_z sont les projections du moment angulaire J sur les axes x, y et z.

- À titre d'exemple, considérons deux sortes de molécules polyatomiques :

    - La molécule de dioxyde de carbone (CO_2) a une structure linéaire :

Ainsi, la rotation autour de l'axe moléculaire est non définie (moment d'inertie nul), puisqu'elle ne modifie pas la structure de la molécule, qui demeure inchangée.
Ainsi, le total des modes normaux de vibration est $f = 3N-5$. Pour le CO_2, cela se traduit par quatre modes normaux de vibration (Figure 2.5).

    - La molécule de l'eau (H_2O), une molécule non linéaire :

La Figure 2.6 représente les trois fréquences de vibration de cette molécule, chacune associée à un mode normal de vibration. Le nombre de degrés de liberté vibrationnels de la molécule est $f = 3N-6$.

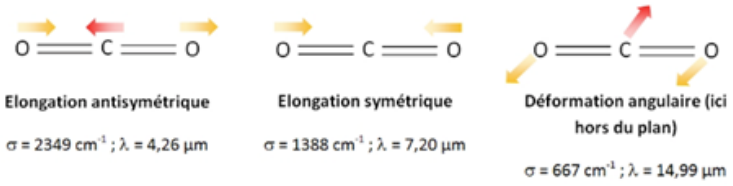


Figure 2.5: Les modes normaux de vibration de la molécule linéaire de CO_2

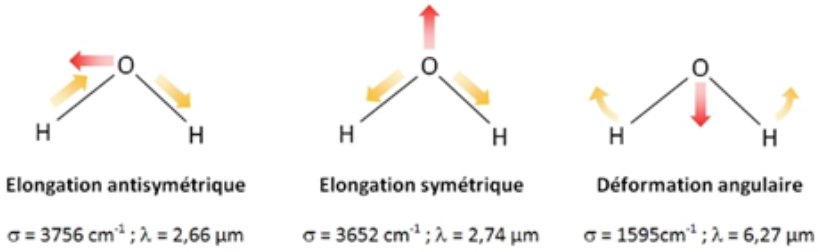


Figure 2.6: Les modes normaux de vibration de la molécule non linéaire de H_2O

2.1.3 Mécanismes d'absorption

Lorsqu'un rayonnement monochromatique d'intensité $I_0(\sigma)$ (où σ désigne le nombre d'onde) traverse un milieu gazeux absorbant sur une distance L, son intensité diminue en raison de l'absorption par les molécules du gaz. Cette atténuation est décrite par **la loi de Beer–Lambert**, qui relie la variation d'intensité à la quantité de matière absorbante, selon l'équation suivante :

$$\boldsymbol{I_t(\sigma) = I_0(\sigma) e^{-\alpha(\sigma) L}} \tag{2.8}$$

Dans laquelle $I_t(\sigma)$ représente l'intensité transmise à travers la colonne de gaz et $\alpha(\sigma)$ est le coefficient d'absorption , exprimé en cm^{-1}, qui dépend des propriétés spectroscopiques du gaz et du rayonnement absorbé. Tel que décrit dans la section 2.1.2, l'absorption dans l'infrarouge correspond à une transition ro-vibrationnelle de la molécule. Les niveaux d'énergie rotationnels d'une molécule sont très proches les uns des autres, et les transitions rotationnelles apparaissent comme des raies étroitement espacées autour de la fréquence centrale associée au mode vibrationnel. Leur position et leur intensité dépendent

fortement des conditions physiques du milieu, notamment la pression, la température et la distribution des vitesses moléculaires [Bruggeman *et al.*, 2014].Ainsi, dans le domaine spectral, une bande infrarouge n'est pas constituée d'une seule raie mais d'un ensemble de transitions rotationnelles superposées. La structure fine de la bande résulte de cette combinaison. Lorsque les raies individuelles sont résolues, leur mesure peut devenir délicate. Lorsque les raies s'élargissent, leur distinction devient moins nette et l'enveloppe globale de la bande domine.Plusieurs mécanismes physiques contribuent à l'élargissement des raies : l'élargissement naturel, l'élargissement Doppler et l'élargissement collisionnel (ou par pression). Le profil de Voigt correspond à la combinaison des contributions Doppler et collisionnelle [Vincent-Geisse, 1956], voici leurs descriptions :

- Élargissement naturel

L'absorption du rayonnement électromagnétique provoque l'excitation de la molécule à un niveau d'énergie supérieur. Cet état excité a une durée de vie finie, notée Δt, avant de se désexciter par émission spontanée vers l'état fondamental.
L'élargissement des raies spectrales est causé de manière fondamentale par un phénomène qui reflète l'instabilité intrinsèque des états excités. Cette incertitude est liée au **principe d'incertitude de Heisenberg**, qui établit un lien entre l'incertitude sur l'énergie d'un état quantique (ΔE) et l'incertitude sur sa durée de vie (Δt) :

$$\boldsymbol{\Delta E\, \Delta t \geq \hbar} \tag{2.9}$$

où $\hbar = \dfrac{h}{2\pi}$ est la constante de Planck réduite. Dans les transitions infrarouges, la durée de vie des états excités est généralement longue, car la probabilité d'émission spontanée est faible. Cette faible probabilité réduit la largeur naturelle des raies à des valeurs très petites. Dans le domaine infrarouge, cet élargissement est de l'ordre du MHz et reste donc négligeable par rapport aux autres mécanismes d'élargissement.

- Élargissement Doppler

Dans l'atmosphère, les molécules possèdent des vitesses aléatoires dues à l'agitation thermique. Lorsque la pression est faible, en particulier dans les couches supérieures de l'atmosphère, les molécules se déplacent librement et leurs vitesses suivent une distribution statistique.
Ces mouvements provoquent un décalage Doppler de la fréquence du rayonnement absorbé ou émis. La fréquence du rayonnement observée dans le référentiel de la molécule diffère de la fréquence centrale ϑ_0 lorsque celle-ci se déplace avec une vitesse v dans la direction de propagation du faisceau lumineux. Dans l'approximation non relativiste ($v << c$), la relation peut s'écrire :

$$\boldsymbol{\vartheta = \vartheta_0 \left(1 - \frac{v}{c}\right)} \tag{2.10}$$

L'élargissement Doppler est un phénomène bien connu. Il est souvent le mécanisme dominant de l'élargissement des raies dans les gaz à basse pression. On le trouve en particulier dans les environnements de la haute atmosphère et astrophysiques.
La distribution de l'intensité autour du nombre d'onde central σ_0 suit une loi gaussienne :

$$\boldsymbol{g(\sigma - \sigma_0) = \frac{c}{\sigma_0}\sqrt{\frac{m}{2\pi kT}}\ \exp\left[-\frac{mc^2}{2kT}\left(\frac{\sigma - \sigma_0}{\sigma_0}\right)^2\right]} \tag{2.11}$$

Avec la demi-largeur Doppler à mi-hauteur (Half Width at Half Maximum, HWHM) est donnée par :

$$\boldsymbol{\gamma = \sigma_0\sqrt{\frac{2kTN_A \ln 2}{Mc^2}} = 3.58 \times 10^{-7}\,\sigma_0\sqrt{\frac{T}{M}}} \tag{2.12}$$

T représente la température en kelvins et M la masse molaire en g/mol. La largeur Doppler dépend donc directement de la température du gaz, mais aussi de la masse de la molécule et de la position spectrale de la transition. Elle est d'autant plus importante que la molécule est légère et que le nombre d'onde σ_0 est élevé, ce qui explique que l'élargissement Doppler augmente en se rapprochant du domaine visible.

- Élargissement par pression

L'élargissement par pression est dû aux collisions entre les molécules présentent dans le mélange de gaz considéré (collisions avec la même espèce considérée (self-broadening) ou un autre gaz dit "élargisseur"). Ce phénomène dépend donc directement de la densité de molécules donc de la pression. À la pression atmosphérique, la densité moléculaire élevée entraîne un grand nombre de collisions, qui perturbent la phase du dipôle moléculaire et modifient la fréquence instantanée du rayonnement absorbé ou émis. Ces perturbations successives raccourcissent la durée de cohérence de l'état excité et conduisent à un profil d'absorption de forme lorentzienne. La fonction de distribution de l'intensité de la raie peut être présentée en utilisant la formule suivante pour un profil de Lorentz:

$$\boldsymbol{g(\sigma - \sigma_0) = \frac{1}{\pi} \frac{\gamma_c}{(\sigma - \sigma_0)^2 + \gamma_c^2}} \tag{2.13}$$

Avec γ_c la largeur de raie à mi-hauteur proportionnelle à la pression (P) [Bernath, 2025, Rothman *et al.*, 2013] :

$$\boldsymbol{\gamma_c = \gamma_0 P} \tag{2.14}$$

Où γ_0 est le coefficient d'élargissement en $(cm^{-1}.atm^{-1})$, P la pression partielle du gaz. L'augmentation de la pression accroît donc la fréquence des collisions et élargit la raie spectrale. La figure 2.7 illustre ce comportement pour différentes valeurs de pression:

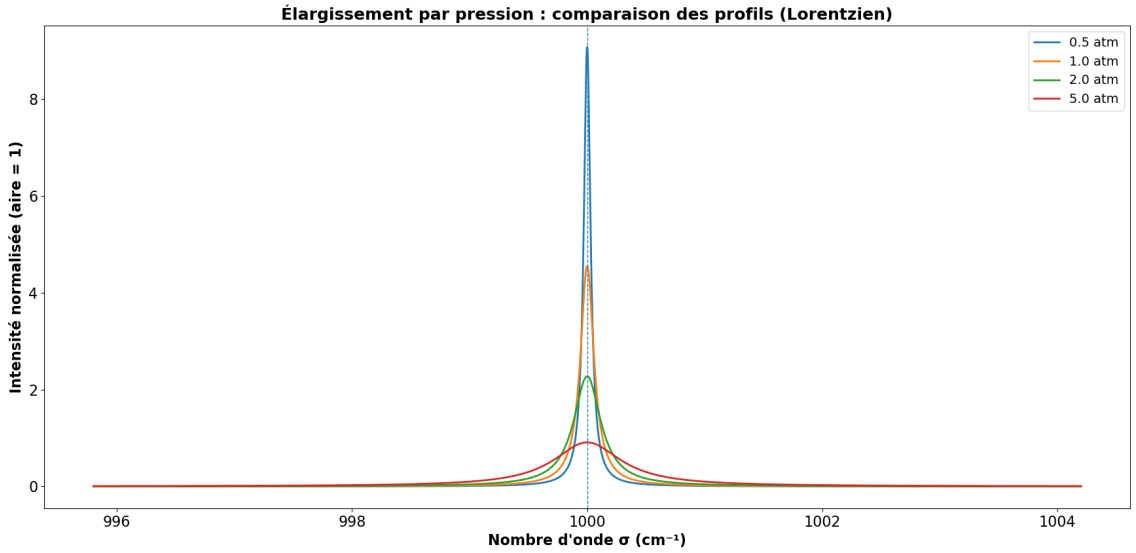


Figure 2.7: Élargissement par pression : comparaison des profils de Lorentz pour différentes valeurs de pression avec $\gamma_0 = 0.07$ cm^{-1}.atm^{-1}

- Profil de Voigt

Le profil d'une raie résulte de la combinaison des profils induits par tous les effets décrits précédemment (élargissement naturel, effet Doppler et effet de pression). Comme l'élargissement naturel est très faible dans le domaine infrarouge, le profil observé correspond en pratique à la convolution d'un profil gaussien (Doppler) et d'un profil lorentzien (pression), ce qui définit le profil de Voigt. À basse pression, l'agitation thermique des molécules domine et l'élargissement Doppler conduit à un profil de type gaussien. À pression élevée, ce sont les collisions entre molécules qui prédominent et donnent un profil lorentzien. Dans un régime intermédiaire, ces deux mécanismes d'élargissement coexistent et le profil spectral est alors décrit par un profil de Voigt normalisé (résultat de la convolution d'un profil gaussiens et lorentiens) dont la forme peut être présentée comme suit :

$$\boldsymbol{g_\nu(v - v_0) = \frac{1}{\gamma_D}\sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}}\, k(x, y)} \tag{2.15}$$

avec

$$k(x,y) = \frac{y}{\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{e^{-t^2}}{y^2+(x-t)^2}\,dt \tag{2.16}$$

Où

$$x = \sqrt{\ln 2}\,\frac{(v - v^0 - \delta_L)}{\gamma_D} \quad \text{et} \quad y = \sqrt{\ln 2}\,\frac{\gamma_L}{\gamma_D} \tag{2.17}$$

Dans laquelle δ_L désigne un éventuel décalage en fréquence dû aux collisions, γ_D est la demi-largeur Doppler à mi-hauteur et γ_L la demi-largeur lorentzienne. La figure 2.8 illustre les différences entre les profils gaussien (Doppler), lorentzien (pression) et le profil de Voigt, qui combine les deux effets. On y observe que le profil de Voigt présente un cœur dominé par l'élargissement Doppler et des ailes plus larges caractéristiques de l'élargissement collisionnel.

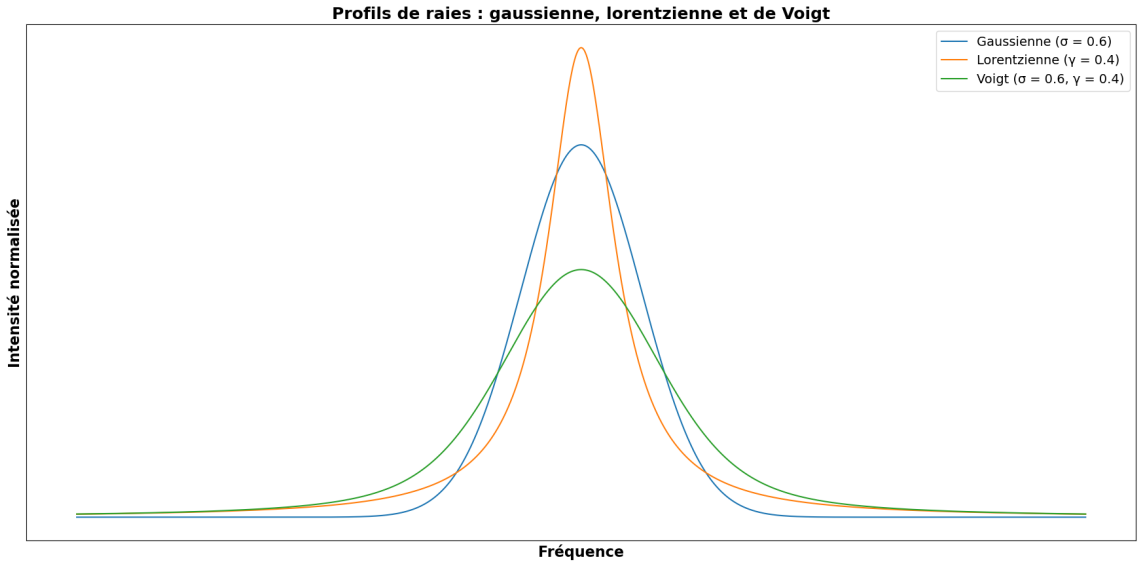


Figure 2.8: Les profils des raies : Gaussienne, Lorentzienne et de Voigt

2.1.4 Autres phénomènes spectraux

- Continues d'absorption (CIA)

L'absorption moléculaire dans le domaine infrarouge est principalement liée aux transitions entre niveaux vibrationnels d'une molécule, lorsque la fréquence du rayonnement incident correspond à celle de ses modes de vibration. Cette absorption n'est possible que si la vibration s'accompagne d'une variation du moment dipolaire de la molécule, ce qui est généralement le cas pour les molécules présentant un caractère polaire. L'eau (H_2O) est un exemple de molécule qui présente un caractère polaire. Cependant, Crawford, Welsh et Locke (1949) [Crawford *et al.*, 1949] ont établi que des gaz, initialement considérés comme inactifs dans l'infrarouge, peuvent présenter une absorption, pourvu que leur densité ou leur longueur de parcours optique soit suffisamment élevée. Dans cette situation, un dipôle transitoire peut être induit dans des molécules symétriques comme O_2, N_2, contribuant ainsi à l'absorption et entraînant des changements notables de la forme des raies spectrales. Cette absorption n'est possible que lors de collisions entre molécules, qui créent un moment dipolaire transitoire dans le dimère collisionnel.
En 2012, la base de données spectroscopiques HITRAN, référence internationale dans le domaine, a intégré une compilation et une normalisation des données d'absorption induite par collision (CIA). L'objectif de ce travail est de fournir un format cohérent utilisable pour la modélisation plus précise du transfert radiatif et d'améliorer la reproductibilité des simulations spectrales, tant pour l'atmosphère terrestre que pour d'autres environnements planétaires [Richard *et al.*, 2012]
De plus, des expériences menées par Smith et Newnham à l'aide d'un spectromètre à transformée de Fourier (FTS) avec une résolution spectrale de 0,5 cm^{-1} équivalente à celle de notre spectromètre EM27/SUN – ont révélé des bandes d'absorption de l'oxygène autour de 7883 et 9400 cm^{-1} [Richard *et al.*, 2012]. Il est important de noter que ces bandes n'apparaissent pas dans le spectre d'une molécule d'oxygène isolée. En effet, O_2 est une molécule homonucléaire, dépourvue de moment dipolaire permanent et dont le moment dipolaire ne varie pas au cours de sa vibration fondamentale. Elle est donc normalement inactive dans l'infrarouge. Les absorptions observées autour de 7883 et 9400 cm^{-1} proviennent exclusivement de l'interaction temporaire entre deux molécules

d'oxygène lors d'une collision. Au cours de cette interaction, la paire $O_2 - O_2$ forme un dipôle instantané induit, ce qui rend possible la transition et permet l'apparition d'une absorption mesurable. Ces absorptions sont typiques des processus d'absorption induite par collision (CIA) et leur intensité dépend directement du produit des densités des deux espèces. Elles ne correspondent donc pas à des transitions vibrationnelles intrinsèques du O_2, mais à des signatures spectrales propres aux paires $O_2 - O_2$ en interaction.
Dans la présente étude, et pour la voie (1) du spectromètre EM27/SUN, les coefficients CIA pour les couples O_2-air et $O_2 - O_2$ ont été pris en compte dans les simulations radiatives, à différentes températures, conformément aux données tabulées dans HITRAN 2021, et pour la voie (2), $N_2 - N_2$ et N_2-air ont été intégrés de la même base. La Figure 2.9 montre l'effet de l'introduction des coefficients CIA de la voie (1) sur la région spectrale autour de 7883 cm^{-1}, mettant en évidence la contribution des interactions collisionnelles $O_2 - O_2$ et O_2-air à l'absorption observée.

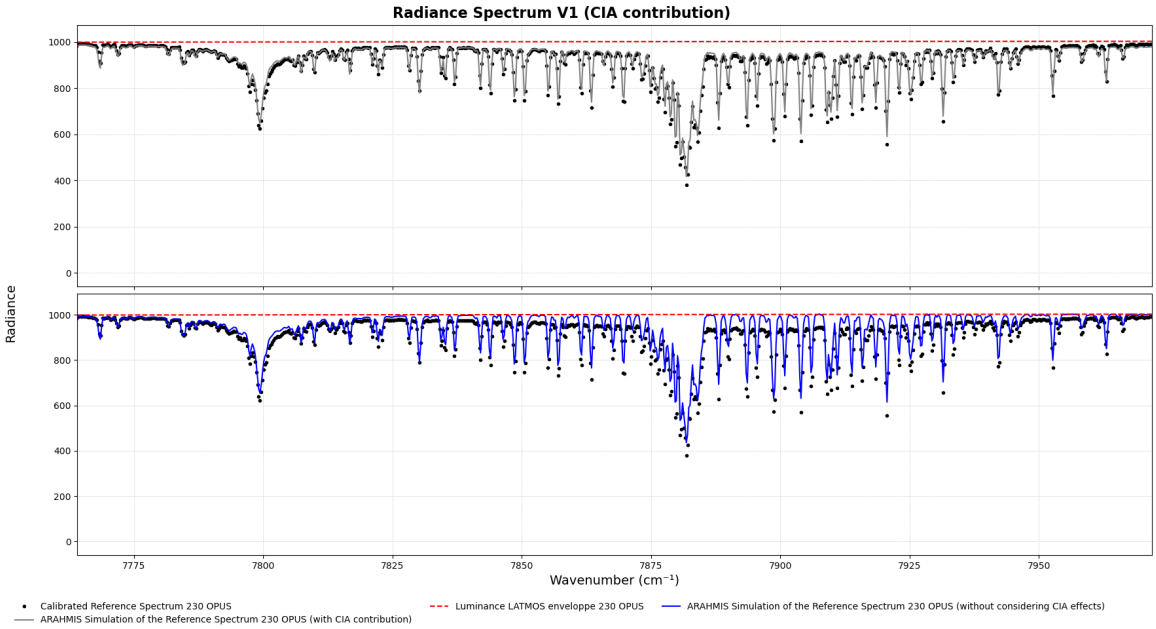


Figure 2.9: Comparaison des simulations du spectre de la voie (1) du EM27/SUN avec (haut) et sans (bas) les contributions d'absorption induite par collision (CIA) pour les paires $O_2 - O_2$ et $O_2 - air$, dans la région centrée autour de 7883 cm^{-1}. L'ajout des termes CIA permet de mieux reproduire la forme observée des bandes d'oxygène.

- Line-mixing

En plus de l'absorption provoquée par collisions, un autre phénomène spectroscopique peut modifier la forme des raies: le line-mixing, qui provoquent des transferts d'intensité un couplage entre transitions voisines au sein d'une même bande. Ce couplage entraîne une redistribution de l'absorption entre les raies proches, modifiant la forme du profil spectral. Dans ces zones, les interactions collisionnelles réduisent la contribution des ailes proches et renforcent l'absorption dans la partie centrale de la bande.
Plusieurs modèles été développés pour représenter correctement ce phénomène et couvrir une large gamme de conditions de température et de pression [Lee *et al.*, 2021]. Toutes les molécules présentes dans l'atmosphère peuvent être affectées par ce phénomène d'interférence entre raies mais encore plus particulièrement celles présentant des bandes fortement congestionnées comme le CO_2 ou le CH_4.

2.1.5 Principes interférométriques et instrumentaux de la spectroscopie FTIR

Parmi les trois techniques analytiques les plus utilisées dans la base de données Web of Science (WoS), on trouve la spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) [Guerrero-Pérez et Patience, 2020]. Cette technique est un outil analytique universel permettant de détecter et de quantifier des gaz atmosphériques à travers l'analyse de leurs signatures d'absorption caractéristiques dans le domaine infrarouge. La plupart des composés atmosphériques présentent en effet des bandes d'absorption spécifiques dans cette région spectrale. Cela permet d'effectuer des analyses qualitatives et quantitatives. Par rapport aux spectromètres dispersifs conventionnels, les instruments FTIR présentent plusieurs avantages notables : un rapport signal/bruit supérieur, une meilleure résolution spectrale, une acquisition rapide des données, ainsi qu'une excellente reproductibilité et fiabilité du transfert d'étalonnage [Bacsik *et al.*, 2004, mos, 1991].

2.1.5.1 Spectroscopie FTIR : principe instrumental

La spectroscopie FTIR est devenue un outil essentiel dans de nombreux domaines scientifiques et industriels en raison de ses performances analytiques. Le principe de fonctionnement d'un spectromètre FTIR repose sur l'utilisation d'un interféromètre qui module le rayonnement incident. La lumière polychromatique émise par une source traverse un interféromètre, le plus souvent de type Michelson. Ce dispositif sépare le faisceau en deux trajets optiques différents avant de les recombiner, ce qui produit un signal d'interférence dépendant de la différence de chemin optique entre les deux bras de l'interféromètre. Après interaction avec l'échantillon, le signal détecté se présente sous la forme d'un interférogramme, c'est-à-dire une variation de l'intensité mesurée en fonction de la différence de chemin optique. Ce signal est ensuite converti numériquement en spectre d'intensité en fonction de la fréquence (ou du nombre d'onde) par application de la transformée de Fourier. Parmi les interféromètres les plus couramment utilisés, celui de Michelson constitue l'architecture la plus répandue dans les spectromètres FTIR modernes [Guerrero-Pérez et Patience, 2020, mos, 1991].

2.1.5.2 L'interféromètre de Michelson

Lors des dernières décennies, l'interféromètre de Michelson a connu une diffusion croissante et est largement utilisée dans de nombreux domaines scientifiques, comme le nôtre, pour le suivi des gaz à effet de serre dans l'atmosphère. Son développement et sa mise en œuvre instrumentale ont également joué un rôle clé dans cette expansion. Un interféromètre de Michelson est constitué de quatre éléments principaux : deux miroirs (M1 fixe et M2 mobile) disposés à angle droit, et une seule lame à faces parallèles, souvent appelée lame séparatrice-compensatrice. Cette lame a un double rôle : elle divise le faisceau incident en deux parties, l'une réfléchie vers M1 et l'autre transmise vers M2, et elle compense la différence de chemin optique que la division du faisceau introduit. Selon le sens de propagation du faisceau, la même lame peut agir tantôt comme séparatrice, tantôt comme compensatrice. Cette approche permet de s'assurer que les deux bras de l'interféromètre présentent la même épaisseur optique, condition essentielle pour obtenir

des interférences nettes et stables.

Principe de fonctionnement

La source émet un faisceau parallèle de rayonnement infrarouge qui atteint la lame séparatrice. Celle-ci divise le faisceau incident en deux parties. Une première partie est réfléchie vers le miroir fixe M1, tandis que l'autre traverse la séparatrice et est dirigée vers le miroir mobile M2. Après réflexion sur ces deux miroirs, les faisceaux reviennent vers la séparatrice où ils se recombinent. Comme les distances parcourues dans les deux bras de l'interféromètre peuvent être différentes, les faisceaux recombinés produisent des interférences constructives ou destructives. Ces interférences dépendent de la différence de marche optique (OPD, *Optical Path Difference*), notée δ, qui peut s'écrire : $\delta = 2d = 2(d_1 - d_2)$ où d_1 et d_2 représentent respectivement les distances entre la séparatrice et les miroirs fixe et mobile (Figure 2.10). Lorsque les deux distances sont identiques, les faisceaux parcourent des chemins optiques égaux et arrivent en phase lors de leur recombinaison. En revanche, si le miroir mobile est déplacé d'une distance x, la différence de chemin optique varie de 2x, car le faisceau parcourt l'aller-retour entre la séparatrice et ce miroir. Ce déplacement introduit alors un déphasage entre les deux faisceaux. Le détecteur placé à la sortie de la séparatrice recueille le faisceau résultant et mesure son intensité. Celle-ci est convertie en un signal électrique correspondant à l'interférogramme.

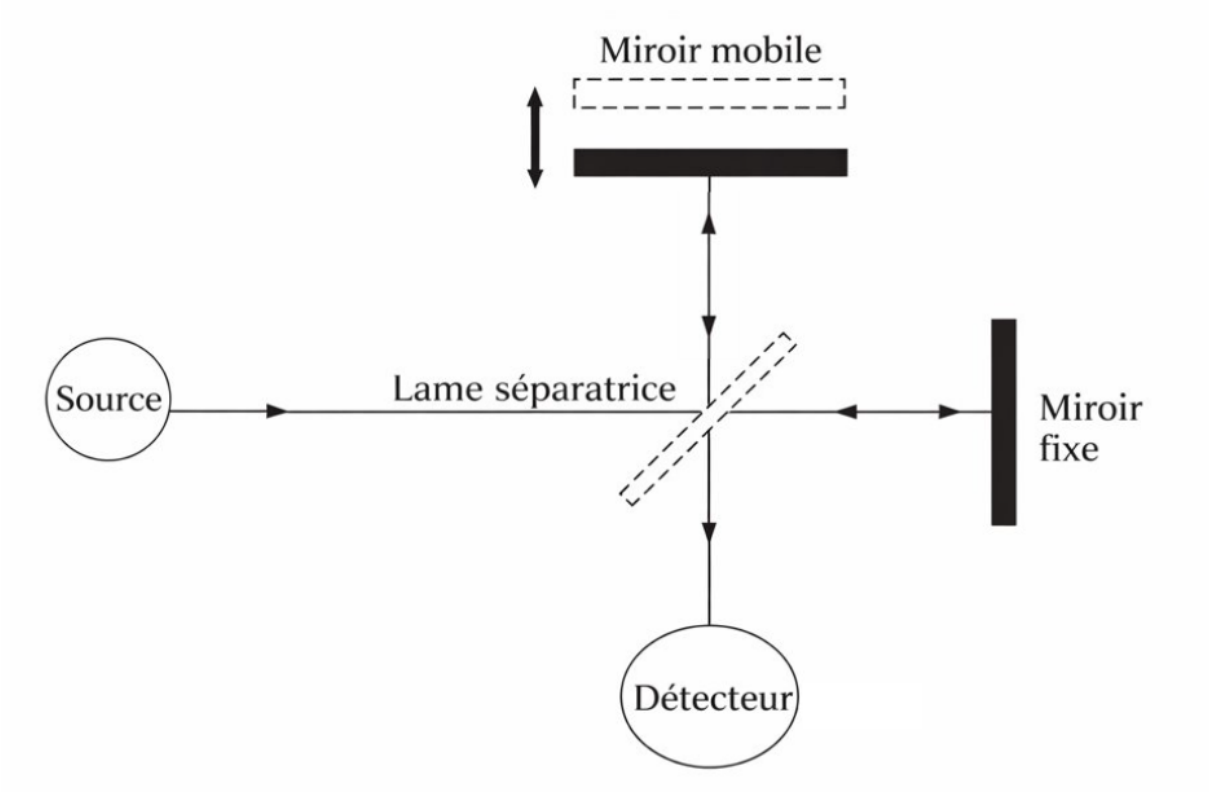


Figure 2.10: Schéma simplifié de l'interféromètre de Michelson

2.1.5.3 Interférogramme et différence de marche optique

La différence de marche optique δ est une grandeur continue contrôlée par le déplacement du miroir dans l'interféromètre de Michelson. Elle induit un déphasage entre les deux faisceaux recombinés au niveau de la lame séparatrice, ce qui produit une modulation du signal mesuré au détecteur. Pour une source monochromatique de longueur d'onde λ, l'intensité mesurée varie de manière sinusoïdale en fonction de δ et s'écrit :

$$\boldsymbol{I(\delta) = \frac{1}{2} I_0 \left[1 + \cos\left(2\pi \frac{\delta}{\lambda}\right)\right] = \frac{1}{2} I_0 \left[1 + \cos\left(2\pi \delta\, \sigma\right)\right]} \tag{2.18}$$

Où $\sigma = \frac{1}{\lambda}$ le nombre d'onde et I_0 l'intensité incidente. Certaines valeurs par-

ticulières de δ correspondent à des extrema de cette fonction. Les interférences sont constructives lorsque les deux faisceaux sont en phase, ce qui se produit pour :

$$\boldsymbol{\delta = n\lambda}, \qquad \boldsymbol{n \in \mathbb{Z}} \tag{2.19}$$

Et destructives lorsqu'ils sont en opposition de phase :

$$\boldsymbol{\delta = \left(n + \frac{1}{2}\right)\lambda}, \qquad \boldsymbol{n \in \mathbb{Z}} \tag{2.20}$$

Le soleil étant une source polychromatique, et l'interférogramme mesuré par le spectromètre FTIR résulte de la superposition des contributions de l'ensemble des nombres d'onde présents dans le rayonnement incident. Le signal mesuré peut se décomposer en une partie constante, I_{DC}, et une partie modulée, I_{AC}, qui contient l'information spectrale et est généralement appelée interférogramme. L'intensité mesurée s'écrit alors :

$$\boldsymbol{I(\delta) = \int_{-\infty}^{+\infty} S(\sigma)\left[1 + \cos\left(2\pi\sigma\delta\right)\right]\, d\sigma} \tag{2.21}$$

$$\begin{aligned} \boldsymbol{I(\delta)} &= \boldsymbol{\int_{-\infty}^{+\infty} S(\sigma)\, d\sigma + \int_{-\infty}^{+\infty} S(\sigma)\cos\left(2\pi\sigma\delta\right)\, d\sigma} \\ &= \boldsymbol{I_{\mathrm{DC}}(\delta) + I_{\mathrm{AC}}(\delta)} \end{aligned} \tag{2.22}$$

Si l'on ne considère que la partie modulée $I_{AC}(\delta)$, le spectre mesuré est obtenu par transformée de Fourier inverse :

$$\boldsymbol{\tilde{S}(\sigma) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(\delta)\cos\left(2\pi\sigma\delta\right)\, d\delta} \tag{2.23}$$

Pour un instrument réel, le déplacement du miroir ne peut pas être illimité, ce qui donne lieu à un interférogramme tronqué à l'$OPD_{max} = \delta_{\max}$ (différence de marche maximale). On multiplie donc l'interférogramme par une fonction fenêtre rectangulaire

Boxcar (Figure 2.11) $w_{\text{box}}(\delta)$:

$$\boldsymbol{w_{\text{box}}(\delta)} = \begin{cases} \mathbf{1}, & \text{si } |\boldsymbol{\delta}| \leq \boldsymbol{\delta_{\text{max}}} \\ \mathbf{0}, & \text{sinon} \end{cases} \tag{2.24}$$

Donc :

$$\mathbf{I_{\text{mes}}(\delta)} = \boldsymbol{I(\delta)}\, \boldsymbol{w_{\text{box}}(\delta)} \tag{2.25}$$

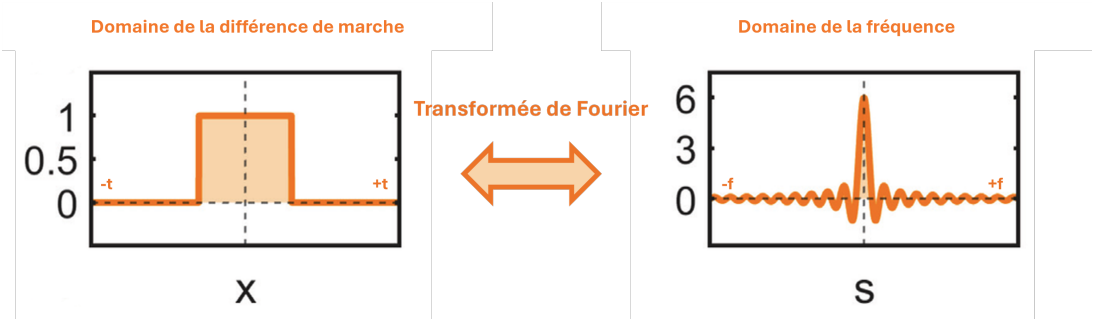


Figure 2.11: Transformation de Fourier entre l'interférogramme (domaine de la différence de marche) et le spectre (domaine des fréquences), pour un domaine de différence de marche fini (fonction porte de type Boxcar).

En remplaçant $I(\delta)$ par $I_{mes}(\delta)$ dans l'équation 2.23, on obtient :

$$\boldsymbol{\tilde{S}_{\text{mes}}(\sigma)} = \int_{-\infty}^{+\infty} \boldsymbol{I(\delta)}\, \boldsymbol{w_{\text{box}}(\delta)}\, \cos\!\left(\boldsymbol{2\pi\sigma\delta}\right) \mathbf{d}\boldsymbol{\delta} \tag{2.26}$$

Dans l'espace spectral, la transformée de Fourier du produit $I(\delta)\, w_{\text{box}}(\delta)$ correspond à une convolution entre leurs transformées, on en déduit donc :

$$\boldsymbol{\tilde{S}_{\text{mes}}(\sigma)} = \boldsymbol{S(\sigma)} \otimes \mathbf{ILS}(\boldsymbol{\sigma}) \tag{2.27}$$

Avec $\text{ILS}_{\text{box}}(\sigma) = 2\,\delta_{\text{max}}\,\text{sinc}\left(2\pi\sigma\delta_{\text{max}}\right)$ est la fonction de réponse instrumentale qui définit la transformée de Fourier de la fenêtre boxcar. Tous les effets instrumentaux affectant la forme des raies sont inclus dans cette fonction de réponse instrumentale, indépendamment de la physique moléculaire.

2.1.5.4 Résolution spectrale

La résolution spectrale d'un spectromètre FTIR est directement liée à la différence de marche optique maximale δ_{max}, c'est-à-dire au retard maximal introduit par le déplacement du miroir mobile lors d'un balayage. Plus cette différence de marche est grande, plus la résolution spectrale est élevée.
L'interférogramme enregistré par le détecteur résulte de la superposition des contributions des différentes composantes spectrales du rayonnement incident. L'application de la transformée de Fourier permet de reconstruire le spectre en nombre d'onde.
La capacité à distinguer deux nombres d'onde proches dépend de l'étendue maximale de l'interférogramme, c'est-à-dire de la valeur de δ_{max}. Dans ce cadre, un critère usuel de séparabilité conduit à une résolution spectrale approximative donnée par :

$$\boldsymbol{\Delta\sigma \simeq \frac{1}{\delta_{max}}} \tag{2.28}$$

Où $\Delta\sigma$ est exprimée en cm^{-1} et δ_{max} en cm.

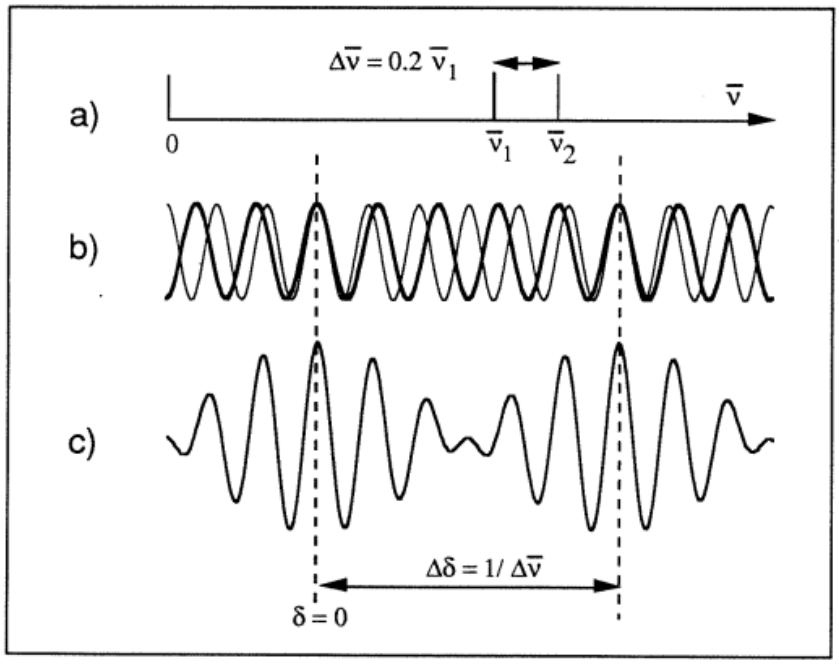


Figure 2.12: a) Le spectre est composé de deux raies d'intensités égales, séparées par une différence de nombre d'onde $\Delta\tilde{\nu} = 0.2\,\tilde{\nu}_1$ avec $\tilde{\nu} = \sigma$. b) Interférogrammes représentant chacune des deux raies spectrales prises séparément. c) L'interférogramme résultant de leur superposition est le suivant : Les maxima du battement sont séparés par un intervalle de $\Delta\delta = 5\lambda_1$. Pour pouvoir distinguer les deux raies, il est essentiel de reproduire un retard optique d'au moins cette valeur [mos, 1991].

Dans le cas d'une troncature de l'interférogramme par une fenêtre rectangulaire (fonction *Boxcar*), la fonction de réponse instrumentale est de type *sinc*. La forme de cette fonction impose une largeur finie des raies mesurées, caractérisée notamment par la largeur à mi-hauteur du lobe principal, donnée approximativement par :

$$\boldsymbol{\Delta\sigma_{\mathrm{FWHM}} \approx \frac{0.6}{\delta_{\mathrm{max}}}} \tag{2.29}$$

Cette distinction met en évidence que la notion de résolution spectrale dépend de la définition adoptée : le critère $1/\delta_{\mathrm{max}}$ correspond à une capacité de séparabilité, tandis que la largeur de la fonction de réponse instrumentale décrit l'élargissement effectif des raies

spectrales.

2.1.5.5 Fonction d'appareil

Contibution de diaphragmme

Dans un spectromètre à transformée de Fourier idéal, l'interféromètre de Michelson serait éclairé par un faisceau parfaitement collimaté, constitué de rayons parallèles à l'axe optique. Tous les rayons parcourraient alors la même différence de marche optique et produiraient un interférogramme identique. La résolution spectrale serait uniquement déterminée par la différence de marche maximale $\delta_{\max}$. En pratique, le faisceau présente une divergence angulaire finie. Les rayons entrant dans l'interféromètre sous un angle α ne parcourent pas exactement la même différence de marche. Pour un rayon incliné, celle-ci devient :

$$\boldsymbol{\delta(\alpha) = \delta_0 cos(\alpha)} \tag{2.30}$$

Où δ_0 correspond à la différence de marche pour un rayon axial. Cette dépendance angulaire implique que les différentes composantes du faisceau ne produisent pas exactement le même interférogramme.
Afin de limiter cet effet, un diaphragme appelé *Jacquinot stop* est introduit dans le système optique. Il restreint l'angle maximal des rayons traversant l'interféromètre, donné approximativement par :

$$\boldsymbol{\alpha_{max} \approx \frac{r}{F}} \tag{2.31}$$

Où r est le rayon du diaphragme et F la distance focale du système optique. Le choix de ce diaphragme résulte d'un compromis entre flux lumineux et performances spectrales.

Effets de la divergence angulaire et l'élargissement spectral

La distribution angulaire des rayons entraîne une distribution correspondante des nombres d'onde apparents, ce qui se traduit par deux effets distincts dans le domaine spectral.
Les contributions associées aux différents angles ne correspondent pas exactement aux mêmes nombres d'onde. Leur superposition conduit à un élargissement des raies spectrales, dont l'ordre de grandeur est donné par :

$$\boldsymbol{\Delta\sigma \sim \sigma_0 \alpha_{max}} \tag{2.32}$$

Cet effet dégrade la résolution spectrale effective lorsque l'ouverture angulaire du faisceau augmente.

Décalage spectral (*shift*)

La dépendance en $cos(\alpha)$ introduit également un décalage systématique des nombres d'onde vers des valeurs plus élevées. Pour de petits angles :

$$\boldsymbol{\sigma(\alpha) \approx \sigma_0 \left(1 + \frac{\alpha^2}{2}\right)} \tag{2.33}$$

En moyennant sur l'ensemble des rayons, le décalage spectral peut être estimé par :

$$\boldsymbol{\Delta\sigma_{\text{shift}} \approx \sigma_0 \frac{1}{4} \left(\frac{r}{F}\right)^2} \tag{2.34}$$

Cet effet reste généralement faible mais dépend directement de l'ouverture angulaire du faisceau.

Interprétation en domaine interférogramme et impact sur l'ILS

La divergence angulaire peut également être interprétée dans le domaine de la différence de marche. Lorsque δ augmente, les contributions associées aux différents angles se déphasent progressivement, ce qui entraîne une diminution du contraste des franges de l'interférogramme. Ce phénomène est appelé auto-apodisation.
Dans le domaine spectral, cette auto-apodisation se traduit par une modification de la fonction de réponse instrumentale (ILS), qui n'est plus uniquement déterminée par la troncature de l'interférogramme, mais également par le champ angulaire du faisceau.
En pratique, ces effets sont pris en compte en modélisant l'ILS comme une convolution du spectre par une fonction instrumentale intégrant à la fois la troncature en différence de marche et les effets liés à la divergence angulaire.

Fonction d'apodisation

L'opération de pondération mathématique appelée apodisation, ou fenêtrage, est une étape cruciale dans le processus de mesure interférométrique. Elle consiste à ajuster la fonction de réponse instrumentale avant le calcul de la transformée de Fourier, afin de réduire l'amplitude des lobes secondaires de la fonction instrumentale [St. Louis *et al.*, 1992, Kilgour et Van Orden, 2015]. La fonction d'apodisation peut prendre différentes formes (Gaussian, Triangle, Lorentz, Norton−Beer-medium, ILS, etc.), et sera choisie en fonction de l'effet souhaité et de la résolution finale acceptable (voir section 2.2.1.3).
Pour les produits d'inversion du réseau issu de l'utilisation d'un EM27/SUN selon le standard COCOON (réglage EM27/SUN et inversion via Proffast), la réduction de ces lobes secondaires de la sinc est obtenue par l'application d'une apodisation numérique par la fonction *Norton-Beer-Medium*
[Norton et Beer, 1976, Norton et Beer, 1977], avec la formule suivante:

$$\boldsymbol{I_{\mathbf{apo}}(\delta) = I(\delta) \cdot w(\delta)} \tag{2.35}$$

Où $w(\delta)$ est la fonction *Norton-Beer-Medium*. Pour ARAHMIS, et afin que notre étude soit représentative de la méthode utilisée par COCCON, nous utiliserons également cette fonction d'apodisation.

Fonction d'appareil total

Avec tous ces éléments, la fonction instrumentale totale devient ce qui suit:

$$\mathbf{ILS}(\boldsymbol{\sigma}) = \mathbf{ILS_{OPD}} * \mathbf{ILS_{FOV}} * \mathbf{ILS_{apo}} \tag{2.36}$$

Nous verrons dans la section 2.2.1.3 que l'ILS de l'EM27/SUN introduit encore deux autre effets pour parfaitement reproduire la fonction d'appreil.

2.2 Les caractéristiques et les éléments constitutifs de EM27/SUN et réseau COCCON

Nous venons de présenter les principes fondamentaux du fonctionnement d'un spectromètre à transformée de Fourier. Nous allons maintenant voir dans cette partie les points spécifiques à l'EM27/SUN.

2.2.1 Principe de fonctionnement du spectromètre à transformée de Fourier EM27/SUN

Suivant le standard TCCON, l'EM27/SUN est paramétré de façon à enregistrer des interférogramme en mode *double-sided*, réalisé par un scan Forward-backward, c'est à dire que pour chaque scan le miroir mobile partira de ddm_{max} pour revenir à la ZPD (différence de marche optique nulle) puis aller jusqu'à la ddm_{max} pour finalement revenir à son point d'origine. Chaque enregistrement correspond donc à l'équivalent de 4 interférogrammes complets. Sa couverture spectrale va de 4000 à 15000 cm^{-1} et nous enregistrons les inter-

férogrammes à la résolution maximale de l'instrument, c'est à dire, 0.5 cm^{-1} (différence de chemin optique de 1,8cm). À partir des spectres mesurés par l'EM27/SUN, il est possible d'extraire les fractions molaires d'air sec (DMF) moyennées par colonne (représentées par X_{gaz}) de CO_2, CH_4, CO et H_2O avec une précision et une exactitude similaire à celles du TCCON [Wunch *et al.*, 2011]. Une mesure prend 58s pour enregistrer un spectre individuel avec 10 interférogrammes moyennés. L'EM27/SUN démontre une stabilité remarquable sur des longues périodes allant jusqu'à plusieurs années, qui reste préservée même lors des déplacements et de son fonctionnement dans des conditions ambiantes variées. Ce qui montre que le EM27/SUN est parfaitement adapté pour une utilisation en campagne et un déploiement à long terme dans des endroits isolés là où des TCCON sont difficilement déployables [Frey *et al.*, 2019]. Ce dispositif a été développé par le KIT (*Karlsruhe Institute of Technology*) en collaboration avec *Bruker Optics*. Le système est structuré de manière à former deux sections distinctes : d'un côté, on trouve le *suntracker* et de l'autre, le spectromètre à transformée de Fourier.

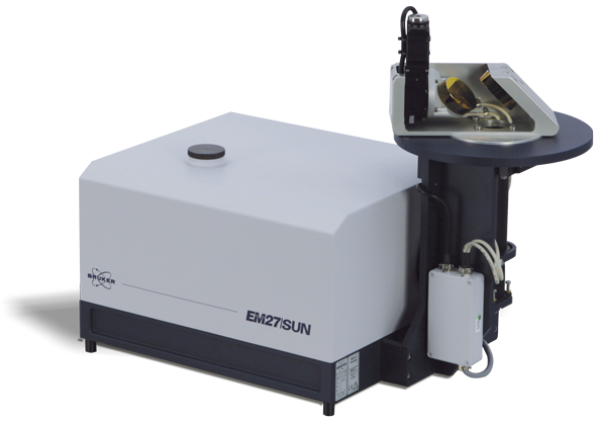


Figure 2.13: Le spectromètre EM27/SUN (`www.bruker.com`)

2.2.1.1 Principe de fonctionnement du tracker

Avec une masse d'environ 2 kilogrammes et une taille de 30 x 20 x 10 centimètres, le tracker a été développé par l'IMK en collaboration avec Impres GmbH (http://www.impres.de). Il est constitué de deux miroirs elliptiques en verre recouverts

d'une couche d'aluminium très réfléchissante dans le spectre UV-IR, ainsi que contre l'oxydation et l'humidité, et montés sur une plate-forme de rotation Newport RV160PP [Gisi *et al.*, 2011b, Gisi *et al.*, 2012] pouvant accepter un faisceau de grande taille allant jusqu'à 50 mm, alors que le faisceau utilisé réellement est de 3 mm. Cette configuration alt-azimutal a été choisie afin d'orienter les miroirs selon l'azimut et l'élévation souhaités (Figure 2.14).
Le premier miroir ajuste l'angle d'élévation grâce à un rotateur Newport (RV80PP), tandis que l'ensemble des deux miroirs est monté sur un palier azimutal (RV160PP) en rotation (Est-Ouest). L'ensemble permet de suivre la course du soleil et de renvoyer en permanence le faisceau vers l'entrée du spectromètre [Gisi *et al.*, 2011b].

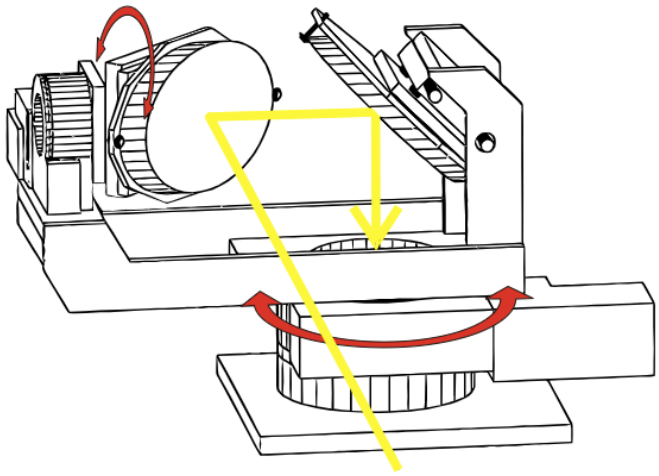


Figure 2.14: Schéma du tracker. Les flèches rouges indiquent le sens de rotation des axes de suivi du Soleil, tandis que la flèche jaune représente le trajet de la lumière solaire jusqu'à l'entrée du spectromètre. ([Gisi *et al.*, 2011a])

2.2.1.2 Système interférométrique de EM27/SUN

Le seconde partie est donc l'interféromètre dont nous allons maintenant détailler la structure. Comme on peut le voir sur la figure 2.15, le faisceau incident va d'abord rencontrer un filtre large-bande qui bloque les longueurs d'onde inférieures à 750 nm et laisse passer le proche infrarouge (diamètre du faisceau limité à 25 mm). Ensuite, le

faisceau pénètre dans l'interféromètre, qui repose sur un système pendulaire : les deux miroirs oscillent autour de points d'équilibre, contrairement à un Michelson classique où seul un miroir se déplace linéairement. Ce mouvement pendulaire permet de moduler régulièrement la différence de marche optique tout en assurant une grande stabilité mécanique, particulièrement adaptée aux mesures sur le terrain. Les miroirs utilisés sont de type coin de cube, comme dans les IFS 125 HR de Bruker, à l'origine des spectromètres du réseau TCCON-NDACC. Ce type de miroir a l'avantage de renvoyer tous les rayons selon le même angle que l'angle d'incidence, réduisant ainsi les pertes en cas de léger désalignement optique. Contrairement aux interféromètres classiques, il n'y a pas de diaphragme d'entrée jouant le rôle de Jacquinot-stop, les rayons arrivant directement parallèles. L'équivalent de ce diaphragme est intégré plus loin dans le montage, comme nous le verrons par la suite.

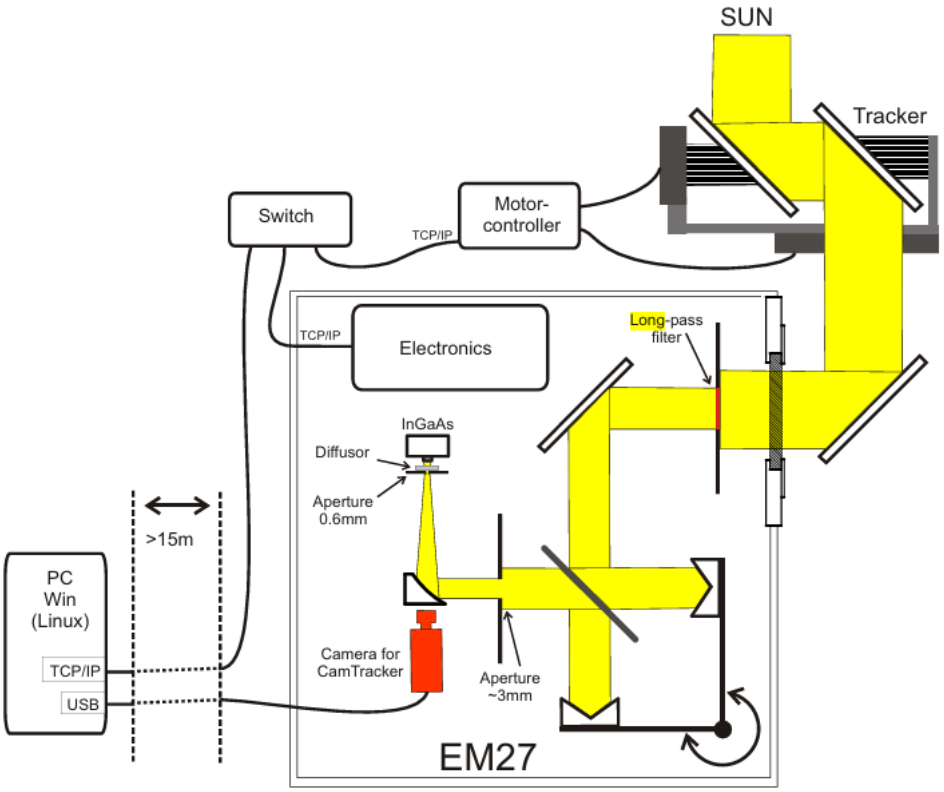


Figure 2.15: Schéma détaillé du fonctionnement de l'EM27/SUN ([Gisi *et al.*, 2012])

Après être passé par l'interféromètre, le faisceau arrive sur un diaphragme de 3 mm de diamètre, qui permet de réduire les rayons marginaux et de limiter divers phénomènes tels que les aberrations optiques, la saturation du détecteur ou encore la non-linéarité de la réponse. Le faisceau est ensuite focalisé sur un diaphragme de champ (*field stop*) de 0,6 mm de diamètre par un miroir parabolique hors axe (90°) de focale effective de 101,6 mm, afin d'éviter les aberrations chromatiques et de bien le focaliser sur le diaphragme, ce qui joue un rôle important dans la fonction instrumentale ILS. Un diffuseur est installé entre ce diaphragme et le détecteur InGaAs afin d'homogénéiser l'éclairement de ce dernier et d'éviter les effets non linéaires liés à une illumination partielle (voir la figure 2.15 pour la position de ces différents composants).
Afin de contrôler et de surveiller la ligne de visée réelle du spectromètre, et non uniquement la position mécanique des miroirs, même en cas d'incertitudes liées au transport de l'instrument, un dispositif de caméra est intégré directement afin d'observer l'image du Soleil formée sur le diaphragme *field stop*, et permet de fournir un retour optique au système de suivi *CamTracker*. La position mesurée de l'image solaire est comparée à la position idéale, ce qui permet au *tracker* de corriger immédiatement la position des moteurs de contrôle des miroirs de l'héliostat (Figure 2.16).

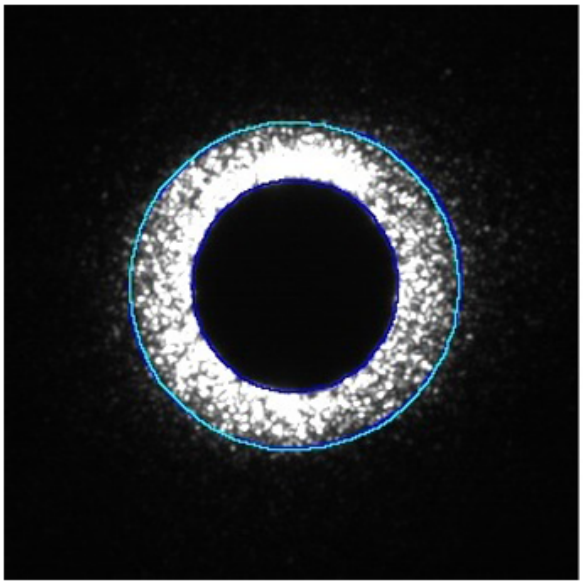


Figure 2.16: Images du disque solaire sur le diaphragme de champ du spectromètre EM27/SUN, avec les cercles bleus dans l'image sont les contours détectés et utilisés par CamTracker pour assurer la précision du suivi ([Gisi *et al.*, 2012])

La construction de cette configuration EM27/SUN a été pensée pour garantir une couverture spectrale d'environ 5500 à 11000 cm^{-1} et assurer la précision des mesures des espèces cibles principales, à savoir le CO_2 et le CH_4. Afin d'améliorer le fonctionnement de l'EM27/SUN et d'intégrer le suivi du monoxyde de carbone (CO), une modification a été apportée à la configuration instrumentale de l'EM27/SUN pour élargir la couverture spectrale, tout en conservant la précision des mesures de CO_2 et de CH_4, et sans perturber l'optique (ILS et le traqueur) [Hase *et al.*, 2016]. Pour atteindre cet objectif, la méthode consiste à diviser le faisceau d'onde en deux : une partie est dirigée vers le détecteur initial, tandis que l'autre est envoyée vers un nouveau détecteur ajouté pour couvrir l'infrarouge moyen (figure 2.17). Cette approche nous permet d'observer une couverture spectrale totale s'étendant de 4000 à 15000 cm^{-1}, et de mesurer d'autres gaz tels que le monoxyde de carbone (CO) et le dioxyde d'azote (N_2O).

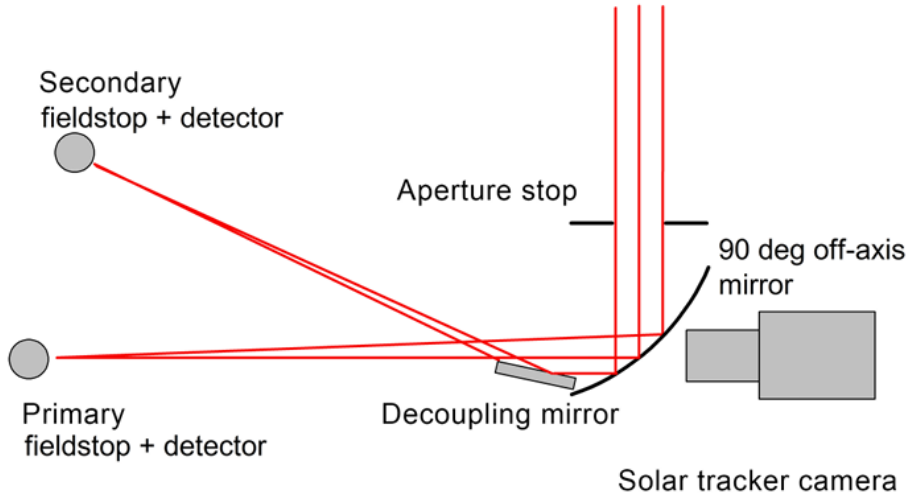


Figure 2.17: Schémas de la partie détecteur modifiée du système EM27/SUN, avec déplacement de la caméra vers la droite sur le schéma ([Hase *et al.*, 2016])

2.2.1.3 ILS spécifique aux EM27/SUN

Afin d'éviter tout biais, il est essentiel de bien connaître l'ILS pour réaliser des analyses quantitatives. Le logiciel PROFFAST, utilisé pour l'inversion des données EM27/SUN, prend en compte deux aspects :

- *Modulation Efficiency Amplitude* (**MEA**): Cette composante représente la diminution de l'amplitude de la modulation des franges. Autrement dit, elle correspond à la diminution de l'amplitude des franges de l'interféromètre en fonction de l'OPD par rapport à un système idéal [Gisi, 2012]. Cette variation, qui est due à des imperfections instrumentales telles que les désalignements optiques, les aberrations ou les défauts du système de détection, constitue l'une des contributions de la fonction instrumentale (ILS). Dans le domaine spectral, elle se traduit par une modification de la forme des raies. Cela peut se traduire par un élargissement, une diminution du contraste ou une distorsion. Ces changements peuvent introduire des biais dans l'ajustement spectral et la restitution des colonnes de gaz.

- Phase Error (**PE**): ce facteur permet de prendre en compte l'asymétrie de l'ILS, qui est typiquement liée à des erreurs de phase spectrale. Ces erreurs peuvent être causées par un désalignement de l'interféromètre, un décalage du centre d'interférométrie (ZPD) ou des imperfections dans l'échantillonnage ou la correction de phase.

La définition de ces deux facteurs a nécessité la mise en œuvre de deux étapes. La première a consisté à utiliser des mesures spectrales en laboratoire, et la seconde à effectuer un ajustement des moindres carrés à l'aide du logiciel LINEFIT. Cette procédure est décrite par Alberti [Alberti *et al.*, 2022]. Deux méthodes ont été utilisées : l'une par absorption du rayonnement infrarouge par la vapeur d'eau, l'autre avec une cellule remplie de gaz C_2H_2. Dans les deux cas, le spectre est ajusté à l'aide d'un modèle spectroscopique incluant la convolution par une ILS paramétrée selon un modèle à deux paramètres (MEA et PE). Cette double démarche permet d'estimer de manière fiable les facteurs MEA et PE, qui sont indispensables à la restitution précise du X_{gaz}.
Ces deux paramètres présentent les deux principales caractéristiques de tout ILS imparfait et sont généralement représentés par des fonctions décroissantes de l'OPD, souvent approchées de manière linéaire [Hase *et al.*, 1999]. La figure 2.18 illustre l'effet de deux paramètres sur l'amplitude des lobes secondaires, ainsi que l'asymétrie de l'ILS par rapport au centre.

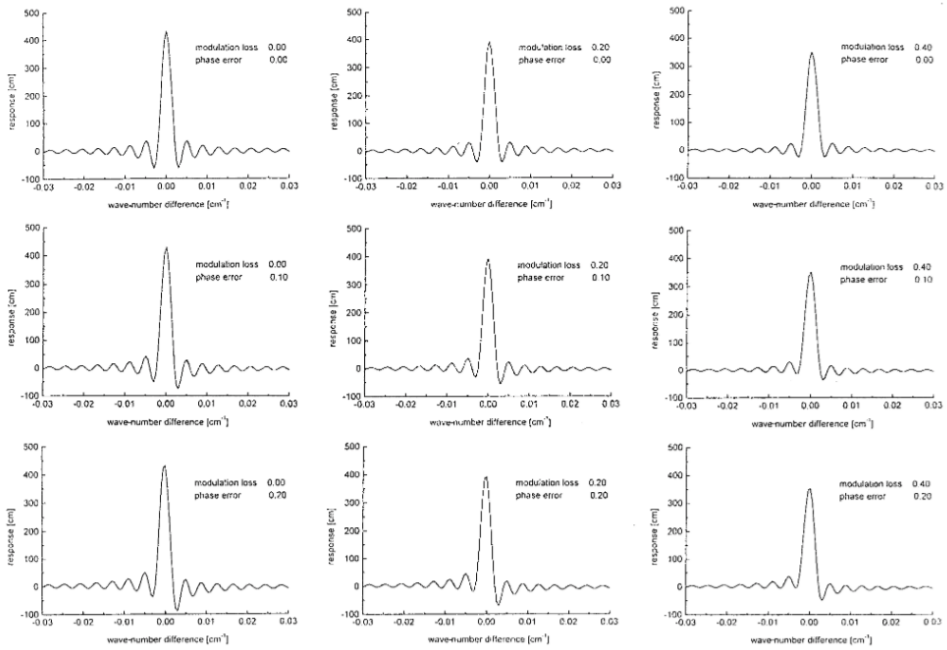


Figure 2.18: Variation de la forme de ILS en fonction des valeurs des deux paramètres MEA et PE [Hase *et al.*, 1999].

Pour mieux comprendre l'effet de MEA, le tableau 2 de [Frey *et al.*, 2019] montre que la sensibilité des colonnes varie en fonction de la variation de MEA (1 ou 0, 99), selon le gaz considéré et les conditions d'observation ($SZA = 60$ et $SZA = 30$ (SZA : *Solar Zenith Angle*) pour tester l'effet ILS dans deux géométries atmosphériques différentes). Pour éviter les biais sur les paramètres spectraux extraits, il faut l'intégrer explicitement au modèle. Les valeurs de MEA et PE sont différentes pour chaque instrument. Pour les différents EM27/SUN, ces facteurs sont définis dans le tableau 5 de [Frey *et al.*, 2019]. Des modifications ont été apportées par Alberti, qui a recalculé ces facteurs pour les différents instruments. La mise à jour a permis d'utiliser une pression plus précise, de corriger la distance optique interne et de passer à la version la plus récente de HITRAN. Ces changements ont eu un impact significatif sur le PE, bien que le MEA ait subi quelques ajustements (voir la figure 7 de [Alberti *et al.*, 2022]). Dans le cadre de notre dispositif EM27/SUN #130, nous avons appliqué l'ILS mesuré par l'équipe de MONARIS. Cette démarche a été entreprise en suivant les paramètres de modélisation et de phase améliorés par Albertie [Alberti *et al.*, 2022], conformément à la méthodologie de Frey

[Frey *et al.*, 2015]. Notre ILS, fourni par Monaris, est présenté dans la figure 2.19.
À partir d'une comparaison entre les valeurs de MEA dérivées dans les deux bandes spectrales SSW(7000–7400 cm^{-1}) et OVR(5275–5400 cm^{-1}), il est possible de mettre en avant une dépendance du paramètre MEA au nombre d'onde. Cette comparaison montre que l'écart entres les bandes est compatible avec une loi de puissance en $\nu^{1.5}$. Cela indique que la sensibilité de l'ILS augmente avec le nombre d'onde [Alberti *et al.*, 2022].

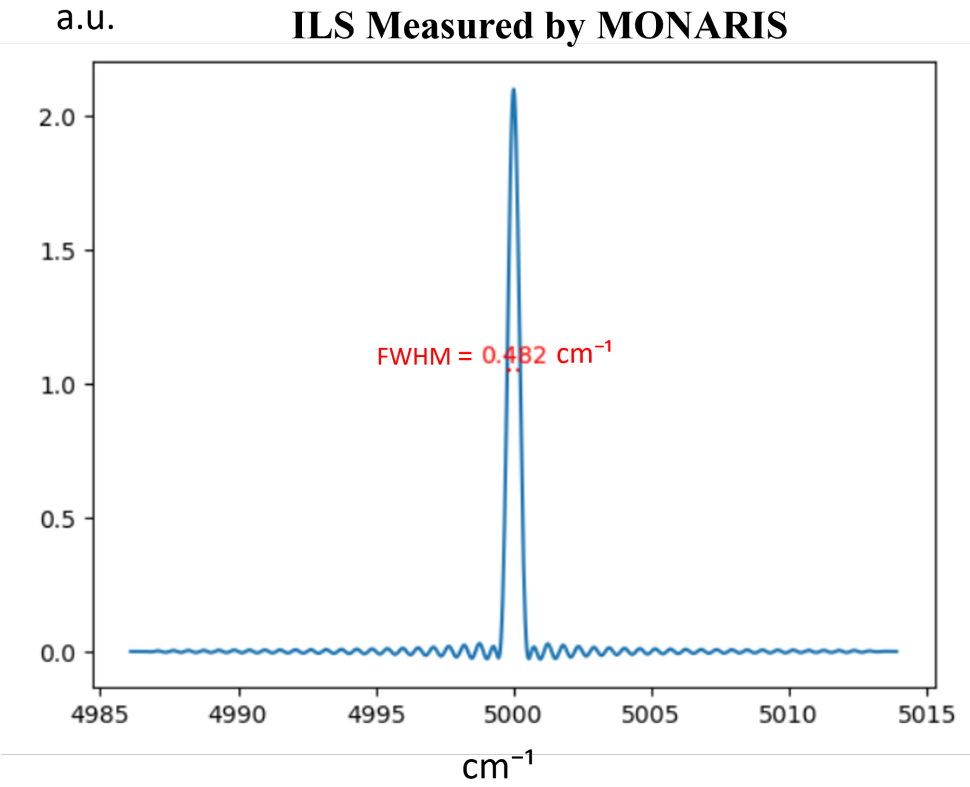


Figure 2.19: ILS calculé par LINEFIT à l'aide des paramètres déterminés par l'équipe de Monaris pour EM27/SUN #130.

2.2.1.4 Système de caisson automatique (SAAS-A02)

Depuis septembre 2024, nous disposons d'un caisson (figure 1.5) étanche et thermalisé. Ce dispositif permet une opération entièrement automatisée de l'EM27/SUN, 24

heures sur 24 et 7 jours sur 7. L'entreprise champardennaise Eloneo se charge désormais de la commercialisation de ce caisson, développé par le LSCE. Dans un premier temps, nous avons utilisé le logiciel Pyra, développé par l'université de Munich, qui permet de piloter l'ensemble du système de mesure [Dietrich *et al.*, 2021, Aigner *et al.*, 2023]. Cependant, depuis Mai 2025, nous utilisons un logiciel développé par le LSCE (SAAS-Pilot) pour l'automatisation du caisson.

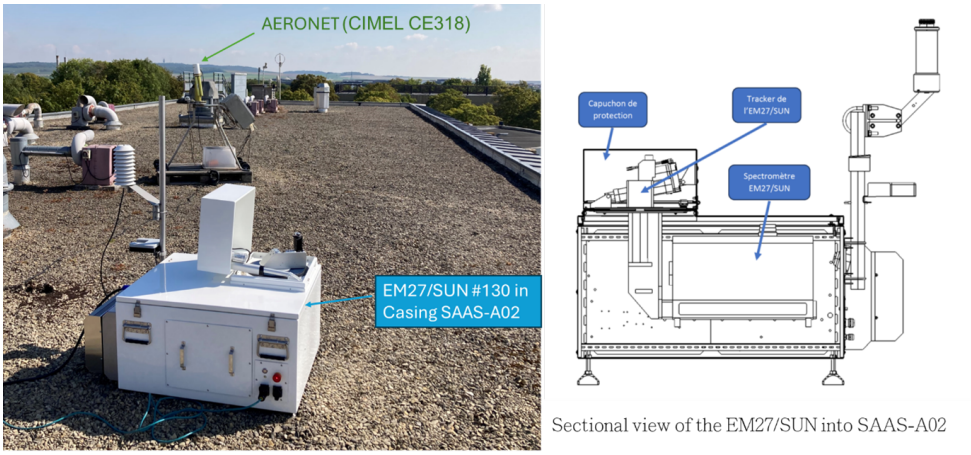


Figure 2.20: Le caisson automatique EM27/SUN du site de GSMA

2.2.2 COCCON, contexte de création et rôle dans la surveillance des gaz traces atmosphériques

Les satellites de mesure des GES ont une importance cruciale pour la surveillance des GES à l'échelle mondiale et pour la détermination des sources et des puits de ces GES. Cependant, la calibration et la validation des observations satellitaires nécessitent des mesures au sol, qui sont indispensables pour garantir leur exactitude et leur fiabilité. Le réseau TCCON (*Total Carbon Column Observing Network*) est une référence dans ce domaine. Depuis 2004, il utilise des spectromètres FTIR (IFS 125HR, Bruker Optics GmbH) pour mesurer les fractions molaires moyennes en colonne de plusieurs GES [Laughner *et al.*, 2023b], sur plus de 30 sites à travers le monde. À partir des spectres d'absorption solaire directe de l'atmosphère mesurés dans le proche infrarouge NIR 3900-15500 cm^{-1} avec une résolution spectrale de 0.02 cm^{-1} (Différence de chemin optique (OPD)

maximale de 45 cm) , des abondances précises et moyennes sur colonne de constituants atmosphériques, notamment CO_2, CH_4, N_2O, HF, CO, H_2O et HDO, sont récupérées [Wunch *et al.*, 2011].
L'IFS 125HR est l'un des spectromètres à transformée de Fourier haute résolution les plus robustes et stables. Cependant, ses dimensions de l'ordre de 1 x 1 x 3 m et son poids de plus de 100 kg le rendent difficile à transporter [Gisi *et al.*, 2012]. De plus, son fonctionnement nécessite une infrastructure importante, incluant une plate-forme de support stable, un système de climatisation et un espace de laboratoire suffisamment grand. Pour répondre à ces limitations, le spectromètre à transformée de Fourier EM27/SUN a été développé. Il présente des caractéristiques similaires à celles de l'IFS 125HR, mais il est plus petit, moins cher et plus facilement transportable. Un système IFS 125HR représente en effet un investissement d'environ 700 k€ (dont 400 k€ pour l'achat de l'instrument), alors que le coût d'un EM27/SUN avec son enceinte de protection est de l'ordre de 200 k€. Il est donc plus adapté aux campagnes sur le terrain, offrant une précision supérieure aux mesures spatiales et la possibilité d'observations diurnes continues par ciel clair [Vogel *et al.*, 2019]. L'objectif principal est d'élargir le réseau TCCON en y ajoutant des spectromètres FTIR à basse résolution correctement calibrés en suivant un protocole d'analyse de données standardisé. Cette opération s'inscrit dans le cadre d'un réseau pour l'exploitation de l'EM27/SUN, nommé *COllaborative Carbon Column Observing Network* COCCON [Tu *et al.*, 2021]. Afin de garantir des standards de qualité communs dans l'ensemble du réseau COCCON, les mesures brutes EM27/SUN sont traitées à l'aide de l'ensemble de logiciels PROFFAST [Feld *et al.*, 2024], dont nous décrirons plus en détail le fonctionnement dans le chapitre 4.

Conclusion du chapitre

Ce chapitre a permis de présenter les bases physiques et instrumentales nécessaires à la compréhension de la spectroscopie FTIR appliquée à la télédétection solaire. Les caractéristiques instrumentales du EM27/SUN ont ensuite été détaillées. Cela a permis de mettre en évidence les paramètres clés influençant la qualité et la résolution des observations. Le cadre opérationnel dans lequel s'inscrivent ces mesures a pu être illustré par l'introduction du réseau COCCON et de l'algorithme d'inversion PROFFAST, depuis

l'acquisition des spectres jusqu'à l'extraction de la colonne totale intégrée de gaz à effet de serre (X_{gaz}). Le transfert radiatif est modélisé et les méthodes numériques utilisées pour résoudre cette équation sont présentées dans le chapitre suivant.

Deuxième partie

Modélisation du transfert radiatif et outils d'inversion des mesures FTIR avec PROFFAST et ARAHMIS

Chapitre 3

L'équation du transfert radiatif : calcul direct

Le Soleil constitue la principale source de rayonnement électromagnétique pour le système Terre-atmosphère. Son spectre s'étend de l'ultraviolet à l'infrarouge et correspond à la distribution de l'intensité du rayonnement en fonction de la longueur d'onde ou du nombre d'onde. Lors de sa propagation dans l'atmosphère terrestre, ce rayonnement interagit avec les différents constituants atmosphériques tels que les molécules de gaz, les aérosols et les nuages. Ces interactions comprennent principalement des processus d'absorption, d'émission et de diffusion qui modifient l'intensité et la distribution spectrale du rayonnement.

Dans le domaine infrarouge, l'absorption moléculaire joue un rôle essentiel. Les transitions vibrationnelles et rotationnelles des molécules atmosphériques produisent des signatures spectrales caractéristiques. L'analyse de ces signatures permet d'identifier et de quantifier les gaz présents dans l'atmosphère.

La description de ces interactions repose sur l'équation du transfert radiatif (ETR), qui décrit l'évolution de l'intensité du rayonnement le long de son trajet dans l'atmosphère. La résolution de cette équation permet de simuler les spectres atmosphériques et de relier les spectres mesurés aux propriétés de l'atmosphère. Dans le cadre de la télédétection solaire par spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR), la modélisation

du transfert radiatif est utilisée pour interpréter les spectres mesurés et déterminer la concentration des gaz atmosphériques. Ce chapitre présente les principes physiques du transfert radiatif ainsi que les méthodes utilisées pour résoudre l'équation correspondante.

3.1 Description du milieu atmosphérique

En sciences de la Terre, l'atmosphère est l'enveloppe gazeuse qui entoure la Terre et qui est maintenue autour d'elle par la gravité. Elle constitue un élément majeur du système terrestre et interagit avec la lithosphère, l'hydrosphère et la biosphère. L'atmosphère s'étend de la surface terrestre jusqu'à plusieurs centaines de kilomètres d'altitude. Sa densité décroît progressivement avec l'altitude sous l'effet du champ de gravité terrestre.

3.1.1 Structure thermodynamique de l'atmosphère

La décroissance de la densité de l'air avec l'altitude résulte de l'équilibre entre la gravité terrestre et les propriétés thermodynamiques du fluide atmosphérique. Dans de nombreux modèles atmosphériques, l'air est approximé à un gaz parfait en équilibre local. Cette hypothèse permet d'établir des relations analytiques entre les trois grandeurs d'état fondamentales que sont la pression, la température et la densité. La variation verticale de ces grandeurs peut être décrite à partir de l'équilibre hydrostatique et de l'équation du gaz parfait. Toutefois, l'atmosphère réelle présente une structure plus complexe.
Les mesures de température en altitude montrent l'existence de régimes thermodynamiques distincts, qui permettent de différencier plusieurs couches atmosphériques. En fonction de l'évolution de la température avec l'altitude, l'atmosphère terrestre est généralement divisée en plusieurs couches superposées (Figure 3.1). La température y décroît ou augmente selon l'altitude, ce qui permet de définir des régions aux propriétés physiques différentes.
La couche la plus proche de la surface terrestre est la troposphère. C'est dans cette région que se produisent la majorité des phénomènes météorologiques. Selon la latitude et la saison, son épaisseur varie entre 8 et 15 kilomètres. Elle contient 80 % de la masse totale de l'atmosphère, ainsi que la majeure partie de la vapeur d'eau, et une grande variété

d'aérosols organiques ou inorganiques. La température y décroît en moyenne de 6,5 °C par kilomètre.

Au-dessus de la troposphère se trouve la stratosphère, qui s'étend de la tropopause (limite entre la troposphère et la stratosphère) jusqu'à une altitude d'environ 50 km. Elle contient très peu de vapeur d'eau, mais la majeure partie de l'ozone (O_3). L'absorption du rayonnement ultraviolet solaire par l'ozone entraîne une augmentation de la température avec l'altitude dans la partie supérieure de la stratosphère, jusqu'à la stratopause. Au-delà de cette dernière, le rayonnement solaire est peu affecté par les couches atmosphériques. La structure verticale de la température et de la pression influence directement les processus d'absorption et d'émission du rayonnement dans l'atmosphère. La modélisation du transfert radiatif nécessite donc également de connaître la composition chimique de l'air et sa variation avec l'altitude. Pour caractériser quantitativement l'abondance des différentes espèces chimiques présentes dans l'air, on utilise généralement le profil de mélange volumique (*Volume Mixing Ratio* **VMR**).

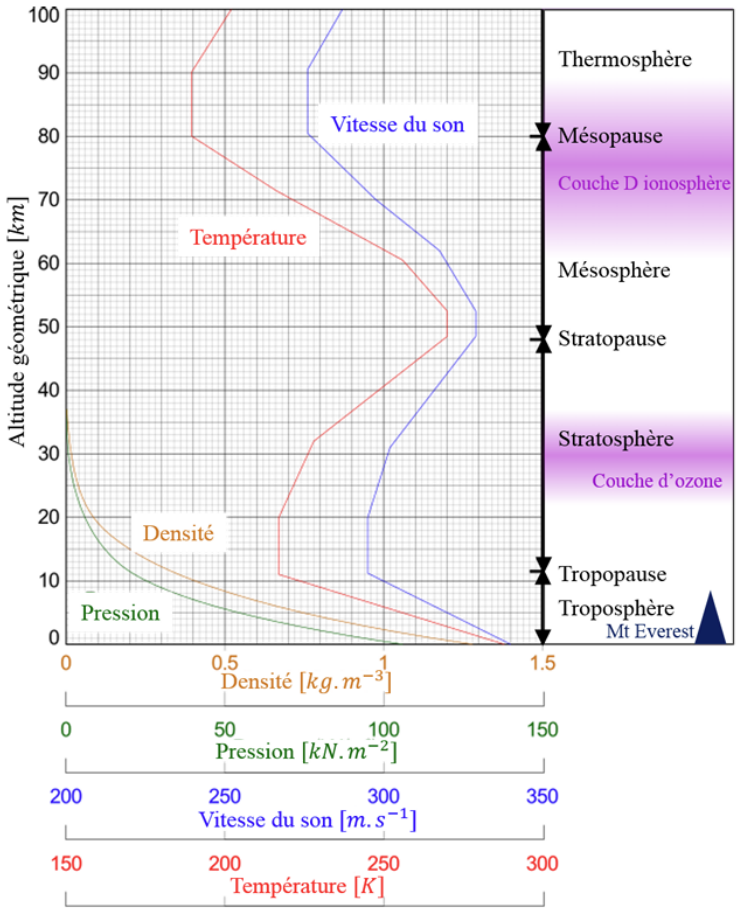


Figure 3.1: Structure verticale des différentes couches atmosphériques, avec les variations de température (en rouge), de pression (en vert), de densité (en marron) et de vitesse du son (en bleu) [Tourasse, 2016].

3.1.2 Profil de mélange volumique VMR

En physique atmosphérique, le rapport de mélange est la proportion entre la quantité d'une substance chimique et la somme de toutes les composantes du volume [Seinfeld et Pandis, 2016]. Le rapport de mélange volumique correspond à la fraction molaire, qui s'établit comme suit :

$$\boldsymbol{\xi}_i = \frac{\boldsymbol{c}_i}{\boldsymbol{c}_{\text{total}}} \tag{3.1}$$

où, c_i est la concentration molaire de l'espèce i et c_{total} la concentration molaire totale de l'air. Selon la loi des gaz parfaits, la concentration molaire totale en tout points de l'atmosphère est :

$$\boldsymbol{c}_{\text{total}} = \frac{\boldsymbol{N}}{\boldsymbol{V}} = \frac{\boldsymbol{p}}{\boldsymbol{RT}} \tag{3.2}$$

Où p est la pression atmosphérique, T la température et R la constante des gaz parfaits. D'après les équations 3.1 et 3.2, le rapport de mélange et la concentration molaire sont donc liés par la formule suivante :

$$\boldsymbol{\xi}_i = \frac{\boldsymbol{c}_i}{\boldsymbol{p/RT}} = \frac{\boldsymbol{p}_i/\boldsymbol{RT}}{\boldsymbol{p/RT}} = \frac{\boldsymbol{p}_i}{\boldsymbol{p}} \tag{3.3}$$

Avec p_i la pression partielle de i.

Contrairement à la concentration, qui dépend directement de la pression et de la température, le rapport de mélange est une grandeur adimensionnelle qui varie peu avec les conditions thermodynamiques. Pour cette raison, il est généralement utilisé pour décrire l'abondance des espèces chimiques dans l'atmosphère. Dans la pratique, les rapports de mélange sont souvent définis par rapport à l'air sec, afin d'éviter les variations liées à la présence de vapeur d'eau.

Les profils verticaux de VMR peuvent être mesurés in situ à l'aide de radiosondes ou d'autres instruments (AirCore, Amulse) embarqués sur des ballons atmosphériques, permettant d'obtenir des observations directes de la composition de l'atmosphère jusqu'à des altitudes de plusieurs dizaines de kilomètres. À l'inverse, les techniques de télédétection atmosphérique reposent sur la mesure du rayonnement traversant l'atmosphère. Les instruments ne mesurent pas directement les concentrations de gaz, mais les signatures spectrales associées à leur absorption. L'interprétation de ces mesures nécessite donc l'utilisation de modèles de transfert radiatif permettant de relier les spectres observés aux profils de VMR des gaz atmosphériques.

3.1.3 Colonne totale intégrée $Xgaz$

La plupart des instruments de télédétection dédiés au suivi des gaz à effet de serre, comme EM27/SUN, permettent d'estimer principalement la colonne totale d'un gaz atmopshérique. Les spectres mesurés contiennent l'information sur l'absorption intégrée du rayonnement solaire lors de sa traversée de l'atmosphère. En général, les mesures infrarouges disponibles ne fournissent pas suffisamment d'informations pour permettre de résoudre cette concentration verticalement [Dogniaux, 2021]. Dans de nombreux cas, les informations spectrales disponibles ne permettent pas de déterminer précisément la distribution verticale du gaz. Les observations sont donc généralement exprimées sous la forme d'une quantité intégrée sur toute la colonne atmosphérique. La colonne verticale d'un gaz X_{gaz} (c'est-à-dire une fraction molaire moyenne sur la colonne). La formule permettant de calculer le nombre total de molécules d'un gaz X intégrées le long de la verticale atmosphérique est la suivante (ce contenu est intégré sur toute l'épaisseur de l'atmosphère) :

$$\boldsymbol{VC_X = \int_{z_s}^{\infty} f_X(z)\, n(z)\, dz} \tag{3.4}$$

Avec $f_X(z)$ est la fraction molaire (humide) du gaz X, $n(z)$ la densité numérique totale de l'air et z_s désigne l'altitude du site par rapport au niveau de la mer. Pour cette raison, il est nécessaire de disposer de données précises concernant les profils verticaux de pression et de température, car n est proportionnel à P/T. En outre, la pression atmosphérique diminue rapidement avec l'augmentation de l'altitude. Cela rend l'intégration directe en altitude plus difficile et potentiellement sensible aux variations des profils atmosphériques. Pour simplifier le calcul, on utilise l'équation hydrostatique. Celle-ci établit un lien entre la variation de pression et la masse d'air située au-dessus d'une couche :

$$\boldsymbol{dp = -g\, m\, n\, dz} \tag{3.5}$$

où g est l'accélération de la pesanteur et m la masse moléculaire moyenne de l'air. On obtient alors :

$$\boldsymbol{n\, dz = -\frac{dp}{g\, m}} \tag{3.6}$$

À partir de l'équation précédente, il est possible de réécrire la colonne verticale sous forme d'intégration en pression :

$$\boldsymbol{VC_X = \int_0^{p_s} \frac{f_X(p)}{g\,m}\,dp} \tag{3.7}$$

Où p_s est la pression à la surface. Ce choix est justifié par le fait que g est bien connu et que m varie faiblement, ce qui limite les erreurs systématiques liées à l'intégration. Toutefois, la présence de vapeur d'eau modifie la composition de l'air en ajoutant un constituant supplémentaire au mélange gazeux. Les fractions molaires des autres gaz sont alors diluées, de sorte que les concentrations exprimées dans l'air humide diffèrent de celles rapportées à l'air sec. Pour éviter cette influence, les résultats sont généralement exprimés en fraction molaire d'air sec, notée f_X^{dry}. En raison de la dilution des autres constituants de l'atmosphère par les molécules d'eau, il est en effet nécessaire d'exprimer les résultats en fraction molaire d'air sec :

$$\boldsymbol{f_X = f_X^{dry}\,(1 - f_{H_2O})} \tag{3.8}$$

Pour faciliter la comparaison entre différentes observations, les résultats sont généralement exprimés sous la forme d'une fraction molaire moyenne sur la colonne atmosphérique, notée X_{gaz}, qui correspond au rapport entre la colonne de gaz et la colonne totale d'air sec :

$$\boldsymbol{X_{gaz} = \frac{VC_{gaz}}{VC_{air}^{dry}}} \tag{3.9}$$

Cette quantité correspond à la moyenne de la fraction molaire du gaz sur toute la colonne atmosphérique, pondérée par la pression et constitue la variation la plus utilisée dans les réseaux de référence, tels que TCCON et COCCON. Il est également possible d'estimer la colonne d'air sec à partir de la colonne d'oxygène (O_2), dont la fraction molaire dans l'air sec est quasi constante (environ 0,2095) [Deutscher *et al.*, 2010]. L'écriture mathématique peut donc se faire de la manière suivante :

$$\boldsymbol{X_{gaz} = 0.2095\,\frac{VC_{gaz}}{VC_{O_2}}} \tag{3.10}$$

L'avantage de cette approche est de réduire plusieurs erreurs systématiques communes aux deux espèces (gaz cible et O_2), notamment celles liées à la variabilité de l'irradiance solaire, aux effets instrumentaux et à certaines incertitudes de la trajectoire optique.

3.2 Équation de transfert radiatif (ETR)

La variation de l'intensité d'un faisceau de rayonnement le long de sa direction de propagation dans un milieu absorbant et émetteur, tel que l'atmosphère, est régie par l'équation de transfert radiatif (ETR). Cependant, en raison de l'inhomogénéité naturelle de l'atmosphère, résoudre cette équation de manière complète est un défi complexe. En effet, elle doit prendre en compte tous les processus radiatifs qui interagissent entre eux de manière non indépendante.

Pour rendre le problème traitable numériquement, on a souvent tendance à passer par une approche unidimensionnelle et verticale de l'ETR. Cette approche numérique réduit le coût de calcul tout en conservant une précision satisfaisante. Elle permet également de réduire les temps de calcul pour de nombreuses applications atmosphériques. Cette approche repose sur l'hypothèse que l'atmosphère peut être considérée comme une série de couches sphériques superposées. La résolution verticale est donc adaptée en fonction de l'altitude. Elle est très fine dans les basses couches, où les gradients de concentration et de température sont importants, puis elle diminue à mesure que l'on s'élève, les couches devenant progressivement plus grossières. En effet, avec l'altitude, les variations sont plus lentes et les processus moins sensibles [Gaudet *et al.*, 2017, Randall *et al.*, 2007].

Dans ce contexte stratifié, la propagation du rayonnement dépend non seulement des propriétés d'absorption et d'émission de chaque couche, mais aussi de leurs propriétés optiques. Les variations de l'indice de réfraction influencent notamment la trajectoire des rayons lumineux. Il s'agit d'un nombre sans unité, souvent noté n, qui est égal au rapport entre la vitesse de la lumière dans le vide c et la vitesse de la lumière dans la couche, soit $n = c/v$ [Michard, 1953]. Comme l'indice de réfraction varie entre les différentes couches atmosphériques, le rayon lumineux subit une succession de déviations élémentaires. En

revanche, l'accumulation de ces déviations se traduit par un trajet globalement courbé (voir la figure 3.2).
Cette approche en colonnes verticales indépendantes découle directement de l'approximation unidimensionnelle adoptée. Chaque colonne atmosphérique est donc traitée indépendamment. Ce traitement se base sur des profils verticaux de température, de pression et de paramètres optiques, et les interactions horizontales entre les colonnes sont par ailleurs négligées. Cette approximation unidimensionnelle permet de décrire le transfert radiatif le long d'une colonne atmosphérique verticale.

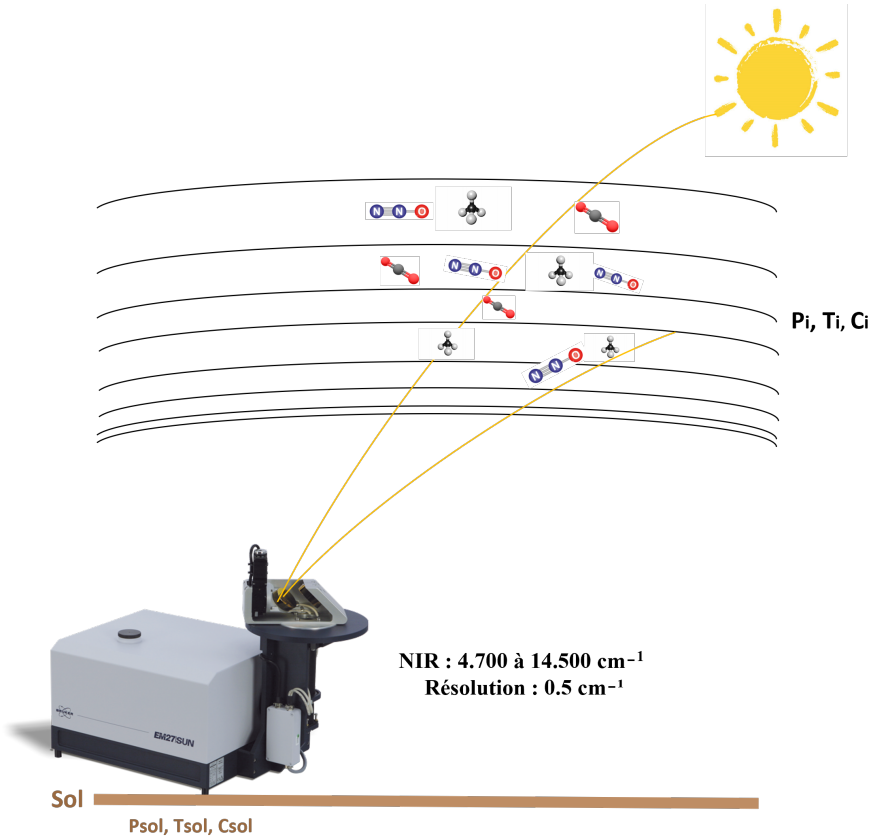


Figure 3.2: Représentation schématique du spectre électromagnétique du soleil en position de visée au zénith traversant les différentes couches de l'atmosphère

La propagation du rayonnement électromagnétique dans l'atmosphère est décrite par l'équation de transfert radiatif (ETR). Cette équation généralise la loi de Beer-Lambert présentée dans la section 2.1.3. Dans l'atmosphère réelle, les propriétés du milieu (pression,

température et composition chimique) varient avec l'altitude On considère le transfert radiatif le long d'un rayon dans le milieu. On note s la coordonnée curviligne le long de la trajectoire du photon (rayon). La quantité ds représente donc un élément infinitésimal de distance le long de la direction de propagation. Le coefficient d'absorption dépend donc de la position le long du trajet optique. La loi de Beer-Lambert que nous avions présentée dans le chapitre 2 équation 2.8, peut alors être écrite sous forme différentielle :

$$\mathbf{d}\boldsymbol{I}(\boldsymbol{\sigma}) = -\boldsymbol{k}_{\boldsymbol{\sigma}}^{\mathrm{abs}}\,\boldsymbol{I}(\boldsymbol{\sigma})\,\mathbf{d}\boldsymbol{s} \tag{3.11}$$

Où k_σ^{abs} est le coefficient d'absorption spectral et ds représente un élément de trajet optique (voir figure 3.3). Cependant, l'atmosphère n'est pas seulement absorbante : elle émet également du rayonnement thermique. Pour décrire de manière cohérente l'évolution de l'intensité du rayonnement en tenant compte simultanément des processus d'absorption et d'émission le long du trajet, on introduit l'équation de transfert radiatif :

$$\frac{\mathbf{d}\boldsymbol{I}_{\boldsymbol{\sigma}}}{\mathbf{d}\boldsymbol{s}} = -\boldsymbol{k}_{\boldsymbol{\sigma}}^{\mathrm{abs}}\,\boldsymbol{I}_{\boldsymbol{\sigma}} + \boldsymbol{j}_{\boldsymbol{\sigma}} \tag{3.12}$$

Où

- I_σ est l'intensité spectrale au nombre d'onde σ,
- k_σ le coefficient d'absorption du milieu,
- j_σ le coefficient d'émission volumique.

La fonction source peut alors être introduite par la fonction suivante :

$$\boldsymbol{S}_{\boldsymbol{\sigma}} = \frac{\boldsymbol{j}_{\boldsymbol{\sigma}}}{\boldsymbol{k}_{\boldsymbol{\sigma}}^{\mathrm{abs}}} \tag{3.13}$$

L'équation de transfert radiatif peut ainsi être réécrite sous la nouvelle forme :

$$\frac{\mathrm{d}\boldsymbol{I_\sigma}}{\mathrm{d}\boldsymbol{s}} = -\boldsymbol{k_\sigma^{\mathrm{abs}}}\ (\boldsymbol{I_\sigma} - \boldsymbol{S_\sigma}) \tag{3.14}$$

Dans une géométrie plane-parallèle, on introduit la coordonnée z normale aux couches du milieu. Si θ désigne l'angle entre la direction du rayon et la normale aux couches, on définit $\mu = \cos\theta$. La relation géométrique entre ds et dz s'écrit :

$$\mathrm{d}\boldsymbol{z} = \boldsymbol{\mu}\,\mathrm{d}\boldsymbol{s} \quad \boldsymbol{et} \quad \mathrm{d}\boldsymbol{s} = \frac{\mathrm{d}\boldsymbol{z}}{\boldsymbol{\mu}} \tag{3.15}$$

Ainsi, ds mesure la distance parcourue le long du rayon, tandis que dz représente la projection verticale de ce déplacement. Cette distinction est illustrée dans la figure 3.3 ci-dessous.

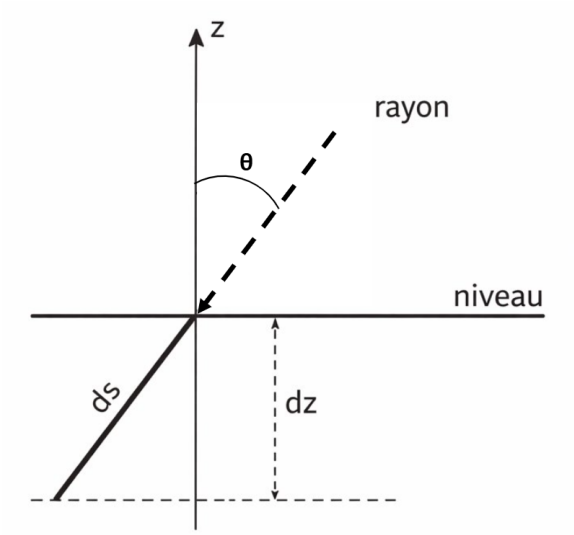


Figure 3.3: Relation géométrique entre la distance élémentaire le long du rayon ds et sa projection verticale dz dans une géométrie plane-parallèle.

Dans l'atmosphère terrestre, les collisions entre molécules sont généralement suff-

isamment fréquentes pour que l'on puisse supposer l'établissement d'un équilibre thermodynamique local (LTE). Dans ce régime, les populations des niveaux d'énergie sont déterminées par la température locale [Avrett, 2008, Pierrehumbert, 2011]. La loi de Kirchhoff relie alors les processus d'émission et d'absorption, et la fonction source est donnée par la loi de Planck :

$$\boldsymbol{S_\sigma = B_\sigma(T)} \tag{3.16}$$

où $B_\sigma(T)$ représente l'intensité spectrale du rayonnement émis par un corps noir à la température T. L'équation de transfert radiatif peut alors s'écrire :

$$\frac{\mathrm{d}\boldsymbol{I_\sigma}}{\mathrm{d}\boldsymbol{s}} = -\boldsymbol{k_\sigma^{\mathrm{abs}}}\left[\boldsymbol{I_\sigma - B_\sigma(T)}\right] \tag{3.17}$$

Cette équation montre que la variation de l'intensité du rayonnement résulte de deux contributions opposées : l'absorption du rayonnement incident et l'émission thermique du milieu.
La solution formelle de l'équation de transfert radiatif le long d'un trajet optique entre deux points s_0 et s peut s'écrire :

$$\boldsymbol{I_\sigma(s) = I_\sigma(s_0)\ \exp\Big(-\tau_\sigma(s_0,s)\Big) + \int_{s_0}^{s} B_\sigma\Big(T(s')\Big)\ \exp\Big(-\tau_\sigma(s',s)\Big)\, k_\sigma^{\mathrm{abs}}(s')\,\mathrm{d}s'} \tag{3.18}$$

Où s représente une position intermédiaire le long du trajet optique entre s_0 et s. L'épaisseur optique $\tau_\sigma(s', s)$ correspond à l'absorption cumulée entre cette position s et le point d'observation s, et est définie par :

$$\boldsymbol{\tau_\sigma(s',s) = \int_{s'}^{s} k_\sigma^{\mathrm{abs}}(s)\,\mathrm{d}s} \tag{3.19}$$

L'intégrale traduit ainsi le fait que chaque couche du milieu émet du rayonnement, dont la contribution au signal mesuré est atténuée lors de sa propagation jusqu'au point d'observation. Finalement, le premier terme représente la transmission du rayonnement

incident, tandis que le second correspond à l'émission thermique du milieu le long du trajet optique.
Dans le cas des observations solaires réalisées avec des spectromètres FTIR tels que l'EM27/SUN, le rayonnement mesuré correspond principalement au rayonnement solaire transmis à travers l'atmosphère. Dans le domaine spectral de l'infrarouge proche utilisé pour l'observation des gaz à effet de serre, l'émission thermique de l'atmosphère est généralement négligeable devant le signal solaire, et les effets de diffusion peuvent être ignorés. L'équation de transfert radiatif peut alors être simplifiée en ne considérant que l'absorption du rayonnement le long du trajet atmosphérique. L'intensité du rayonnement solaire observée au sol peut ainsi être approximée par :

$$\boldsymbol{I_\sigma = I_{\sigma,0}\ \exp(-\tau_\sigma)} \tag{3.20}$$

où $I_{\sigma,0}$ est l'intensité solaire incidente et τ_σ l'épaisseur optique atmosphérique, définie par :

$$\boldsymbol{\tau_\sigma = \int k_\sigma^{\mathrm{abs}}(s)\,\mathrm{d}s} \tag{3.21}$$

Cette relation constitue la base de la modélisation des spectres atmosphériques utilisés pour la restitution des colonnes de gaz à effet de serre.
Le calcul du transfert radiatif nécessite de déterminer le trajet optique du rayonnement à travers l'atmosphère. Celui-ci est utilisé pour évaluer la contribution des différentes couches atmosphériques au signal mesuré. Il est généralement obtenu par une méthode de *ray tracing* dans une atmosphère stratifiée.
L'atmosphère est représentée comme une succession de couches sphériques concentriques autour de la Terre, caractérisées par leurs profils de pression, de température et de composition. La direction initiale du rayon est définie par l'angle zénithal solaire (Solar Zenith Angle, SZA) au niveau de l'instrument.
En raison de la variation de l'indice de réfraction de l'air avec l'altitude, la trajectoire du rayonnement dans l'atmosphère n'est pas strictement rectiligne. L'indice de réfraction n(z)dépend principalement de la pression et de la température et diminue progressivement avec l'altitude. La propagation du rayon est alors décrite par la loi de Snell-Descartes.

Dans une géométrie sphérique, cette relation peut s'écrire sous la forme :

$$\boldsymbol{n(z)\, r(z)\, \sin\theta(z) = p} \tag{3.22}$$

Où

- $n(z)$ est l'indice de réfraction à l'altitude z,
- $r(z)$ est la distance au centre de la Terre,
- $\theta(z)$ est l'angle entre la direction du rayon et la verticale locale,
- p est une constante le long de la trajectoire du rayon, appelée constante de Snell (ou *impact parameter* en anglais).

Cette relation permet de déterminer l'évolution de la direction du rayon lors de sa propagation dans l'atmosphère. La trajectoire est ainsi calculée couche par couche à partir du profil vertical de l'indice de réfraction. La longueur de trajet optique dans une couche atmosphérique comprise entre les altitudes z_i et z_{i+1}est ensuite obtenue en intégrant la distance parcourue par le rayon le long de sa trajectoire (équation 3.15), ce qui permet de déterminer la contribution de chaque couche atmosphérique au trajet total. L'épaisseur optique associée à la couche i, peut alors s'écrire :

$$\boldsymbol{\Delta\tau_i(\sigma) = \int_{s_i}^{s_{i+1}} k_\sigma^{\mathrm{abs}}(s)\, \mathrm{d}s} \tag{3.23}$$

Avec $k_\sigma^{\mathrm{abs}}(s)$ représente le coefficient d'absorption spectral le long du rayon et le nombre d'onde. Nous optons pour cette notation afin de mettre en évidence sa dépendance en nombre d'onde et en position le long du trajet optique. Cette notation est équivalente à k_σ^{abs} utilisée précédemment.

L'épaisseur optique totale est obtenue par sommation des contributions de l'ensemble des couches traversées :

$$\boldsymbol{\tau}(\boldsymbol{\sigma}) = \sum_{i} \boldsymbol{\Delta\tau}_i(\boldsymbol{\sigma}) \tag{3.24}$$

Cette approche permet de représenter de manière réaliste la propagation du rayonnement solaire dans l'atmosphère et de déterminer la contribution relative des différentes couches atmosphériques au signal mesuré. Des programmes de transfert radiatif tels que ceux dérivés de la famille des modèles ligne-par-ligne implémentent ce type de calcul de trajet optique dans une atmosphère sphérique stratifiée, en déterminant les longueurs de trajet et les facteurs de masse d'air associés au rayon solaire [Rodgers, 2000, Clough *et al.*, 2005].

3.3 Bases de données spectroscopiques pour le calcul direct

Comme nous venons de le voir, La télédétection par spectroscopie d'absorption repose sur le calcul de l'épaisseur optique totale (description du trajet optique du rayonnement solaire à travers l'atmosphère, ainsi que sur la quantification de son absorption par les différentes espèces gazeuses). Le trajet optique, déterminé par la géométrie d'observation et la structure verticale de l'atmosphère, conditionne la longueur de parcours du rayonnement dans chaque couche. Parallèlement, les processus d'absorption sont décrits à l'aide de paramètres physiques issus de bases de données spectroscopiques qui caractérisent finement les interactions entre le rayonnement et les constituants atmosphériques. La combinaison de ces deux aspects est au cœur des modèles de transfert radiatif, qui permettent de reproduire les spectres atmosphériques observés.

3.3.1 Bases de données spectroscopiques

Pour obtenir une représentation précise des propriétés optiques du milieu, il est essentiel que les coefficients d'absorption, les largeurs de raies, les intensités et les paramètres de collision soient mesurés avec une grande précision. Ces données sont difficiles à évaluer et à conceptualiser de manière indépendante. Elles sont généralement regroupées dans des bases de données spectroscopiques de référence, élaborées à partir de mesures en

laboratoire et de simulations quantiques.
Plusieurs bases de données spectroscopiques sont aujourd'hui utilisées par la communauté scientifique. Elles se distinguent par leur domaine spectral de couverture, leur précision et leurs domaines d'application. Parmi celles qui sont aujourd'hui des références pour la communauté scientifique, on peut citer :

- **GEISA** (Gestion et Étude des Informations Spectroscopiques Atmosphériques): Développée et maintenue au LMD depuis 1974, GEISA est une base de données qui regroupe les paramètres spectroscopiques de nombreuses molécules atmosphériques, ainsi que des espèces complémentaires (NH_3, HNO_3, PH_3, C_2H_4, C_2H_2, HC_3N, $HCOOH$, NO, SO_2, NO_2) et d'autres gaz de l'atmosphère planétaire. Dans sa version GEISA-2020, la base de données comprend 58 molécules (145 isotopes) et contient 6746987 entrées dans la gamme spectrale de 10^{-6} à 35877 cm^{-1}. Elle inclut notamment une base de paramètres raie par raie, une sous-base de sections efficaces et des informations sur les propriétés optiques des aérosols. Plusieurs missions spatiales actuelles ou planifiées dans l'infrarouge thermique et à ondes courtes (TIR et SWIR) utilisent cette base telles que IASI, IASI-NG, MicroCarb et Merlin [Delahaye *et al.*, 2021].

- **HITRAN** (*High Resolution Transmission*) : Créée au début des années 1970, à la même période que GEISA, cette base de données est l'une des compilations spectroscopiques moléculaires les plus essentielles pour la modélisation du transfert radiatif. L'ensemble des paramètres nécessaires à la modélisation et à la simulation de la transmission ainsi que de l'émission du rayonnement électromagnétique dans les milieux gazeux terrestres et planétaires est rassemblé par cette dernière. HITRAN est intégrée dans de nombreux codes de transfert radiatif, notamment ceux utilisés pour les missions de télédétection avec des spectromètres quelle que soit leur résolution spectrale. Cette intégration est rendue possible par la richesse et la standardisation de HITRAN. Cette base rassemble des paramètres raie par raie, des sections d'absorption infrarouge, des données d'absorption par collision, des indices de réfractions des aérosols et des informations générales. Aujourd'hui, cette base est une référence incontournable. Parmi ces missions, on peut citer OCO-2, OCO-3, TES, GOSAT, ACE, TROPOMI ou GEMS. Elle est aussi utilisée dans plusieurs missions futures

comme FORUM, TEMPO et MethanSat [Gordon *et al.*, 2022].

La base de données HITRAN est celle utilisée par l'algorithme ARAHMIS de notre étude pour pour faire le calcul direct pas l'inversion. HITRAN et GEISA reposent en grande partie sur les mêmes données spectroscopiques issues de la littérature et sont largement utilisées dans les modèles de transfert radiatif [Emma Turner et Cimini, 2022]. Elles contiennent les paramètres spectroscopiques de chaque molécule nécessaires au calcul des sections efficaces, qui caractérisent l'absorption moléculaire en fonction du nombre d'onde. Pour exploiter ces bases de données, il est important d'utiliser des outils précis. Parmi ces différents outils, on trouve les fameux modèles *line-by-line* (LBL) qui occupent une place importante [Wintersteiner *et al.*, 1992, Iacono *et al.*, 2008, Collins *et al.*, 2006].

3.3.2 Modèles de transfert radiatif ligne par ligne (*line by line* LBL)

Le modèle de transfert radiatif ligne par ligne **LBLRTM** (*Line-By-Line Radiative Transfer Model*) représente aujourd'hui une référence pour la modélisation précise des interactions radiatives dans l'atmosphère. Il est principalement utilisé dans le domaine de l'infrarouge et du proche infrarouge, ce qui en fait un outil particulièrement adapté aux études pour lesquelles une haute résolution spectrale est nécessaire. Le profil de Voigt est celui qui est le plus largement utilisé pour la représentation des raies d'absorption. Il est calculé à chaque niveau atmosphérique en considérant les conditions macroscopiques de chaque couche (Pression, température, concentration). Dans des conditions atmosphériques variées, une description cohérente des effets d'élargissement Doppler et collisionnel est garantie par cette approche. Le continuum MT-CKD, qui prend en compte l'absorption continue de la vapeur d'eau ainsi que les principaux gaz atmosphériques (CO_2, O_2, N_2 et O_3), est également intégré. Il prend également en compte l'extinction due à la diffusion de Rayleigh, assurant ainsi une prise en charge complète des mécanismes d'absorption et de diffusion affectant la propagation du rayonnement [Shephard *et al.*, 2009].
Pour calculer l'épaisseur optique, LBLRTM utilise des informations issues de la base de données spectroscopique HITRAN. Comme nous l'avons vu dans la section précédente, cette dernière fournit l'ensemble des paramètres nécessaires à la description des transitions ro-vibrationnelles pour chaque molécule et ses isotopologues ainsi que les données

d'absorption induite par collision (CIA).
L'intégration de ces différents paramètres donne au modèle la robustesse et la fiabilité essentielles. Ces éléments sont particulièrement importants pour les applications de transfert radiatif de haute précision. Les principaux paramètres sont détaillés dans [Clough *et al.*, 2005].
L'ensemble de toutes ces données permet d'opérer le calcul direct, qui peut être représenté de manière générale par la relation suivante :

$$\boldsymbol{y} = \boldsymbol{F}(\boldsymbol{x}) \tag{3.25}$$

où y représente le spectre mesuré, x l'état atmosphérique (par exemple les profils ou les colonnes des gaz traces) et F le modèle direct décrivant la formation du spectre. L'objectif de la télédétection atmosphérique consiste à résoudre le problème inverse, c'est-à-dire à estimer l'état atmosphérique x à partir des spectres mesurés y. Cette estimation est réalisée à l'aide d'algorithmes d'inversion qui ajustent les spectres simulés par le modèle direct aux spectres observés. Cette sous-section présente des exemples de logiciels d'inversion qui sont fondés sur la résolution de l'équation de transfert radiatif. Le modèle direct et le problème inverse, dont il a été question précédemment, seront abordés plus en détail dans le chapitre 5 (section 5.1.3), qui est le cadre dans lequel s'inscrivent ces outils.

3.3.3 Exemples de codes de résolution de l'équation du transfert radiatif

Il existe plusieurs modèles LBL couramment utilisés pour estimer les paramètres géophysiques à partir de mesures indirectes qui sont utilisés pour l'exploitation des missions satellitaires d'observation de la Terre ainsi que des mesures au sol. Parmi ces modèles, on trouve :

- **4A/OP** *Automatized Atmospheric Absorption Atlas OPerational*: est un modèle de transfert thermique rapide et précis, ligne par ligne, extrêmement efficace dans le domaine des rayons infrarouges, développé par le Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMD) [Scott et Chedin, 1981, Tellier *et al.*, 2021]. C'est un outil qui permet de calculer la transmittance, les jacobiennes et la luminance. Cela se fait à

partir d'une description atmosphérique et de surface qui est définie par l'utilisateur. Il est basé sur une table de consultation comprimée des profondeurs optiques, nommée Atlas, déterminées à partir d'atmosphères de référence grâce à STRANSAC [Tellier *et al.*, 2021]. Le modèle intégral, ligne par ligne et couche par couche, est un programme pour de multiples applications scientifiques, élaboré en collaboration par LMD et NOVELTIS avec le soutien du CNES.

- **SFIT4** : est un algorithme de transfert radiatif line-by-line et de détermination du profil des constituants atmosphériques applicable aux spectres enregistrés lors de l'absorption et de l'émission solaires dans l'infrarouge. Sa version SFIT2, développée par C. P. Rinsland du centre de recherche *Langley* de la NASA, avec le soutien de B. J. Connor du *National Institute of Water and Atmospheric* Research de *Lauder*, en Nouvelle-Zélande [Bader, 2015], a fait l'objet d'études comparatives qui montrent qu'il s'agit d'un algorithme robuste [Cheng, 2019]. L'implémentation d'un code de calcul ligne par ligne avec mélange de raies du premier ordre et l'algorithme de profil de forme de raie généralisé sont réalisés par SFIT4, qui utilise des données spectroscopiques provenant de HITRAN et d'ATM. Sa géométrie d'observation vers le haut, qui utilise des spectres d'interféromètre à transformée de Fourier, en fait un instrument particulièrement performant. Une matrice de régularisation peut être utilisée, celle-ci étant définie par l'utilisateur. Le *NDACC Infrared Working Group* (NDACC IRWG) utilise SFIT4, l'un des deux codes de récupération standard. Les chercheurs l'utilisent de manière opérationnelle pour valider les satellites et les modèles, évaluer les tendances et effectuer un large éventail de recherches atmosphériques [Hannigan *et al.*, 2024].

- **GFIT** : Ce programme est développé au Jet Propulsion Laboratory (JPL), est utilisé pour l'analyse des spectres du réseau TCCON [Connor *et al.*, 2015]. Il s'appuie sur un ajustement spectral par moindres carrés non linéaires entre les spectres mesurés et les spectres simulés. Le modèle direct utilisé par GFIT calcule les spectres atmosphériques en utilisant une approche ligne par ligne basée sur des profils de Voigt. L'algorithme ajuste ensuite différents paramètres atmosphériques afin d'obtenir la meilleure correspondance possible entre les observations et les simulations [Toon *et al.*, 2016, Wunch *et al.*, 2011].

Conclusion du chapitre

Ce chapitre présente l'équation du transfert radiatif, les principaux mécanismes physiques ainsi que les différentes approches de résolution. Des codes de transfert radiatif sont également présentés à titre d'exemples. Ces éléments soulignent la nécessité de disposer d'algorithmes performants, capables de concilier exactitude physique, efficacité numérique et adaptabilité aux différentes configurations atmosphériques. Le chapitre 4, nous vous présenterons les deux logiciels utilisés dans cette étude. D'une part, PROFFAST permet l'inversion rapide des mesures EM27/SUN. D'autre part, nous avons ARAHMIS, un logiciel de transfert radiatif LBL. Ce dernier est utilisé dans notre étude pour analyser le contenu en informations des données EM27/SUN.

Chapitre 4

Description et principes des logiciels d'inversion PROFFAST et ARAHMIS

Après avoir établi les bases théoriques relatives à la résolution de l'équation du transfert radiatif et exposé les principes du calcul raie par raie, ce chapitre est consacré à la description détaillée des deux logiciels d'inversion PROFFAST et ARAHMIS. Le premier repose sur une approche d'ajustement par facteur d'échelle appliqué aux profils a priori, tandis que le second met en œuvre une méthode d'inversion basée sur le formalisme de Rodgers [Rodgers, 2000] et l'estimation optimale. La description détaillée du formalisme d'inversion et de l'analyse du contenu en information, utilisée notamment dans le cadre d'ARAHMIS, sera présentée au chapitre 5 (section 5.1.3). Le présent chapitre se concentre sur la description des architectures logicielles et des procédures opérationnelles mises en œuvre pour le traitement et l'inversion des spectres acquis par l'EM27/SUN.

4.1 Principe de fonctionnement et description du logiciel PROFFAST

Développé par le KIT (*Karlsruhe Institute of Technology*) dans le cadre du projet COCCON-PROCEEDS sous l'égide de l'ESA, l'algorithme PROFFAST repose sur une procédure d'inversion basée sur un ajustement non linéaire en moindres carrés, consistant à minimiser l'écart entre les spectres simulés par le modèle direct et les spectres observés en ajustant notamment un facteur d'échelle appliqué aux profils atmosphériques a priori (méthode *scaling factor* (Figure 4.2)), afin d'obtenir la colonne totale de gaz à traces, y compris le CO_2, le CH_4 et le CO. Destiné principalement aux spectromètres FTIR à basse résolution, le logiciel PROFFAST analyse les gaz traces de manière quantitative [Frey *et al.*, 2021, Pollard *et al.*, 2022, Tu *et al.*, 2024].

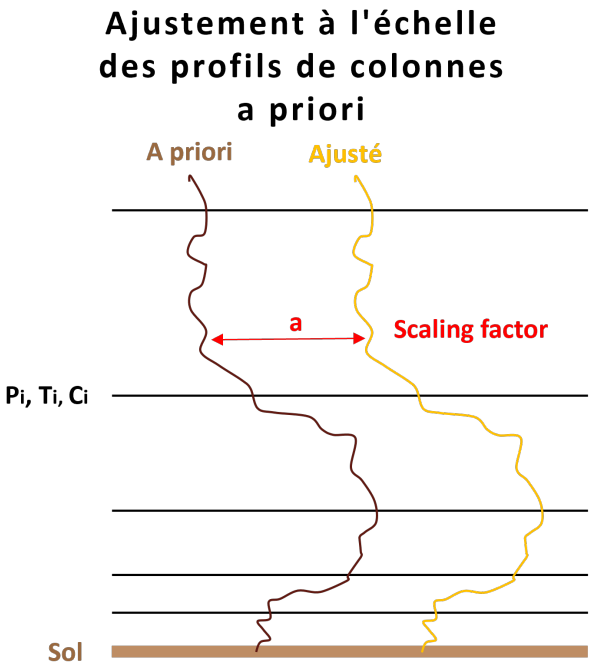


Figure 4.1: Ajustement par la méthode de calcul du facteur d'échelle (Scaling factor)

Le traitement des interférogrammes bruts est effectué par le logiciel PROFFAST.

Ce traitement comprend trois étapes :

4.1.1 Prétraitement (Preprocess)

Cette étape consiste à convertir les interférogrammes bruts enregistrés avec EM27/SUN. Ces derniers sont convertis en spectres dans le domaine du nombre d'onde σ par transformée de Fourier, puis un contrôle qualité est appliqué à ces derniers. Cette opération permet de vérifier le niveau continu (DC) de l'interférogramme (après lissage par moyenne glissante), afin de détecter d'éventuelles mesures dégradées (nuages, mauvaise qualité de suivi). Par défaut, les interférogrammes dont le DC moyen est inférieur à 0,5 et dont la variation est supérieure à 0,1 sont rejetés [Herkommer *et al.*, 2024, Feld *et al.*, 2024].

4.1.2 Calcul des épaisseurs optiques (Pcxs)

À la suite du pré-traitement, l'étape *PCXs* permet de calculer les sections efficaces d'absorption moléculaire. Ce calcul est effectué à partir d'un profil météorologique et des profils VMR des gaz traces issus de la méthode TCCON et il servira ensuite à inverser tous les spectres d'une même journée sans modification des paramètres macroscopiques excepté pour la valeur de la pression au sol. La représentation des conditions atmosphériques spécifiques du jour et l'utilisation de ces sections efficaces dans la restitution des spectres s'effectuent par tabulation en fonction de la masse d'air. Ces éléments sont essentiels pour l'étape suivante de restitution des concentrations atmosphériques [Pollard *et al.*, 2022, Feld *et al.*, 2024].

4.1.3 Inversion (Invers)

Le traitement se termine par le module *Invers*, après les étapes de *Preprocess* et *PCXs*. L'inversion des abondances moyennes en colonne des gaz traces à partir des spectres est réalisée lors de cette dernière étape. Un algorithme d'ajustement par moindres carrés est alors appliqué pour ajuster les profils atmosphériques. Si nécessaire, le module

peut également ajuster la pression de surface afin de la maintenir à la pression mesurée au moment de l'observation [Pollard *et al.*, 2022, Feld *et al.*, 2024].

4.1.4 Automatisation de PROFFAST

Au cours de ma première année de thèse, j'ai consacré une grande partie de mon travail à l'optimisation et à l'automatisation de la chaîne de traitement des données acquises par le spectromètre EM27/SUN avec le logiciel PROFFAST.
À ce stade, la chaîne de traitement a été migrée progressivement vers la nouvelle génération PROFFAST2, avec l'utilisation successive des versions 2.0, 2.1, 2.3, puis 2.4. Lors de l'intégration des premières versions de PROFFAST2, j'ai identifié une limitation liée à l'utilisation des profils atmosphériques de référence actuels GGG2020 du réseau COCCON. Les tests effectués durant cette phase ont mis en évidence un problème dans leur prise en compte au sein de la chaîne de traitement, qui pourrait avoir des répercussions sur les restitutions atmosphériques. Cette anomalie a été signalée aux développeurs de PROFFAST, qui l'ont identifiée puis corrigée dans les versions ultérieures du logiciel. Cette étape met en lumière l'importance cruciale de la phase de validation qui a été menée au cours de cette thèse. Cette validation a permis deux choses : l'optimisation de la chaîne de traitement et la contribution à l'amélioration de l'outil utilisé par la communauté COCCON.
Pour rendre ce traitement plus robuste et plus efficace, j'ai développé une série de scripts permettant d'automatiser la préparation des fichiers d'entrée requis par les différents sous-programmes de PROFFAST. À l'origine, cette étape était réalisée manuellement. Elle impliquait la modification de nombreux paramètres et la création de plusieurs fichiers de configuration. Ces fichiers étaient créés pour chaque journée de mesure et chaque série de spectres.
Finalement, cette automatisation a permis de réduire significativement le temps de traitement, tout en améliorant la structuration, la traçabilité et l'organisation des données. Cette méthodologie systématique facilite la gestion des informations et simplifie les analyses ultérieures, ce qui est particulièrement utile. Les principales étapes automatisées sont présentées de façon synthétique dans l'organigramme ci-dessous.

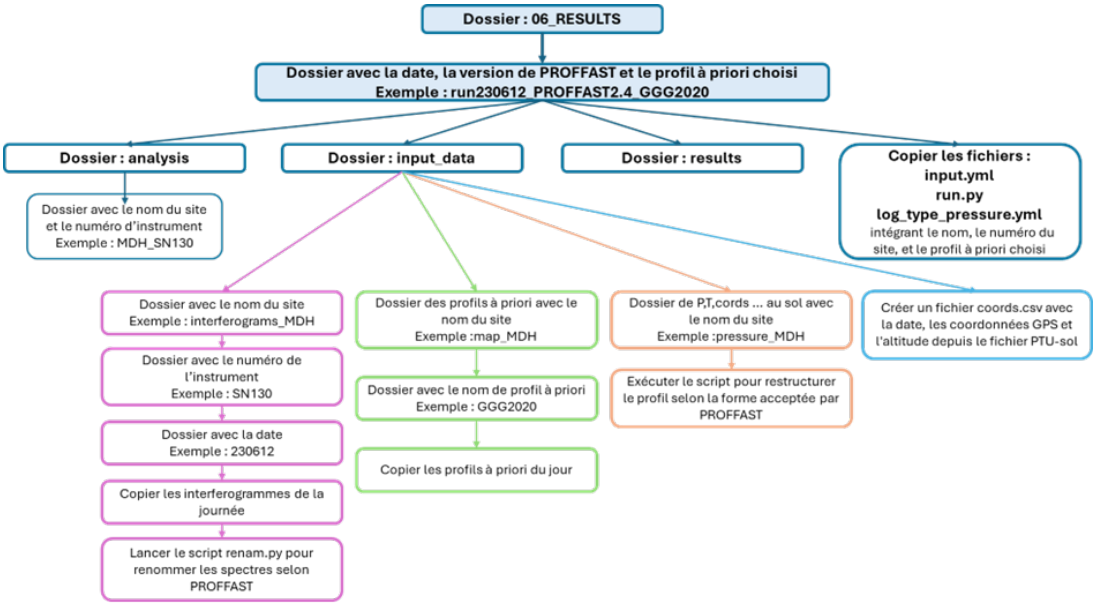


Figure 4.2: Organigramme des étapes automatisées de traitement des données EM27/SUN avec PROFFAST

Cette étape d'automatisation a constitué une base essentielle pour le traitement quotidien automatisé de nos données EM27/SUN qui est en cours de réalisation par Bruno Grouiez et Mustapha Id Chouaib, notamment pour la demande de profils a priori GGG et pour le lancement du traitement des données avec PROFFAST (paramétrage automatisé des fichiers yml d'input).

4.1.5 Site Moulin de la Housse et la variation saisonnière des GES

Moulin de la Housse (MDH) est notre site dédié à l'étude des GES et des processus atmosphériques. Il est équipé d'une large gamme d'activités de mesure de la surface et de la colonne atmosphérique. Les mesures de surface comprennent des campagnes par drone ainsi qu'une tour à flux intégrée au réseau ICOS-Atmosphere. La mesure de la composition atmosphérique inclut également des expériences menées avec des ballons pour étudier les GES. Ces mesures sont effectuées en partenariat avec le LMD et le LSCE, et utilisent des instruments AirCore *(balloo-borneatmospheric airsampler)*, ainsi que des

mesures de la colonne atmosphérique avec l'instrument EM27/SUN de notre étude. Des mesures d'aérosols sont également réalisées par ballon dans le cadre du réseau BALNEO (*Balloon Network for Stratospheric Aerosol Observations*). Dans le cadre de campagnes de mesure nationales et internationales, des travaux sont menés. C'est notamment le cas du projet MAGIC, dans lequel j'ai eu la chance de participer en 2023. Celle-ci s'est déroulée en France, aux alentours de Reims (région Grand Est), du 11 au 21 septembre 2023. Son but était d'étudier les émissions anthropiques de CO_2 et de CH_4 de cette ville européenne de taille moyenne. J'ai eu la responsabilité du déploiement d'un des quatre EM27/SUN installés aux alentours de la ville pendant cette campagne. Dans la figure 4.3, on peut voir un exemple pour le 19 septembre 2023. Ce jour-là, cinq spectromètres EM27/SUN ont été installés dans le sens du vent. Le spectromètre de Reims #130 a joué le rôle de référence, avec une installation avant la ville, et les autres ont été placés après (la carte à gauche de la figure 4.3). La figure 4.3 à droite montre la variation de XCO_2 pour les différents instruments au cours de la journée.

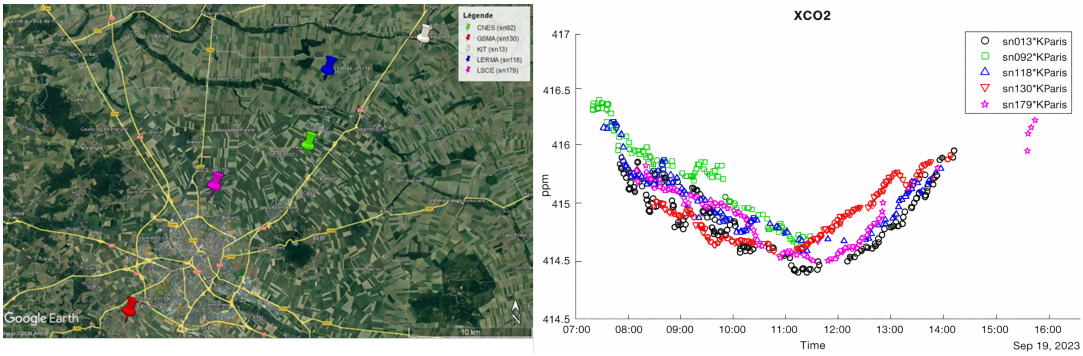


Figure 4.3: Exemple de la journée du 19 septembre 2023 de l'événement MAGIC2023 : à gauche, la carte d'installation des différents spectromètres EM27/SUN, et à droite, la variation de XCO_2 au cours de la journée pour les cinq spectromètres.

4.1.5.1 Variation saisonnière des GES sur le site MDH avec PROFFAST

Le site du Moulin de la Hausse est équipé d'une tour ICOS (Integrated Carbon Observation System)destinée à renforcer les mesures des GES au sol, et ce pour les deux

altitudes 24 et 48 mètres. Le programme ICOS a pour objectif de fournir des données standardisées sur les concentrations de GES dans l'atmosphère ainsi que sur les flux de carbone entre l'atmosphère, les terres et les océans. Avec ses plus de 170 stations de mesure réparties dans 16 pays européens, la tour du MDH est la quatrième station de ce type en France [ICO, 2026]. Un spectromètre Picarro, basé sur la technologie de spectroscopie par décroissance de cavité (CRDS) [Keita, 2023], est installé à la base de la tour. L'air est acheminé depuis deux hauteurs, 24 et 48 mètres, vers l'instrument par des lignes de prélèvement. Cela permet de réaliser des mesures précises des concentrations de gaz aux niveaux d'échantillonnage.

Le cycle annuel a pu être comparé entre les mesures de l'EM27/SUN et celles d'ICOS grâce aux données disponibles de juin 2022 à la fin 2023. La figure 4.4 montre que l'EM27/SUN et la tour présentent tous deux le cycle annuel de CO_2, mais l'analyse des périodes de transition, en particulier entre mai et juin 2023, révèle une baisse continue des niveaux de CO_2 dans les mesures ICOS, prélevées à une altitude constante de 48 mètres au-dessus du sol. Ces dernières sont influencées par des sources locales telles que la respiration des plantes, les activités humaines (trafic, industrie) et les variations diurnes. Elles reflètent donc principalement les processus locaux de la couche limite atmosphérique. Contrairement à l'EM27/SUN, où les mesures de CO_2 sont intégrées sur toute la colonne atmosphérique (de la surface jusqu'à environ 70 km d'altitude), les variations sont plus représentatives de la variation annuelle globale sans effet local. En général, les sources de CO_2 à la surface n'ont pas d'effet direct sur la haute atmosphère. Cela peut entraîner un décalage du cycle saisonnier observé par rapport aux mesures au sol. Par ailleurs, les pics de CO_2 enregistrés au niveau de la surface prennent du temps à se propager et à influencer les niveaux plus élevés de l'atmosphère. En effet, les profils verticaux montrent toujours des gradients importants dans la basse atmosphère [Li *et al.*, 2014].

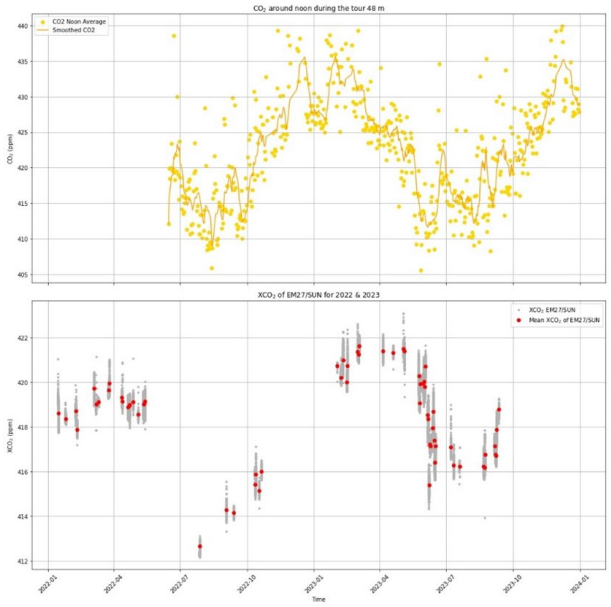


Figure 4.4: Cycle annuel EM27/SUN et ICOS. En haut, données ICOS moyennées et lissées autour de midi. En bas, variations journalières EM27/SUN en gris, moyennes en rouge

4.2 Présentation générale de l'algorithme ARAHMIS et la calibration radiométrique

Le second logiciel que nous avons utilisé pour exploiter des données provenant de notre EM27/SUN est Arahmis. Comme nous allons le montrer, il nous a permis de réaliser une étude sur l'analyse du contenu en information de notre instrument ce qui n'a jamais été réalisé jusqu'ici dans aucune étude publiée. Cette analyse fait l'objet d'une publication en cours d'écriture au moment ou nous rédigeons le présent manuscrit.

4.2.1 Principe de fonctionnement général de ARAHMIS

L'algorithme de transfert radiatif raie par raie ARAHMIS (*Atmospheric Radiation Algorithm for High-spectral Measurement from Infrared Spectrometer*) a été développé

en C++ par Herbin et Ducos en 2015 dans le cadre de leurs travaux de recherche au Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA). Une architecture en deux étapes distinctes sert de base. La première correspond au modèle direct, qui permet de simuler de manière rigoureuse un large ensemble de configurations d'observation dans les domaines du proche infrarouge, du moyen infrarouge et de l'ultraviolet. Cette étape considère l'ensemble des processus radiatifs pertinents, notamment l'absorption et l'émission atmosphérique, ainsi que les effets liés aux aérosols. La deuxième étape repose sur la récupération (inversion) des paramètres atmosphériques.

ARAHMIS permet de réaliser des inversions selon différentes approches d'observation, notamment des stratégies *top-down* basées sur des mesures satellitaires et *bottom-up* reposant sur des observations au sol, comme celles issues d'instruments FTIR comme l'EM27/SUN. Cette flexibilité permet de relier les observations locales aux dynamiques atmosphériques à plus grande échelle. Celle-ci peut être mise en œuvre selon deux approches différentes, soit en utilisant la méthode du SF (*Scalling Factor*, ou encore en français Facteur d'échelle) , soit en résolvant l'ETR. Dans le cadre de la résolution de problèmes nécessitant une approximation rapide, la méthode du facteur d'échelle offre une solution efficace sur le plan informatique. Pour les analyses nécessitant une description plus exhaustive des interactions radiatives, la résolution complète de l'équation de transfert radiatif est adaptée.

Parmi les méthodes d'observation intégrées dans ARAHMIS, on trouve également un outil d'inversion destiné au traitement de données spectrales acquises au sol, comme celles de l'instrument CHRIS (*Compact High Resolution Imaging Spectrometer*), qui possède une base très similaire à celle de l'EM27/SUN, mais avec une gamme spectrale plus étendue dans le moyen infrarouge. La configuration du spectromètre a dû être revue pour intégrer des détecteurs moyen IR et une plus grande résolution, et ses dimensions sont donc un peu plus grandes qu'un EM27/SUN [El Kattar *et al.*, 2020]. Il est également reconnu comme un outil de référence pour la préparation scientifique, l'exploitation et la validation de missions spatiales, telles que IASI-NG [Alalam *et al.*, 2024], Biodiversity, FORUM et MicroCarb.

Pour assurer la récupération robuste des paramètres atmosphériques à partir des spectres utilisés lors du processus d'inversion, l'algorithme ARAHMIS nécessite d'avoir en entrée des spectres en unité de radiance. Cependant, les spectres acquis avec l'instrument EM27/SUN n'ont pas d'unité car le processus de transformation de Fourier ne permet

pas d'accéder à cette information. Pour permettre leurs traitements avec ARAHMIS, il est indispensable de passer par une étape d'étalonnage radiométrique, c'est à dire de les convertir en radiance ($\mathrm{W\,m^{-2}\,sr^{-1}\,cm^{-1}}$).
Cette conversion devra permettre de prendre en compte la réponse instrumentale de notre EM27/SUN. Celle-ci comprends, entre autre, les variations de la réactivité du détecteur avec la variation de la longueur d'onde, la réflectivité des différents miroirs du système optique de EM27/SUN, ainsi que les contributions du bruit radiométrique. Cette conversion constitue une étape essentielle pour garantir la cohérence et la fiabilité des simulations et des inversions réalisées avec ARAHMIS.

4.2.2 Étallonnage radiométrique

La méthode initialement proposée par [Revercomb *et al.*, 1988] sert de base au principe. Elle consiste à déterminer deux paramètres d'étalonnage, la pente m et le décalage b. Ces deux paramètres définissent entièrement la réponse de l'instrument à chaque nombre d'onde. Ils permettent aussi de récupérer le spectre de radiance selon la formule suivante :

$$\boldsymbol{L = \frac{S - b}{m}} \tag{4.1}$$

Où S est le spectre brut enregistré selon la norme COCCON et obtenu après le processus FFT.
Pour déterminer ces deux paramètres, nous devons connaître la réponse de l'instrument en fonction de l'intensité de l'observation solaire. Revercomb et al. ont démontré qu'il suffisait de deux spectres enregistrés pour déterminer cette réponse. Une mesure « froide » et une mesure « chaude ». Pour la mesure « froide », nous avons utilisé un corps noir à cavité de type HGH RCN1250N2, caractérisé par une émissivité supérieure à 0,99 et fourni par le laboratoire d'optique atmosphérique (LOA) [El Kattar *et al.*, 2020]. Ce dispositif a servi à obtenir un spectre à 1523 K à l'aide du spectromètre EM27/SUN numéro 130. Le spectre du corps noir « chaud » a été enregistré par notre EM27/SUN dans des conditions optimales (miroir nettoyé, ciel dégagé et vers midi solaire). Les pentes m et les décalages

b mentionnés précédemment peuvent être obtenus à l'aide des deux équations suivantes :

$$\boldsymbol{m} = \frac{\boldsymbol{S_c} - \boldsymbol{S_h}}{\boldsymbol{B_\vartheta(T_c)} - \boldsymbol{B_\vartheta(T_h)}} \tag{4.2}$$

$$\boldsymbol{b} = \frac{\boldsymbol{S_c}\,\boldsymbol{B_\vartheta(T_h)} - \boldsymbol{S_h}\,\boldsymbol{B_\vartheta(T_c)}}{\boldsymbol{B_\vartheta(T_h)} - \boldsymbol{B_\vartheta(T_c)}} \tag{4.3}$$

S_c représente le spectre froid à 1523 K obtenu à l'aide du corps noir à LOA, et S_h correspond au spectre solaire maximal mesuré avec EM27/SUN lors de notre journée d'étude. La quantité $B_\vartheta(T_c)$ indique la radiance du corps noir calculée à 1523 K à l'aide de la loi de Planck, tandis que $B_\vartheta(T_h)$ représente la radiance du corps noir à 6011 K, telle que déterminée par les spectres solaires récents du LATMOS (`http://bdap.ipsl.fr/voscat/spectressolaires.html`). Avant d'utiliser ce spectre solaire, il est important de prendre en compte les paramètres supplémentaires pour l'étalonner aux conditions sous-jacentes à la mesure du spectre de référence. La section suivante présente une explication détaillée de la technique d'adaptation utilisée.

4.2.2.1 Adaptation du spectre solaire

Le spectre solaire reçu à la surface de la Terre est en effet modifié par les interactions avec les aérosols et les molécules atmosphériques lors de son passage. Ce phénomène dépend notamment de l'angle zénithal solaire (SZA). Pour considérer tous ces effets, nous avons choisi d'utiliser l'équation suivante [de La Casinière *et al.*, 2005] pour un SZA inférieur à 75 ° :

$$\mathbf{AOD} = \mathbf{cos(SZA)}\ \mathbf{ln}\left(\frac{\boldsymbol{K_d}\,\boldsymbol{I_{0\lambda}}}{\boldsymbol{I_\lambda}}\right) - \mathbf{ROD} - \boldsymbol{k_0\Omega} \tag{4.4}$$

où

- K_d est le rapport entre la distance réelle et la distance moyenne Soleil-Terre,

- $I_{0\lambda}$ et I_λ sont respectivement la luminance spectrale normale directe extraterrestre et sa valeur au niveau du sol,

- ROD est la profondeur optique de Rayleigh,

- AOD est la profondeur optique des aérosols,

- k_0 et Ω sont respectivement le coefficient d'absorption de l'ozone et la quantité d'ozone.

En supposant que la variation saisonnière de la distance entre la Terre et le Soleil est négligeable dans cette étude, nous avons alors supposer que $K_d = 1$. En outre, l'instrument fonctionne dans le proche infrarouge (NIR), ce qui signifie que la contribution de l'ozone à l'absorption dans cette région est négligeable. Par conséquent, $k_0\Omega$, qui représente l'absorption par l'ozone, est approximativement égal à zéro. Dans ces conditions, l'expression 4.4 peut être simplifiée pour obtenir l'équation suivante, utilisée pour adapter le spectre solaire aux conditions atmosphériques :

$$\boldsymbol{I_\lambda = I_{0\lambda}\, e^{-\frac{AOD + ROD}{\cos(SZA)}}} \tag{4.5}$$

La profondeur optique de Rayleigh (ROD) a été calculée à l'aide de la formule de [Hansen et Travis, 1974], où λ est la longueur d'onde, exprimée en micromètres (μm) :

$$\boldsymbol{ROD = 0.008569\,\lambda^{-4}\left(1 + 0.0113\,\lambda^{-2} + 0.00013\,\lambda^{-4}\right)} \tag{4.6}$$

Le réseau AERONET nous permettra d'accéder à ces données relatives aux aérosols depuis notre site du Moulin de la Hausse. Le ROD est directement accessible, mais pour l'AOD, il fournit trois nombres d'onde spécifiques à notre zone spectrale (6097,56; 9803,92 et 11494,25 cm^{-1}) que nous allons exploiter. À partir de ces trois valeurs, la loi d'Ångström permet d'estimer la variation de l'AOD en fonction du nombre d'ondes [Diémoz *et al.*, 2016]. Nous pouvons ainsi extrapoler les valeurs de l'AOD sur toute la zone spectrale à l'aide de l'équation suivante :

$$\mathbf{AOD}(\boldsymbol{\lambda}) = \boldsymbol{\beta}\,\boldsymbol{\lambda}^{-\boldsymbol{\alpha}} \tag{4.7}$$

La valeur de λ est exprimée en micromètres (μm), et les exposants α et β sont déterminés à partir de trois paires de valeurs AOD et λ (voie 1). L'application du logarithme à l'AOD permet d'obtenir une relation linéaire de la forme $log(AOD) = a.log(\lambda) + b$. En utilisant la régression linéaire sur ces trois points, les exposants d'Ångström sont alors dérivés : $\alpha = -a$ et $\beta = e^{-b}$. La figure suivante présente notre calcul de l'AOD le long de notre zone spectrale.

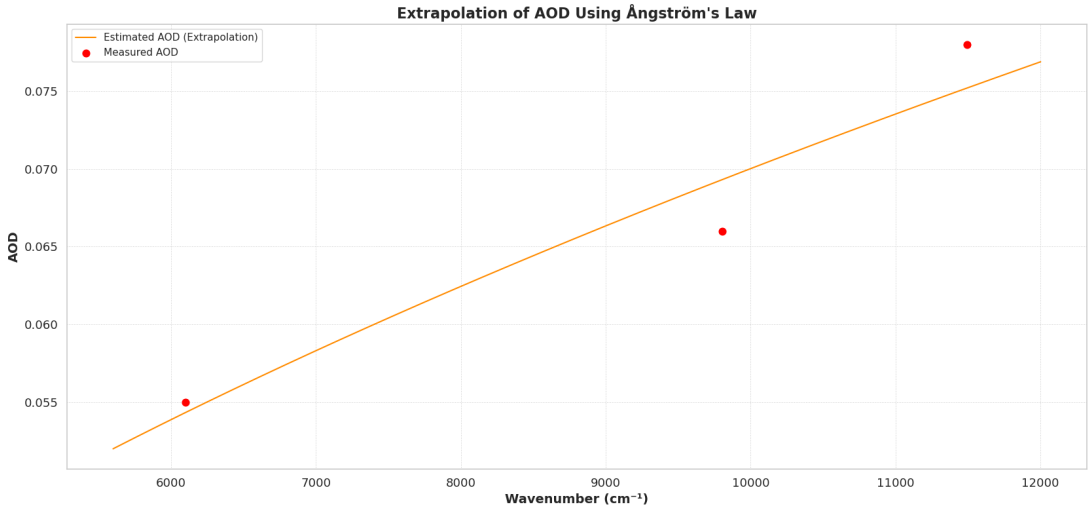


Figure 4.5: Extrapolation de l'AOD à l'aide de la loi d'Ångström le long de notre zone spectrale

Pour la suite de notre procédure, le spectre solaire fourni par le LATMOS a été adapté, puis une procédure de lissage fondée sur une modélisation de l'enveloppe supérieure a été mise en œuvre. Cette procédure de lissage est guidée par des points sélectionnés manuellement à l'aide de l'interpolation PCHIP (*Piecewise Cubic Hermite Interpolating Polynomial*) [Khidr et Mahmood, 2025]. Cette interpolation préserve la monotonie et les

caractéristiques locales de forme, tout en évitant les oscillations parasites. La correction du spectre solaire implique la prise en compte de l'effet de la présence des aérosols a l'aide du AOD et SZA au moment de l'enregistrement du spectre d'étude et le lissage des spectres nécessaires pour calculer les deux paramètres m et b. La figure 4.6 présente la variation de ces coefficients en fonction du nombre d'ondes. Ces derniers ont ensuite été appliqués à notre spectre d'étude, en suivant la relation définie par l'équation (4.1). Les figures 4.7 et 4.8 illustrent respectivement le spectre brut acquis à l'aide de l'instrument EM27/SUN avec son lissage pour montrer la monotonie de la méthode d'interpolation PCHIP et le spectre en radiance obtenu après application de la calibration radiométrique.

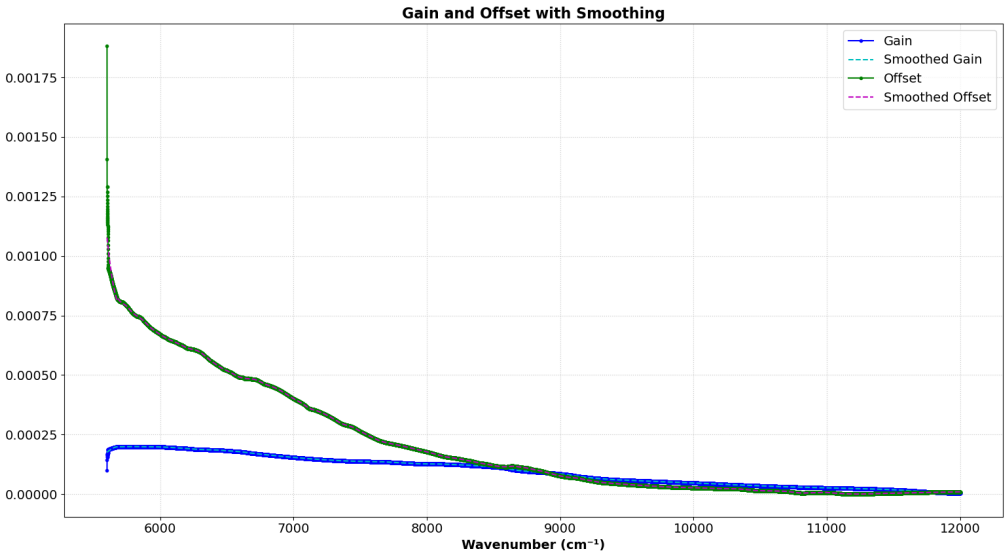


Figure 4.6: La variation calculer des deux paramètres a et b en fonction de nombre d'ondes.

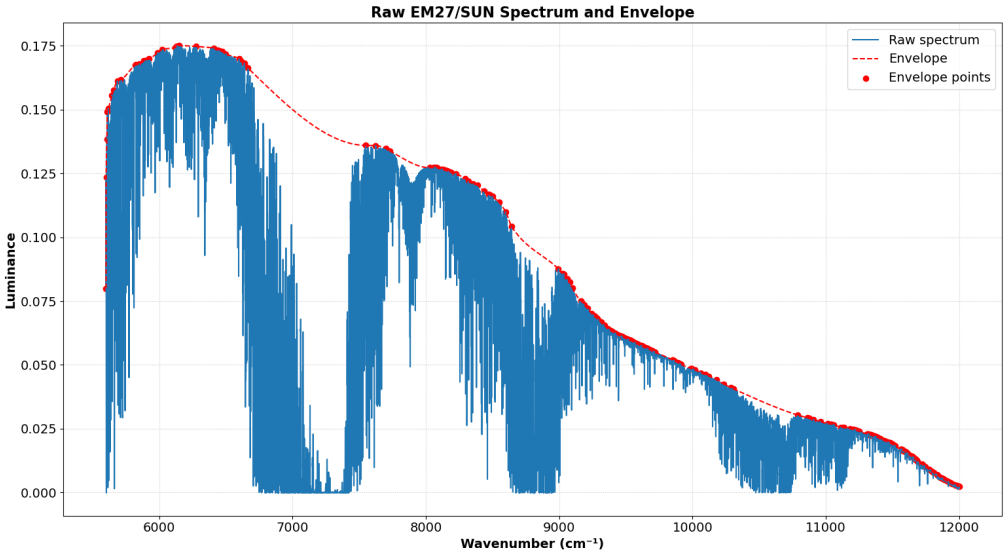


Figure 4.7: Spectre brut EM27/SUN et son lissage.

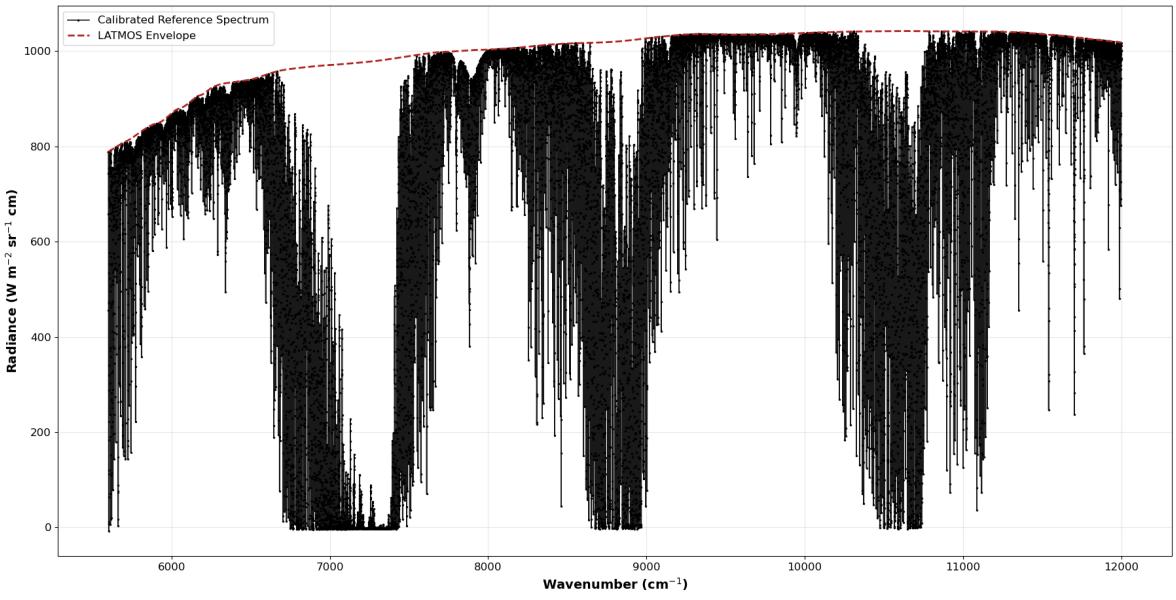


Figure 4.8: Spectre EM27/SUN calibré en radiance.

4.3 Paramètres d'entrée du logiciel ARAHMIS

Comme nous l'avons indiqué précédemment, l'algorithme ARAHMIS est un outil polyvalent qui peut être utilisé aussi bien pour les mesures au sol que pour les observations satellitaires. Cependant, son utilisation nécessite d'adapter certains paramètres en fonction de l'instrument utilisé. Cette section présente ainsi l'ensemble des paramètres intégrés et ajustés spécifiquement pour les mesures acquises avec l'instrument EM27/SUN.

4.3.1 Profil atmosphérique a priori

ARAHMIS utilise de base les profils ATM (format de fichier atmosphérique), donc pour nous rapprocher de la méthodologie de COCCON, nous avons opté pour les mêmes a priori que COCCON, à savoir GGG2020. L'algorithme ginput, développé pour le réseau TCCON [Laughner *et al.*, 2023a], génère huit profils atmosphériques par jour, à raison d'un toutes les 3 heures. Le traitement réalisé par PROFFAST consiste à interpoler les trois profils autour de midi solaire (i.e. l'heure utc du zenith local) pour produire un profil unique. Ce profil est utilisé comme référence pour la suite du traitement. Nous avons donc opté pour ce profil interpolé afin de réduire les écarts potentiels dus au choix du profil a priori. Cela permet de garantir une meilleure cohérence entre les résultats de PROFFAST et ceux de l'algorithme ARAHMIS.
Les mesures *in situ* de température et de pression enregistrées lors de l'acquisition du spectre de référence ont été intégrées explicitement dans le premier niveau du profil a priori. Cette étape est essentielle, car elle permet d'ancrer le profil atmosphérique dans les conditions réelles d'observation et contribue ainsi à améliorer la robustesse de l'inversion. Pour finir, notre script intègre ces deux paramètres pour le premier niveau du profil et le convertit au format ATM. Cette conversion garantit que le profil atmosphérique est compatible avec le modèle de transfert radiatif, ce qui est une condition essentielle au bon fonctionnement du modèle.

4.3.2 Intégration des données HITRAN et des absorptions CIA dans ARAHMIS

Dans la version 0.8 d'ARAHMIS, le spectre du modèle direct est calculé à partir de la base spectroscopique HITRAN 2020 [Gordon *et al.*,], récemment mise à jour, et les raies sont représentées par des profils de Voigt. La prise en compte des effets de continuum du CO_2 et H_2O s'effectue également à l'aide du modèle $MT - CKD$ [El Kattar *et al.*, 2025]. Concernant l'absorption induite par collision CIA (*Collision-Induced Absorption*) 2.1.4, une vérification préalable des couples moléculaires a été effectuée. Ces couples sont susceptibles de produire un moment dipolaire transitoire. Cela se produit dans les deux voies spectrales de EM27/SUN. Sur cette base, les couples $O_2 - O_2$ et $O_2 - air$ ont été retenus pour la première voie, tandis que les couples $N_2 - N_2$ et $N_2 - air$ ont été choisis pour la seconde. Pour illustrer l'importance de l'inclusion des CIA et leur impact sur la ligne de base des simulations, la figure 2.9 montre l'effet de l'absorption induite par collision sur la ligne de base du spectre (voir la partie 2.1.4 pour plus de détails).

4.3.3 Modélisation de la résolution instrumentale

La prise en compte de la fonction d'appareil est essentielle à la reproduction fidèle des formes de raies d'absorption dans les spectres simulés. Elle permet en effet de prendre en compte les limitations instrumentales ainsi que les effets d'apodisation suivant la fonction choisie. Dans ce contexte, ARAHMIS propose huit options de convolution (Sinc, Gaussian, Triangle, Lorentz, Norton-Beer weak, Norton-Beer medium, Norton-Beer strong et ILS). Il y a aussi une option pour travailler avec un spectre non élargi. Cela permet de s'adapter précisément à la façon dont l'instrument fonctionne.
Différentes fonctions d'apodisation peuvent également être prises en compte par ARAHMIS, de même que l'introduction directe d'une fonction d'appareil, qu'elle soit simulée ou issue d'une mesure expérimentale. Pour notre étude, nous avons opté pour l'option d'ILS (*Instrumental Line Shape*) basée sur la fonction d'appareil spécifique à notre spectromètre. Cette dernière a été déterminée expérimentalement à l'aide du logiciel LINEFIT (version 14.8), en utilisant les paramètres de modélisation et de phase rapportés par Alberti [Alberti *et al.*, 2022], conformément à la méthodologie de Frey [Frey *et al.*, 2015]. Cette

mesure des paramètres de l'ILS a été réalisée et fournie par l'équipe MONARIS, garantissant ainsi une détermination précise et adaptée aux conditions d'utilisation de notre instrument. Il est à noté cependant que, comme nous l'avons présenté dans le chapitre 2, section 2.2.1.3 la fonction d'appareil semble présenter une dépendance en nombre d'onde en puissance de 1.5 que nous n'avons pas pus prendre en compte. En effet, ARAHMIS, dans sa version actuelle, ne permet d'inclure qu'une fonction d'appareil fixe. Pour l'étape d'inversion il faudrait donc, soit calculer nous même cette fonction d'appareil finale et travailler par bandes étroites (réalité pratique de l'inversion) soit implémenter ce calcul de l'ILS spécifique au EM27/SUN dans ARAHMIS.

4.3.4 Rapport signal sur bruit (SNR)

Parmi les paramètres d'entrée nécessaires à la simulation de spectres avec le logiciel ARAHMIS, on utilise le rapport signal/bruit (SNR), qui est un facteur essentiel pour reproduire avec précision les conditions de mesure réelles et influence directement le pouvoir résolvant de l'instrument [Swayze *et al.*, 2003]. Ceci est particulièrement vrai lorsque les raies sont étroites ou très rapprochées, car la précision de l'estimation de leur largeur est significativement influencée par le rapport signal sur bruit (SNR). L'instrument EM27/SUN présente généralement des valeurs de SNR élevées sur les deux canaux. Selon Alberti [Alberti *et al.*, 2022], le SNR dépasse 3 000 dans des conditions de mesure typiques pour les deux canaux (voir figure 25, p. 2457). Nous avons également estimé le SNR dans différentes régions spectrales à l'aide de deux spectres consécutifs, dont les résultats sont présentés dans le tableau 4.1. Ces résultats se révèlent en parfaite cohérence avec les conclusions d'Alberti.

Gamme spectrale (cm^{-1})	**Valeur de SNR**
6413–6517	6021.51
7992–8135	5312.44
6000–6200	7152.60
4413–4517	5169.68
4657–4702	3220.96

Table 4.1: Valeurs SNR pour différentes gammes spectrales.

Dans l'ensemble, les résultats du tableau 4.1. ont montré qu'ARAHMIS permet une intégration plus réaliste du bruit en utilisant un profil de bruit plutôt qu'en appliquant une valeur SNR fixe sur l'ensemble du spectre. Cette approche offre une représentation plus précise des effets du bruit dans les spectres simulés. Pour construire le profil de bruit, nous avons calculé le bruit en fonction du nombre d'ondes à l'aide de la formule suivante :

$$\boldsymbol{Noise} = \frac{\boldsymbol{std}(S_1 - S_2)}{\sqrt{2}} \tag{4.8}$$

où std(S_1-S_2) représente l'écart-type de la différence entre deux spectres consécutifs. Les deux figures 4.9 et 4.10 illustrent respectivement la méthodologie que nous avons utilisée pour dériver le profil de bruit en fonction de la fréquence pour la première et la deuxième voie.

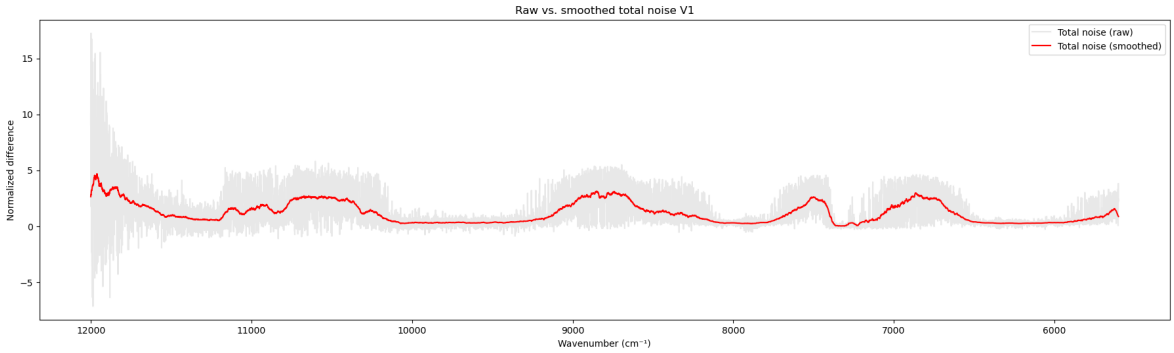


Figure 4.9: Le bruit et leur lissage en rouge pour la voie 1 de EM27/SUN.

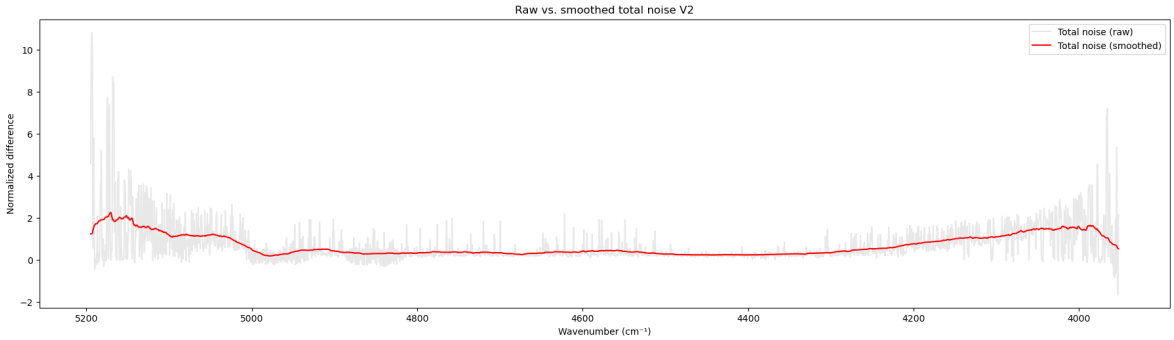


Figure 4.10: Le bruit et leur lissage en rouge pour la voie 2 de EM27/SUN.

4.3.5 Données sur les aérosols et les nuages

Lors de sa première mise en œuvre, l'algorithme ARAHMIS a été utilisé pour étudier les aérosols dans le cadre d'observations infrarouge à haute résolution spectrale, notamment à partir des instruments IASI et TANSO-FTS [Herbin, 2014]. Dans ces fichiers de paramétrage des entrées, un bloc est réservé à la description de la présence, de la nature et de la distribution verticale des aérosols dans l'atmosphère. Cela permet de réaliser des simulations radiatives fondées sur leurs propriétés optiques. Ce bloc permet de définir les types d'aérosols à considérer, leur répartition dans les différentes couches atmosphériques, ainsi que leurs concentrations et leurs diamètres géométriques caractéristiques.
Dans le cadre de ce travail, un photomètre solaire AERONET installé à proximité du spectromètre EM27/SUN a permis de fournir des valeurs directes de la profondeur optique des aérosols (AOD) intégrée sur la colonne atmosphérique. Ces données ont été directement intégrées dans la procédure de correction du spectre solaire, conformément à la méthodologie décrite dans la section 4.2.2.1 relative à la calibration radiométrique.

4.4 Structure fonctionnelle d'ARAHMIS

La structure fonctionnelle d'ARAHMIS est illustrée par la figure 4.11. Le fonctionnement combine la modélisation spectroscopique, le calcul radiatif et l'inversion. Une fois correctement paramétré avec les notions que nous avons développé précédemment, le système permet de reproduire au mieux le spectre observé. Le modèle direct raie par raie constitue le cœur du système qui s'appuie sur la base de données spectroscopiques HITRAN. Celles-ci sont utilisées sous forme de paramètres raie par raie ou via les sections efficaces. Le modèle direct raie par raie prend également en compte les continuums d'absorption de l'eau et du dioxyde de carbone. Le modèle inclut aussi un ensemble de paramètres d'entrées physiques, dont un profil a priori atmosphérique (GGG2020 dans notre cas), le spectre solaire incident corrigé par AOD et SZA, le fichier de bruit de l'instrument (SNR), la fonction de réponse instrumentale (ILS), les effets d'absorption induite par collision (CIA), ainsi que les propriétés optiques des aérosols (indices de réfraction complexes), afin de calculer le spectre simulé. Les effets de diffusion multiple peuvent être inclus

explicitement grâce à l'interface avec le code de transfert radiatif scalaire LIDORT pour calculer le champ radiatif et ses dérivées par rapport aux aérosols et aux gaz, ainsi que le code de transfert radiatif vectoriel V-LIDORT pour prendre en compte la polarisation de la lumière, mais dans l'étude présentée ici, nous ne l'avons pas utilisé [Spurr, 2008]. Cela permet de représenter de manière réaliste les interactions entre le rayonnement et l'atmosphère.

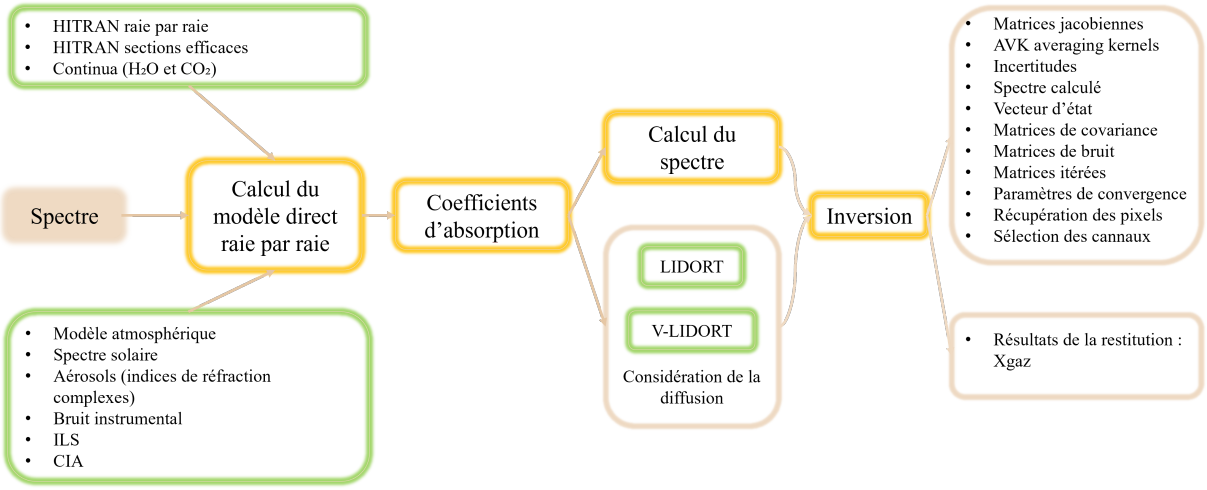


Figure 4.11: Représentation schématique du processus de simulation et d'inversion de l'algorithme ARAHMIS

Le spectre simulé est ensuite utilisé dans le modèle d'inversion. Ce module est fondé sur une approche variationnelle. Il permet d'estimer le vecteur d'état atmosphérique. Cette étape fournit des produits de restitution, comme la colonne totale intégrée de gaz Xgaz, ainsi que des diagnostics présentant les sorties essentielles pour notre étude de la teneur en information et la sélection des canaux, à savoir les matrices jacobiennes, les noyaux moyens (AVK), les matrices de covariance et de bruit, les incertitudes, les paramètres de convergence, ainsi que les informations liées à la sélection des canaux (une présentation de ces paramètres est proposée dans le chapitre suivant). Cette architecture fait d'ARAHMIS un outil complet pour la simulation et la restitution des paramètres atmosphériques à partir d'observations spectrales, avec une grande flexibilité.

Conclusion du chapitre

Le calcul du transfert radiatif a été abordé en détail dans ce chapitre, avec une présentation de l'algorithme ARAHMIS et de son cadre de mise en œuvre. La calibration radiométrique du spectre à analyser avec ARAHMIS a également été détaillée, avec une présentation des paramètres d'entrée à adapter. La structure fonctionnelle d'ARAHMIS a ensuite permis de présenter les différentes étapes du traitement et leur rôle dans la simulation des spectres observés. Grâce à tous ces éléments, il est possible de simuler avec précision les mesures spectrales acquises par EM27/SUN, ce qui permet d'évaluer de manière fiable la sensibilité des observations aux différentes variables atmosphériques. Le dernier chapitre aura pour objet l'analyse du contenu en informations des mesures spectrales et l'optimisation de la sélection des canaux spectraux du EM27/SUN avec ARAHMIS.

Troisième partie

Analyse du contenu d'information des mesures EM27/SUN et optimisation des canaux spectraux

Chapitre 5

Analyse du contenu d'information et optimisation de la sélection des canaux spectraux du spectromètre EM27/SUN par l'algorithme ARAHMIS

La performance des outils de spectroscopie atmosphérique dépend étroitement de la quantité et de la qualité des informations fournies par les mesures. La détermination des zones spectrales les plus pertinentes pour le suivi des gaz à effet de serre est donc cruciale. Elle permet en effet de garantir la précision, la fiabilité et l'efficacité des produits dérivés des processus d'inversion. Cette problématique revêt une importance particulière pour les instruments compacts et transportables, comme le spectromètre EM27/SUN du réseau COCCON, dont la paramétrisation des données est directement héritée de celle du réseau TCCON [Tu *et al.*, 2021]. Les caractéristiques instrumentales et opérationnelles de ce type d'appareil requièrent une sélection rigoureuse des canaux spectraux intégrés aux chaînes de traitement. Cette sélection vise à réduire le temps de traitement des données tout en préservant les informations spectrales essentielles. Ces informations sont

nécessaires pour représenter avec exactitude les paramètres atmosphériques.
Apres avoir présenté l'équation de transfert radiatif et ses fondements physiques au chapitre 3, nous nous concentrons dans ce chapitre sur la formulation et la résolution du problème inverse dans le cadre du formalisme de Rodgers [Rodgers, 2000]), en nous appuyant sur un modèle direct fondé sur cette équation. Nous décrivons la mise en œuvre de ce formalisme sur le plan théorique et numérique à partir des principales sorties de l'algorithme ARAHMIS, notamment les matrices jacobiennes, les matrices de noyaux (*Averaging kernels* (AVK)) et le nombre de degrés de liberté DOFS (*Degrees Of Freedom for Signal*). Cela permet de quantifier la part d'informations apportées par les mesures spectrales ainsi que l'importance du choix du profil a priori avec une matrice de covariance construit à partir des mesures in situ et leur impact sur le contenu d'information. Cela permet également d'évaluer la capacité des données EM27/SUN à contraindre les variables atmosphériques d'intérêt pour les deux voies spectrales disponnibles. Ces résultats serviront de base à la sélection optimale des canaux spectraux utilisés dans les procédures d'inversion et permettront une comparaison avec la configuration retenue par PROFFAST, dans le but de valider les choix existants. Dans le cas échéant, cela permettra de proposer des améliorations ou des alternatives méthodologiques.

5.1 Du modèle direct à la méthode d'estimation inverse

Aujourd'hui, plusieurs domaines scientifiques reposent sur des techniques de mesure indirectes, basées sur des observations bruitées, internes (liées à l'instrument) ou externes (liées à d'autres paramètres présents qui perturbent les mesures, comme dans notre cas, la présence de nuages et d'aérosols). Dans ce contexte, il est nécessaire de disposer de méthodes d'estimation adaptées aux types de mesures et à leurs limites. Ces procédés ont été mis en place au XIXe siècle et ont progressé vers des démarches probabilistes modernes. C'est vers 1800 que Gauss a établi les bases de la méthode des moindres carrés. Il a souligné l'importance de la redondance des données pour diminuer l'impact des erreurs de mesure. C'est à Kalman et ses collègues que l'on doit, vers 1960, une approche révolutionnaire de l'estimation, basée sur la représentation de l'espace d'état et du temps discrit à partir d'un filtre à son nom (le filtre de Kalman). Celui-ci présente une

extension récursive et probabiliste des moindres carrés de Gauss, après plusieurs théories qui avaient été développées dans ce domaine. Des notions importantes y sont incluses, comme l'observabilité, la dynamique du système à étudier et la mise à jour continue des mesures. Cette démarche facilite une évaluation itérative, optimale et performante, parfaitement adaptée à l'implémentation informatique [Gelb *et al.*, 1974].
L'algorithme d'estimation optimale traite les mesures indirectes pour produire une estimation à erreur quadratique moyenne minimale du système. Pour cela, il s'appuie sur une connaissance du système, des bruits et des erreurs de mesure, ainsi que sur une connaissance des conditions initiales (a priori). On distingue trois types d'estimation 5.1 : l'estimation de l'état au même instant que les mesures disponibles (filtrage), l'estimation après le dernier instant de mesure (prédiction) et l'estimation avant le dernier instant de mesure (lissage), comme dans les modèles de simulations futures. En se basant sur ces définitions, nous pouvons dire que le formalisme de Rodgers s'inscrit dans une approche de type filtrage statique, adaptée aux problèmes inverses en télédétection atmosphérique. Il permet d'estimer l'état du système à partir de mesures indirectes acquises au même instant, en intégrant explicitement une information a priori ainsi que les statistiques des erreurs de mesure et du modèle. Nous allons les détailler dans les parties suivantes.

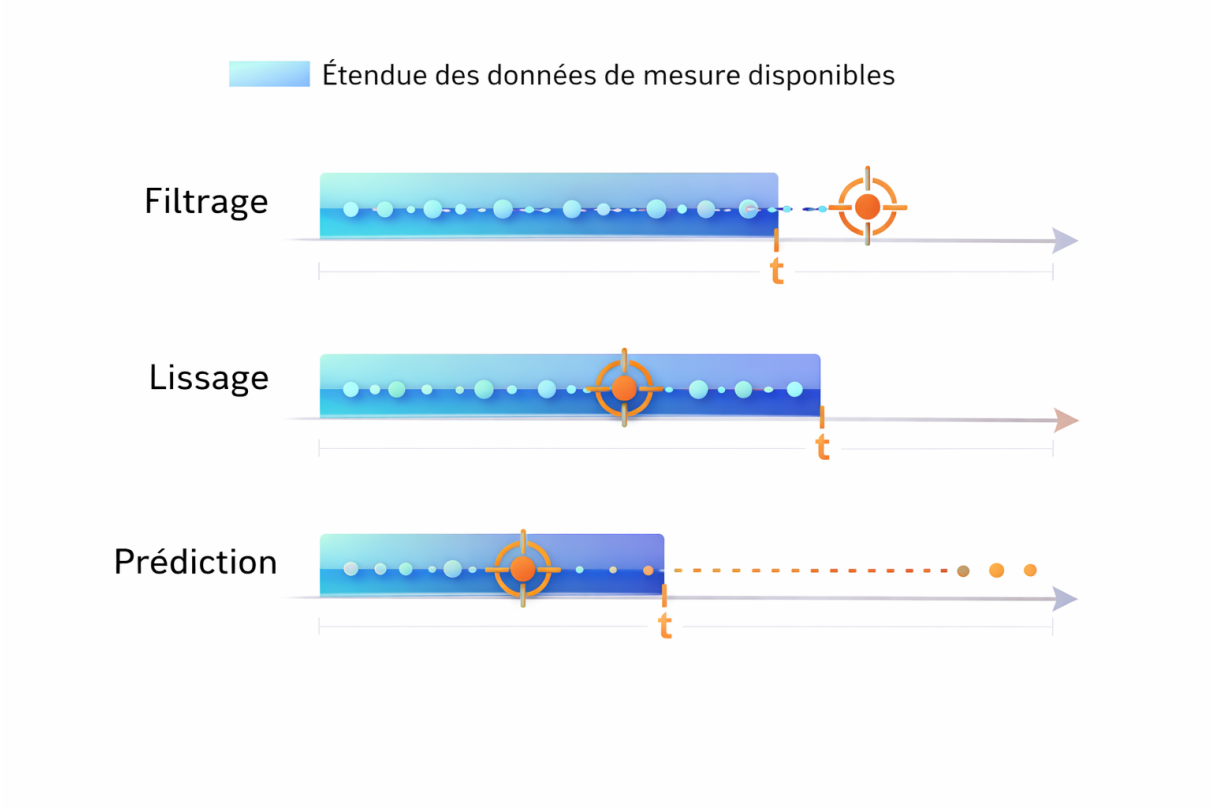


Figure 5.1: Trois types de problémes d'estimation en fonction du temps

5.1.1 Le modèle direct

Dans toute mesure indirecte telle que la nôtre, la relation entre la quantité mesurée (y) et la quantité cible (x) peut être exprimée par l'équation suivante:

$$\boldsymbol{y} = \boldsymbol{f}(\boldsymbol{x}, \boldsymbol{b}) + \boldsymbol{\varepsilon} \tag{5.1}$$

Dans laquelle f est la physique qui résume toute notre connaissance de l'interaction entre le rayonnement solaire et l'atmosphère. Le modèle en question ici est le modèle de transfert radiatif tel qu'il a été implémenté dans le logiciel ARAHMIS. Les paramètres b et ε, quant à eux, représentent respectivement les valeurs connues influençant les mesures (comme la température) mais que l'on ne cherche pas à ajuster (en dehors du vecteur d'état) et les erreurs associées au bruit de l'instruments.

5.1.2 Problème inverse

La résolution du problème inverse est nécessaire afin d'estimer la variable que nous souhaitons récupérer à partir des mesures et du modèle direct. Cette démarche consiste à déterminer une estimation de la variable d'état à partir des observations disponibles. Dans ce type de problème, plusieurs difficultés peuvent être rencontrées :

- La qualité de l'estimation est limitée par le nombre, la précision et le niveau de bruit des données disponibles.

- Le modèle direct peut être incomplet ou non linéaire, ce qui peut introduire des instabilités numériques.

- Le problème inverse est souvent mal posé, ce qui signifie que la solution peut ne pas être unique, ne pas exister ou être très sensible aux erreurs de mesure.

De plus, l'instabilité de l'inversion est renforcée par les incertitudes dans les mesurées ε et les paramètres auxiliaires b.

5.1.3 Principe de la méthode d'estimation

La méthode d'estimation cherche à déterminer une valeur proche de x. Pour ce faire, nous utilisons une solution estimée, notée $\hat{x}$. Cette solution est trouvée en cherchant à minimiser un critère spécifique. Ce critère est souvent basé sur un combinaison de données mesurées et de connaissances préalables sur x, selon la formule générale suivante:

$$\hat{\boldsymbol{x}} = \boldsymbol{R}(\boldsymbol{y}, \hat{\boldsymbol{b}}, \boldsymbol{x_a}, \boldsymbol{c}) \tag{5.2}$$

où

- y est la quantité mesurée.

- $\hat{x}$ est l'estimation de l'état réel x.
- x_a est le profil a priori qui fournit une estimation préalable de l'état.
- $\hat{b}$ est la meilleure estimation disponible des paramétres b.
- c regroupe les autres paramètres influençant l'inversion, comme des critères de convergence.

En combinant les deux équations précédentes (5.1) et (5.2), nous obtenons **une fonction de transfert** qui décrit l'ensemble du système (instrument + méthode de récupération):

$$\hat{\boldsymbol{x}} = \boldsymbol{R}(\boldsymbol{f}(\boldsymbol{x}, \boldsymbol{b}) + \boldsymbol{\varepsilon}, \hat{\boldsymbol{b}}, \boldsymbol{x_a}, \boldsymbol{c}) \tag{5.3}$$

Cette fonction met en évidence deux aspects principaux:

- La sensibilité de l'estimation $\hat{x}$ à l'état réel x
- La propagation des erreurs dans le processus d'estimation

5.2 Linéarisation de la fonction de transfert

La linéarisation de la fonction de transfert consiste à étudier les petites variations de l'état autour d'un point de référence, généralement le profil a priori. Cette approche permet de ramener le problème complexe de récupération de x à un problème d'algèbre linéaire, ce qui ouvre l'accès à des outils puissants tels que les matrices, le rang, les valeurs propres et singulières, et leurs vecteurs associés. Cette approximation est valide seulement si le point de départ (profil a priori) est raisonnablement proche de la réalité, car elle repose sur l'hypothèse que les variations autour de ce point peuvent être considérées comme linéaires. Une fois linéarisée, la fonction de transfert permet d'analyser comment les variations de l'état réel et des paramètres associés, ainsi que les erreurs de mesure, se propagent sur l'estimation. Cela facilite la décomposition analytique des contributions

individuelles (bruit, biais, lissage).

5.2.1 Le modèle linéarisé dans la fonction de transfert

En utilisant le développement de Taylor de premier ordre pour développer le modèle direct $f(x, b)$ autour de l'état a priori x_a et des paramètres b, on aboutit à la formule suivante :

$$\boldsymbol{f(x, b) = F(x_a, b) + \Delta f + K_x\,(x - x_a) + K_b\,(b - \hat{b})} \tag{5.4}$$

Avec :

- $K_x = \frac{\partial f}{\partial x}$ désigne la matrice jacobienne qui délimite la sensibilité de f à x;
- $K_b = \frac{\partial f}{\partial b}$ désigne la matrice jacobienne qui exprime la sensibilité de f aux paramètres b;
- Δf correspond à l'écart entre le modèle physique réel et l'approximation utilisée.

En remplaçant cette approximation dans la fonction de transfert (5.3) :

$$\boldsymbol{\hat{x} = R(F(x_a, b) + \Delta f + K_x\,(x - x_a) + K_b\,(b - \hat{b}) + \varepsilon, \hat{b}, x_a, c)} \tag{5.5}$$

Si nous supposons que la méthode d'inversion R est également linéaire autour des mesures (les spectres), nous pouvons développer R en série de Taylor de premier ordre par rapport à y:

$$\boldsymbol{R(y, \hat{b}, x_a, c) \approx R\Big(f(x_a, \hat{b}), \hat{b}, x_a, c\Big) + G_y\Big(y - f(x_a, \hat{b})\Big)} \tag{5.6}$$

- Le premier terme, $R\big(f(x_a, \hat{b}), \hat{b}, x_a, c\big)$, est significatif si les observations sont parfaitement cohérentes avec l'état a priori, c'est-à-dire si $y = f(x_a, \hat{b})$.
- Le terme $G_y = \frac{\partial R}{\partial y}$ présente la sensibilité de l'estimation $\hat{x}$ aux variations de la mesure y.

- Le dernier terme $(y - f(x_a, \hat{b}))$ est l'écart entre les observations y et la prédiction du modéle à l'apriori x_a.

En remplaçant y dans l'équation linéaire de R (5.6) par son expression dans l'equation (5.4), on obtient :

$$\begin{aligned} \hat{\boldsymbol{x}} = \boldsymbol{R}\Big(\boldsymbol{f}(\boldsymbol{x_a}, \hat{\boldsymbol{b}}), \hat{\boldsymbol{b}}, \boldsymbol{x_a}, \boldsymbol{c}\Big) + \boldsymbol{G_y} * \boldsymbol{k_x}(\boldsymbol{x} - \boldsymbol{x_a}) \\ + \boldsymbol{G_y} * \boldsymbol{\Delta f} + \boldsymbol{G_y} * \boldsymbol{k_b}(\boldsymbol{b} - \hat{\boldsymbol{b}}) + \boldsymbol{G_y} * \boldsymbol{\varepsilon} \end{aligned} \tag{5.7}$$

Les termes en rouge et en vert mettent respectivement en évidence le biais de la méthode d'inversion et la sensibilité de l'état estimé par rapport à l'état réel. Le terme en bleu représente l'erreur totale des données, c'est-à-dire la manière dont les erreurs sur b et le bruit se répercutent sur $\hat{x}$.

5.2.2 Matrice des noyaux moyens (*Averaging Kernels*)

Dans le cadre de notre analyse du contenu en information, réalisée avec le logiciel ARHAMIS, nous nous intéressons à la sensibilité de l'état estimé par rapport à l'état réel. Cette sensibilité est étudiée à l'aide des noyaux moyens, appelés Averaging Kernels (AVK). ARHAMIS permet à la fois le calcul du modèle direct, la restitution des profils atmosphériques par inversion, ainsi que l'analyse du contenu informationnel associé aux observations. Dans ce contexte, la matrice des AVK constitue un outil essentiel pour évaluer la qualité et la résolution verticale des profils restitués. La matrice des AVK décrit la manière dont une variation du profil atmosphérique réel se répercute sur le profil restitué. Elle caractérise ainsi la sensibilité verticale de la récupération aux profils atmosphériques réels. Cette relation est donnée par :

$$\boldsymbol{A} = \boldsymbol{G_y} * \boldsymbol{k_x} \tag{5.8}$$

La matrice A permet de quantifier la quantité d'informations indépendantes pouvant être récupérées dans le profil vertical à partir des mesures. Dans un système d'observation idéal, chaque paramètre de l'état serait déterminé indépendamment par les observations,

et A serait alors égale à la matrice identité. En pratique, ce cas n'est jamais atteint, car le nombre de mesures est différent du nombre de paramètres du vecteur d'état, et l'instrument ne permet d'accéder qu'à un nombre limité de combinaisons indépendantes de ces paramètres. Le problème revient donc à identifier un sous-espace de dimension p, correspondant au rang de la matrice de sensibilité, dans lequel les paramètres sont réellement observables. Dans ce sous-espace, le problème peut être ramené à un système équivalent de dimension p×p, représentant les degrés de liberté effectivement accessibles aux observations. La quantité d'information réellement apportée par les mesures est alors caractérisée par le nombre de degrés de liberté pour le signal, appelé *Degrees of Freedom for Signal* (**DOFS**), défini comme la trace de la matrice A :

$$\boldsymbol{DOFS = tr(A)} \tag{5.9}$$

Le DOFS dépend des hypothèses a priori choisies et reflète la part d'information issue des observations par rapport à celle imposée par l'a priori. Une présentation détaillée de cette décomposition et de son interprétation géométrique est donnée dans ([Rodgers, 2000]chapitres 2 et 3).

5.2.3 Analyse des erreurs et matrices de covariance

Pour calculer l'information réelle extraite des mesures, il faut comparer l'estimation et l'état a priori. Cette comparaison permet d'identifier la contribution effective des observations par rapport aux hypothèses a priori, ainsi que les régions du profil où les données corrigent significativement l'état initial. Si on calcule cet écart à partir de l'équation (5.10), on obtient l'équation suivante :

$$\begin{aligned} \hat{\boldsymbol{x}} - \boldsymbol{x_a} = &\left(\boldsymbol{R}\Big(\boldsymbol{f}(\boldsymbol{x_a}, \hat{\boldsymbol{b}}), \hat{\boldsymbol{b}}, \boldsymbol{x_a}, \boldsymbol{c}\Big) - \boldsymbol{x_a}\right) + \boldsymbol{G_y} * \boldsymbol{k_x}(\boldsymbol{x} - \boldsymbol{x_a}) \\ &+ \boldsymbol{G_y} * \boldsymbol{\Delta f} + \boldsymbol{G_y} * \boldsymbol{k_b}(\boldsymbol{b} - \hat{\boldsymbol{b}}) + \boldsymbol{G_y} * \boldsymbol{\varepsilon} \end{aligned} \tag{5.10}$$

Le premier terme en rouge est « le biais »

Si le biais est non nul, cela signifie que la méthode d'inversion est mal construite ou qu'elle repose sur des hypothèses incorrectes. Il peut alors être nécessaire de la modifier pour s'assurer qu'elle renvoie x_a en l'absence d'informations supplémentaires.

Le deuxième terme en vert est « le lissage »

Cette deuxième partie de l'équation exprime la manière dont la méthode de récupération fournit une estimation lissée de l'état réel x. Cette estimation est limitée par la résolution des observation et les contraintes a priori.

Le troisième terme en bleu est « l'erreur de récupération »

Ce dernier terme rassemble le bruit de mesure ε, l'incertitude sur les paramètres auxiliaires $k_b(b - \hat{b})$ et l'erreur du modèle direct Δf. Ces contributions représentent les principales sources d'erreur affectant l'estimation.

Si l'on considère que $R\Big(f(x_a, \hat{b}), \hat{b}, x_a, c\Big) - x_a = 0$ dans l'équation (5.10), ce qui signifie qu'il n'y a pas de biais, on obtient l'équation suivante :

$$\hat{x} - x = \underbrace{(A - I)(x - x_a)}_{\text{Erreur de lissage}} + \underbrace{G_y\,\Delta f}_{\text{Erreur du modèle direct}} + \underbrace{G_y\,K_b\,(b - \hat{b})}_{\text{Erreur des paramètres du modèle}} + \underbrace{G_y\,\varepsilon}_{\text{Bruit de mesure}} \tag{5.11}$$

Avec I matrice d'identité.

La covariance des erreurs liées à l'estimation peut servir à plusieurs objectifs :

calculer l'incertitude de la solution, identifier les sources d'erreur dominantes et évaluer la résolution effective du problème inverse. L'interprétation physique et l'exploitation scientifique des résultats dépendent directement de cette analyse. La formule générale s'écrit comme suit :

$$\boldsymbol{S_x} = \mathbb{E}\Big[(\text{Erreur de x})(\text{Erreur de x})^{\boldsymbol{T}}\Big] \tag{5.12}$$

E représente l'espérance mathématique. On applique cette formule aux erreurs essentielles de notre analyse de contenu en information : l'erreur de lissage, l'erreur du modèle direct et l'erreur de bruit.

- **Erreur de lissage**

$$\boldsymbol{S}_{\text{lissage}} = (\boldsymbol{A} - \boldsymbol{I})\, \boldsymbol{S_e}\, (\boldsymbol{A} - \boldsymbol{I})^{\boldsymbol{T}} \tag{5.13}$$

La variabilité statistique de x autour de x_a est représentée par la matrice $S_e = \mathbb{E}\Big[(x - x_a)(x - x_a)^T\Big]$. Cette valeur peut être obtenue à partir de données, de simulation ou de connaissances statistique climatique sur le système. La matrice lissage S_{lissage} permet de décomposer l'erreur en deux contributions :

- S_e, qui décrit la variabilité intrinsèque de l'état réel,
- $(A-I)$, qui représente l'effet du système d'observation et de la méthode de restitution sur cette variabilité.

L'effet de la résolution limitée du système peut être mesuré par l'analyse de $S_{lissage}$. Si A est proche de l'identité ($A \approx I$), l'erreur de lissage est faible, ce qui signifie que le système restitue correctement les variations de x. Autrement, si A lisse significativement x, $S_{lissage}$ devient important, indiquant une perte d'information.

- **Erreur de modèle direct**

$$\boldsymbol{S}_{\text{model}} = \boldsymbol{G_y}\, \boldsymbol{\Delta f}\, \boldsymbol{\Delta f}^{\boldsymbol{T}}\, \boldsymbol{G_y^T} = \boldsymbol{G_y}\, \boldsymbol{S_{mf}}\, \boldsymbol{G_y^T} \tag{5.14}$$

L'erreur du modèle direct nous permet d'analyser l'effet introduit par le choix d'un modèle simplifié $F(x, b)$. Si cette erreur est importante, cela indique que le choix du modèle physique limite la précision de l'estimation. Il peut donc être nécessaire d'améliorer le modèle.

- **Erreur du bruit**

$$\boldsymbol{S}_{\text{bruit}} = \boldsymbol{G_y}\,\boldsymbol{\varepsilon}\,\boldsymbol{\varepsilon}^{\boldsymbol{T}}\,\boldsymbol{G_y^T} = \boldsymbol{G_y}\,\boldsymbol{S_\varepsilon}\,\boldsymbol{G_y^T} \tag{5.15}$$

Dans tout système d'observation, le bruit est inévitablement une source d'erreur. En analysant le bruit, on peut quantifier son effet direct sur $\hat{x}$. Le bruit dépend à la fois des caractéristiques instrumentales et de la méthode d'inversion, la sensibilité de cette dernière étant représentée par la matrice G_y. Les critères de qualité des instruments sont souvent basés sur la part relative de S_ε dans l'erreur totale. Si le bruit constitue une source majeure d'incertitude, cela indique que les performances instrumentales doivent être améliorées afin de réduire son impact.
Les développements précédents fournissent le cadre théorique nécessaire à l'analyse du contenu en information des mesures. Dans la suite, ces outils sont appliqués aux sorties du logiciel ARHAMIS afin d'évaluer la capacité de l'instrument EM27/SUN à restituer les profils atmosphériques. L'analyse repose principalement sur l'étude des noyaux moyens, du DOFS et des matrices de covariance associées, permettant d'interpréter la sensibilité verticale, la résolution et les sources d'erreur des restitutions.

5.3 Analyse et interprétation du contenu en information des mesures EM27/SUN

La journée du 13 juin 2023 a été sélectionnée pour l'analyse du contenu d'information des données de l'instrument EM27/SUN. Cette date a été retenue en raison de conditions météorologiques favorables. Ces conditions se sont caractérisées par un excellent ensoleillement stable et intense (Figure 5.2), garantissant une qualité optimale des observations spectrales.
Cette analyse se concentre sur le spectre correspondant au signal maximal sélectionné parmi l'ensemble des mesures acquises au cours de cette journée. Ce choix permet de maximiser le rapport signal sur bruit et d'assurer une meilleure sensibilité d'inversion, conditions essentielles pour l'analyse du contenu d'information.



Figure 5.2: Photo des conditions d'ensoleillement du 13 juin 2023

Une simulation a été réalisée à l'aide de l'algorithme ARAHMIS à partir de ce spectre. Son but était d'évaluer les paramètres d'entrée que nous avons adaptés pour la simulation des deux voies spectrales disponibles de l'EM27/SUN qui correspondent aux deux détecteurs de l'instrument. La voie 1 (V1) couvre le domaine 5500 à 12000 cm^{-1}, tandis que la voie 2 (V2) est située à la limite entre le moyen et le proche infrarouge (4000 à 5200 cm^{-1}) (Figures 5.3 et 5.4). Cette étape nous a permis de confirmer la bonne intégration des données à partir de la corrélation entre la simulation et la calibration, qui présentent un aspect essentiel pour l'interprétation des noyaux moyens, des degrés de liberté, des erreurs, et plus généralement, du contenu en information des observations.

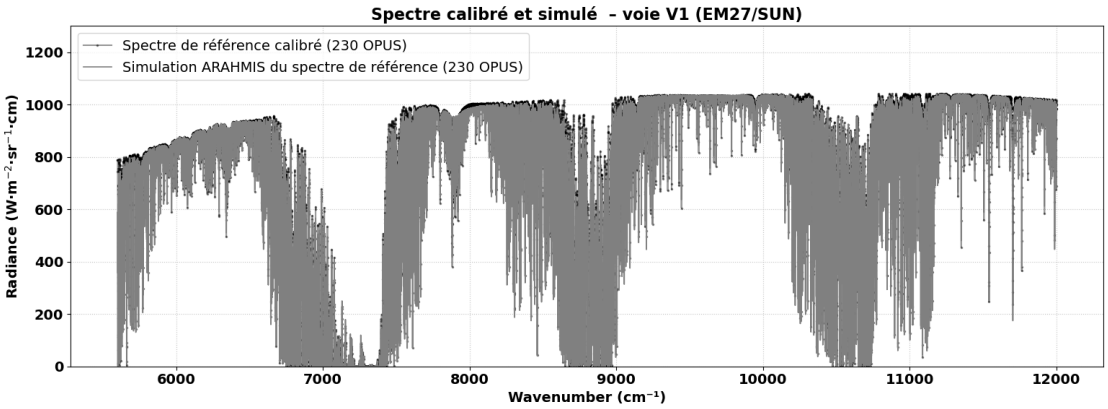


Figure 5.3: Spectre calibré et simulé du spectre pour la voie 1

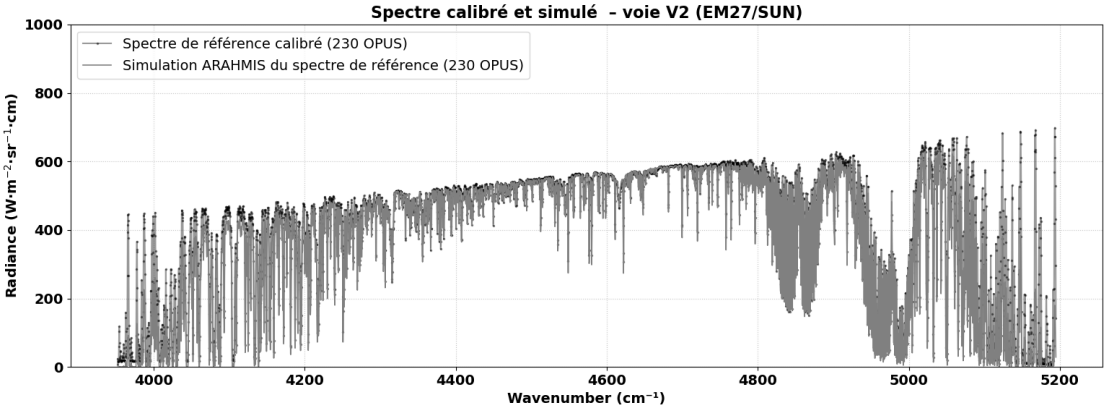


Figure 5.4: Spectre calibré et simulé du spectre pour la voie 2

5.3.1 Définition des zones spectrales spécifiques à chaque contribution

Des simulations individuelles ont été réalisées pour chaque molécule afin d'analyser séparément leur contribution spectrale, de vérifier la cohérence des simulations et d'identifier les espèces pouvant être négligées selon les régions spectrales considérées. De même, des simulations individuelles ont été réalisées afin d'identifier clairement l'impact du CIA, des continua ainsi que la contribution du spectre solaire à haute résolution. Ce travail a permis d'identifier les bandes spectrales dans lesquelles chaque molécule peut être potentiellement

mesurée, ainsi que les contributions et les espèces interférentes à prendre en compte pour chacune de ces bandes. Cette analyse a été menée pour les deux voies de l'instrument que l'on peut visualiser sur les Figures 5.5 et 5.6.
Les bandes spectrales identifiées pour l'étude de chaque molécule sont présentées en détail dans les tableaux 5.1 et 5.2. Pour chaque bande, les paramètres pris en compte dans l'ensemble des simulations réalisées sont indiqués pour les deux voies du spectromètre EM27/SUN. Le profil a priori, le bruit instrumental propre à chaque voie, l'ILS ainsi que la correction du spectre solaire sont inclus pour chaque molécule.
De plus, seules les molécules présentant une absorption significative dans les bandes spectrales choisies sont prises en compte dans les simulations. Cette approche méthodologique évite l'intégration systématique de toutes les molécules présentes dans les deux voies, ce qui entraînerait une augmentation inutile du temps de calcul, et permet, en revanche, de conserver une analyse précise et cohérente des signaux spectraux observés.
Dans chaque bande, la sélection des molécules absorbantes repose sur l'analyse des simulations spectrales présentées dans les figures 5.5 et 5.6, ainsi que sur l'identification des raies d'absorption caractéristiques de ces molécules dans les intervalles spectraux choisis.

		CIA O_2–O_2 O_2–air	Bruit	ILS	Correction du spectre solaire	H_2O	CO_2	CH_4
CO_2	Bande 1 [6038.22–6107.88]	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓
	Bande 2 [6166.22–6259.02]	✓	✓	✓	✓	✓	✓	
	Bande 3 [6293.01–6379.79]	✓	✓	✓	✓	✓		
	Bande 4 [6463.92–6533.83]	✓	✓	✓	✓	✓		
CH_4	Bande 5 [5741.24–6170.07]	✓	✓	✓	✓	✓		✓
H_2O	Bande 6 [8318.13–8598.23]	✓	✓	✓	✓	✓		

Table 5.1: Résumé des entrées de la voie 1 pour chaque intervalle de molécule étudié.

		CIA N_2–N_2 N_2–air	Bruit	ILS	Correction du spectre solaire	H_2O	CO_2	CH_4	CO	N_2O
CO_2	Bande [4722.05–5002.16]	✓	✓	✓	✓	✓	✓			✓
CH_4	Bande [4179.19–4675.77]	✓	✓	✓	✓	✓		✓	✓	✓
CO	Bande [4187.15–4326.96]	✓	✓	✓	✓	✓		✓	✓	
N_2O	Bande 1 [4371.07–4442.91]	✓	✓	✓	✓	✓		✓		✓
	Bande 2 [4699.15–4756.76]	✓	✓	✓	✓	✓	✓			✓

Table 5.2: Résumé des entrées de la voie 2 pour chaque intervalle de molécule étudié.

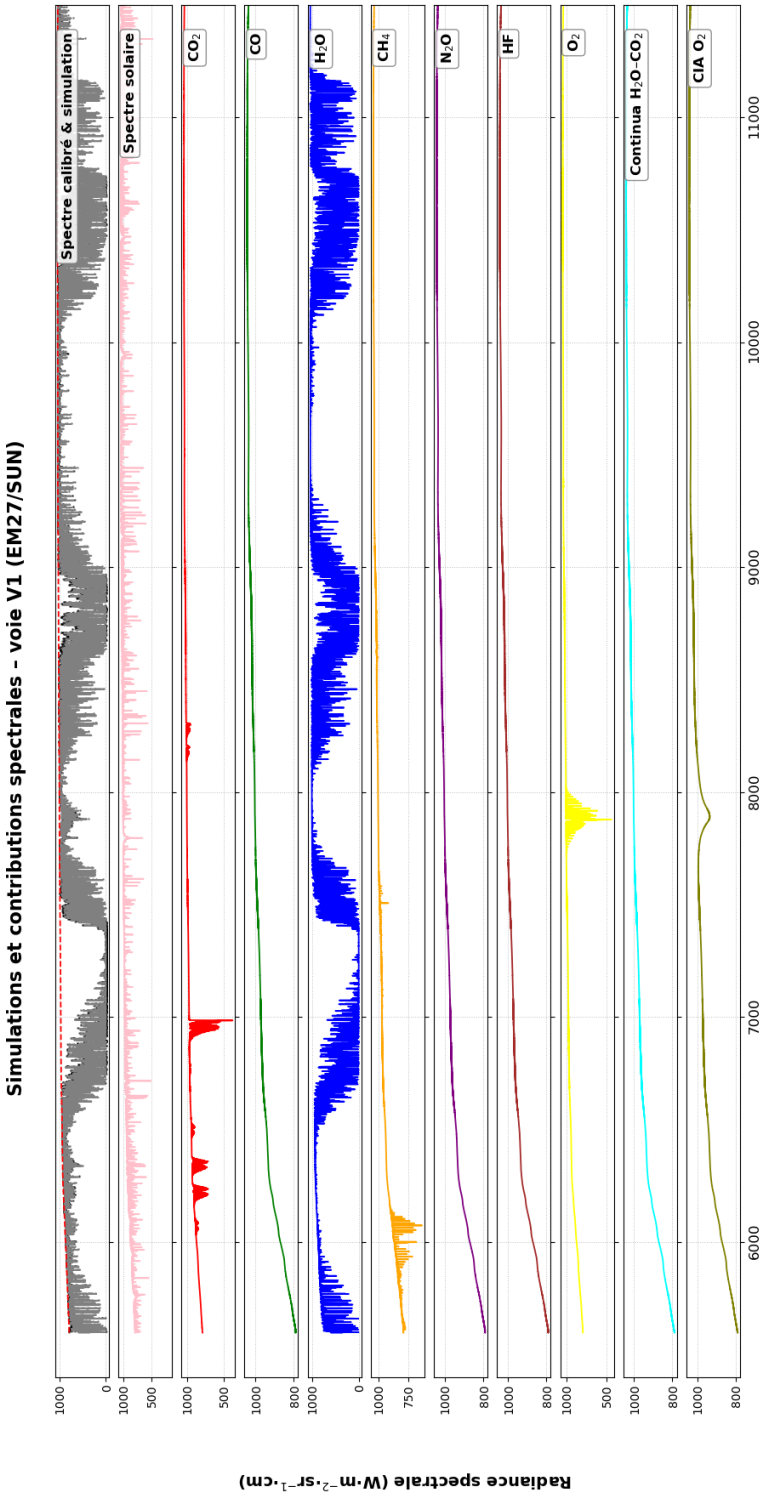


Figure 5.5: Spectre calibré et simulé avec la contribution de chaque espèce pour la voie 1

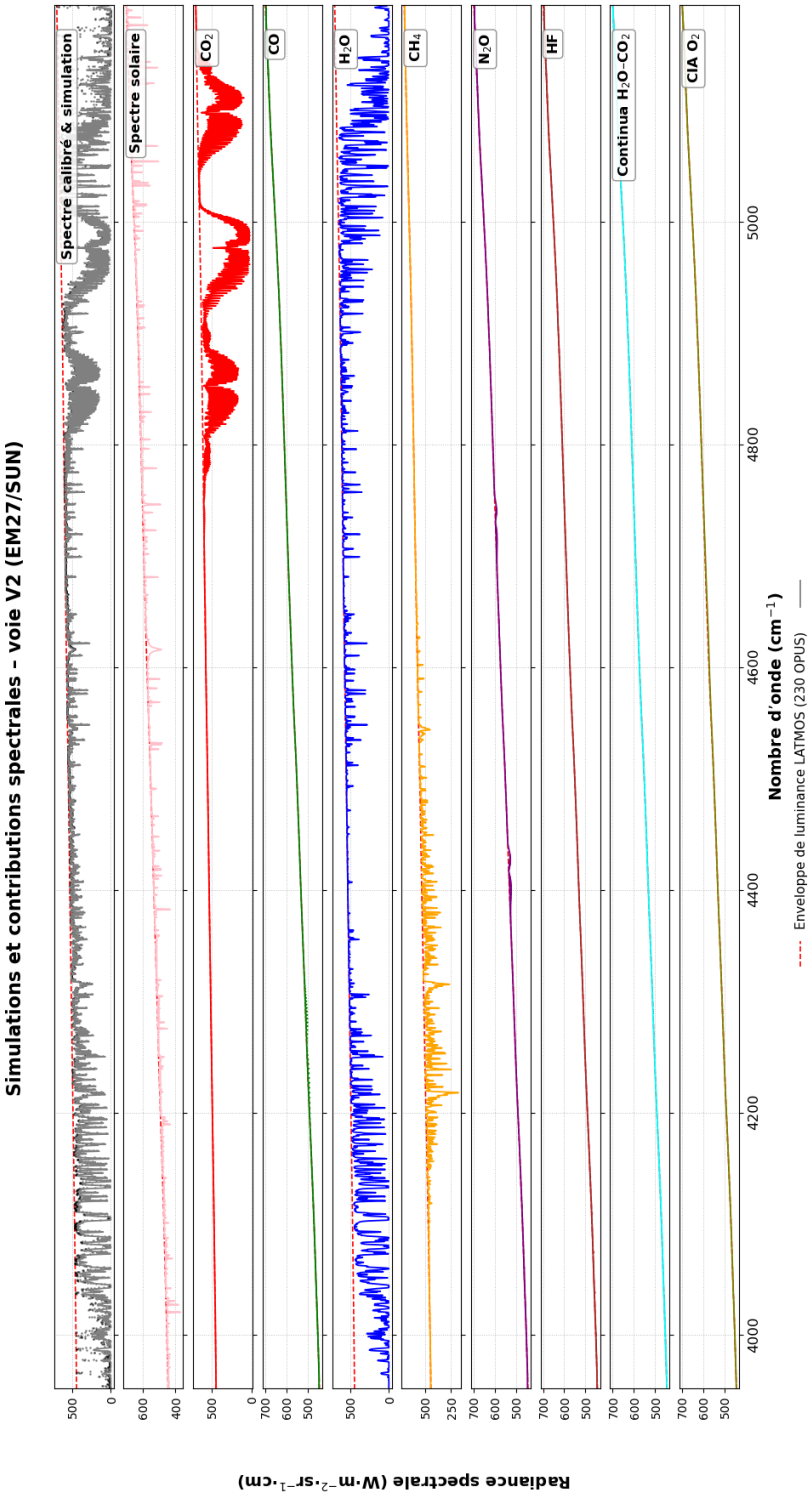


Figure 5.6: Spectre calibré et simulé avec la contribution de chaque espèce pour la voie 2

5.3.2 Averaging kernel et DOFS

Nous avons analysé le contenu en information des deux voies de l'instrument. La première partie est consacrée à la présentation des résultats de la voie 1 et la seconde à ceux de la voie 2. Cette partie se termine par une comparaison des informations obtenues sur chaque gaz dans les deux voies.

- Voie 1:

La Figure 5.7 présente l'*averaging kernel* (AVK) ainsi que les bilans d'erreur a posteriori des profils verticaux de CO_2 pour les quatre bandes spectrales de la voie 1. Ces résultats permettent d'évaluer la sensibilité verticale de l'inversion et la répartition de l'information entre la mesure et l'a priori. Chaque courbe d'AVK correspond à un niveau d'altitude distinct, identique à ceux définis dans GGG2020. L'altitude est représentée par un code couleur : les teintes les plus sombres correspondent aux niveaux les plus bas, tandis que les teintes les plus claires indiquent les niveaux les plus élevés. La matrice d'averaging A est composée d'éléments diagonaux qui représentent la contribution partielle du signal à chaque niveau d'altitude. Autrement dit, ces éléments diagonaux indiquent la fraction d'information apportée par la mesure. Si la valeur est proche de 1, cela signifie que l'information provient majoritairement de la mesure ; si elle est proche de 0, c'est que l'information provient en grande partie de notre connaissance a priori de l'état. Pour les quatres bandes, les AVK présentent des valeurs élevées dans les basses altitude en dessous de 10 à 15 km. Cela montre que la mesure est sensible dans cette région et fournit des informations significatives sur l'état atmosphérique. Au-delà de cette altitude, les AVK se rapprochent de zéro, ce qui suggère que les profils de la haute troposphère et de la stratosphère sont essentiellement contraints par l'a priori.
Pour l'ensemble des quatre bandes, l'erreur totale est principalement dominée par l'erreur de lissage et l'erreur a priori. L'erreur de lissage est immédiatement influencée par le fait que le système est incapable de discriminer correctement l'information verticale. En effet, la largeur des AVK entraîne un mélange des informations entre les couches atmosphériques, ce qui augmente l'erreur de lissage. Ce phénomène traduit le fait que chaque niveau restitué ne correspond pas à une information locale pure, mais à une combinaison pondérée

de plusieurs couches atmosphériques voisines. Ainsi, plus les AVK sont larges, plus la restitution est lissée verticalement, et plus l'erreur de lissage augmente. La forme des AVK constitue donc un indicateur direct de la résolution verticale effective du système d'observation. De plus, un décalage ou une inclinaison des AVK, correspondant à une attribution de l'information à une altitude incorrecte, dégrade également la précision de la restitution. Les erreurs de modèle et de mesure restent faibles pour les quatre bandes jusqu'à 10 kilomètres d'altitude, puis deviennent quasiment nulles. Cette observation confirme que l'incertitude totale est principalement influencée par le choix du profil a priori. Elle souligne ainsi l'importance cruciale du choix de ce dernier pour la restitution des profils verticaux de CO_2, un point essentiel à prendre en compte pour garantir l'exactitude et la fiabilité des résultats.
Concernant les degrés de liberté du signal (DOFS), les bandes 2 et 3 présentent des valeurs proches de 2, ce qui indique la présence d'environ deux niveaux d'information verticale indépendants. En revanche, les bandes 1 et 4 présentent des DOFS inférieurs à 1, ce qui indique une capacité limitée à extraire une information verticale indépendante à partir de ces deux bandes.

Combiner deux bandes spectrales consécutives de CO_2 de la voie 1 d'EM27/SUN (voir la figure 5.8) permet d'évaluer si le DOFS peut être amélioré. Autrement dit, le nombre d'informations indépendantes peut augmenter lorsque deux bandes sont utilisées simultanément. L'analyse des résultats montre que le DOFS dépasse 1 pour les trois couplages de bandes (1-2, 2-3 et 3-4). Cela indique que l'utilisation conjointe de deux bandes permet d'accéder à plus d'un niveau d'information vertical indépendant. Le couplage des bandes 2 et 3 se démarque particulièrement, avec un DOFS de 2,16 correspondant à deux niveaux d'information indépendants (2 modes "physiquement mesurables" + une fraction d'un 3e mode très peu sensible).
Cependant, lorsque les quatre bandes sont combinées en même temps, le DOFS total ne dépasse pas deux niveaux, avec une valeur de $2,22$. Dans ce contexte, le couplage des bandes 2 et 3 semble être la meilleure option en termes de contenu en information et de temps de traitement. Cette approche permet de conserver quasiment le même niveau d'information qu'une inversion utilisant les quatre bandes, tout en réduisant significativement le temps de traitement.
Le gain en DOFS est limité, car les quatre bandes sondent essentiellement les mêmes

structures verticales. Leur information n'est donc pas totalement indépendante, ce qui explique que la combinaison complète n'apporte pas plus de deux degrés de liberté.

Ce comportement est également cohérent avec la physique de l'absorption dans les mesures FTIR au sol. En haute altitude, la pression atmosphérique et la densité des espèces absorbantes diminuent fortement, ce qui rend les raies spectrales beaucoup plus étroites. Avec une résolution instrumentale limitée comme celle de l'EM27/SUN, ces structures fines sont peu détectables, ce qui réduit naturellement la sensibilité de l'inversion dans cette région. Cette combinaison explique que les averaging kernels deviennent très faibles en altitude, comme attendu pour les instruments FTIR solaires [Wunch *et al.*, 2011].

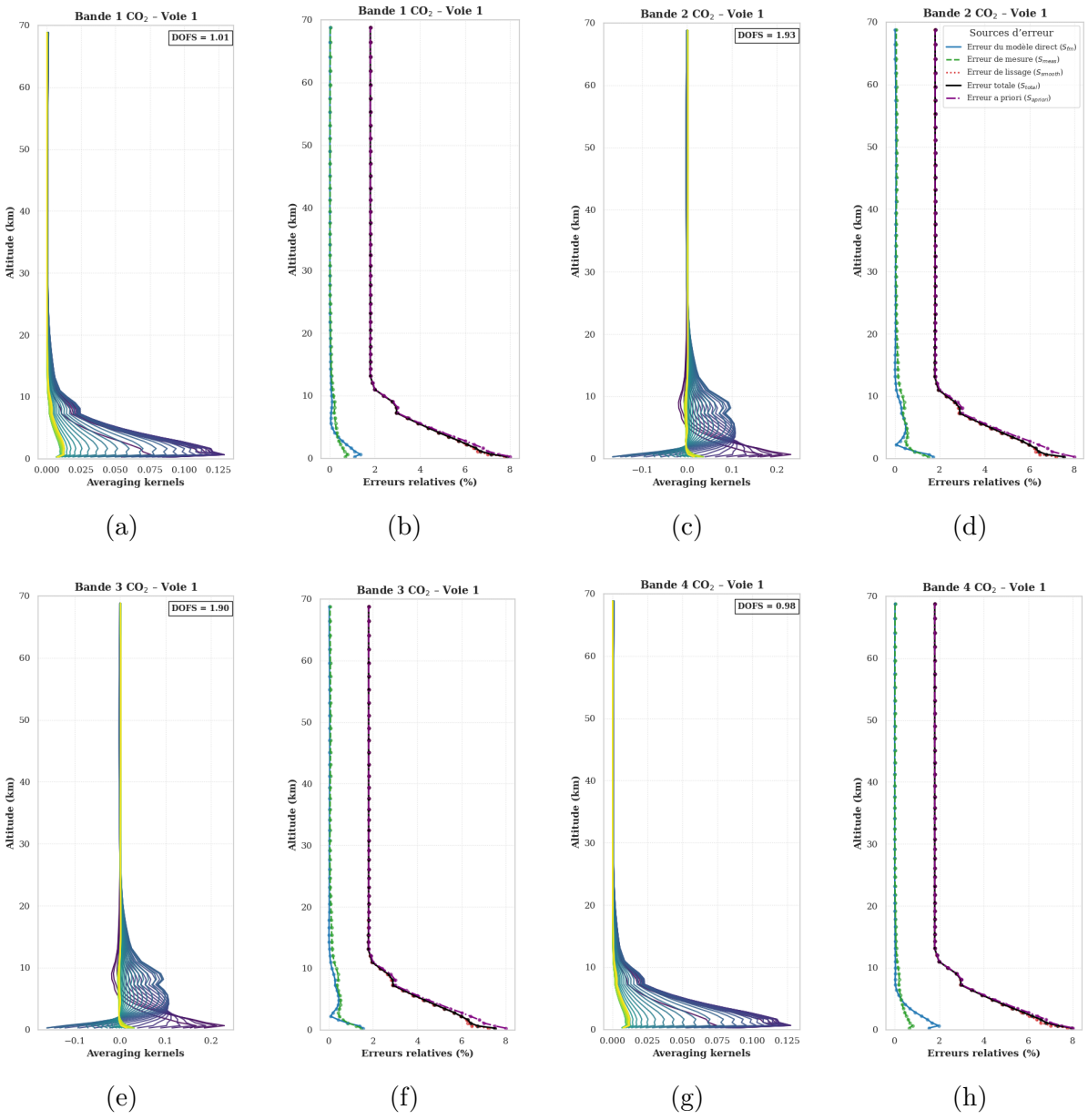


Figure 5.7: Averaging kernels (panneaux a, c, e, g) et bilans d'erreur a posteriori (panneaux b, d, f, h) pour les profils verticaux de CO_2 dans les quatre bandes spectrales de la voie 1. Chaque courbe d'AVK correspond à un niveau d'altitude défini à partir du profil a priori GGG2020. Les couleurs indiquent l'altitude : les teintes sombres représentent les niveaux les plus bas, et les teintes claires les plus élevés. Le DOFS associé à chaque bande est indiqué en haut de chaque panneau d'AVK. Les panneaux d'erreurs montrent la contribution relative de chaque source d'incertitude (lissage, modèle, mesure, etc.) telle que détaillée dans la légende.

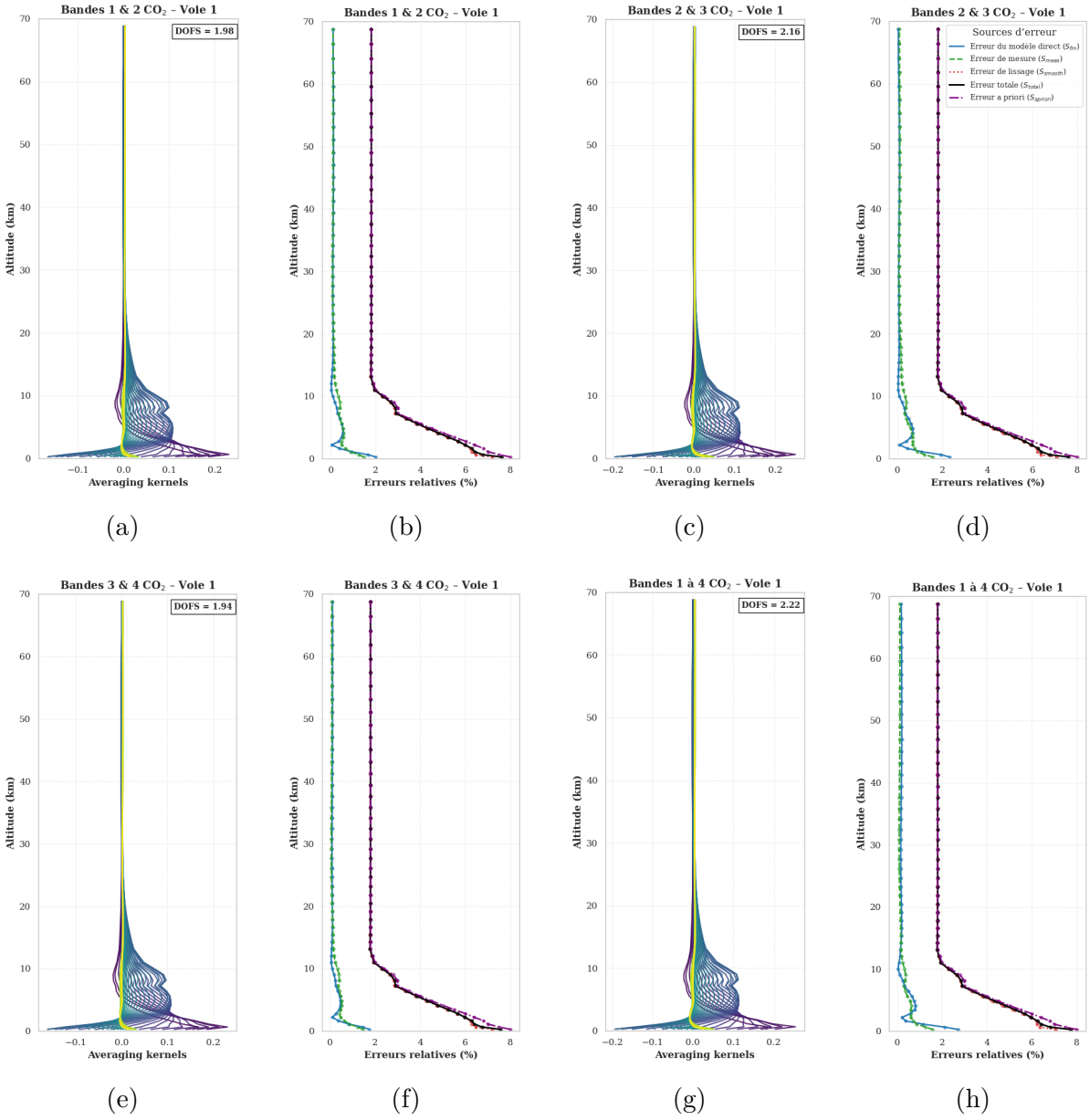
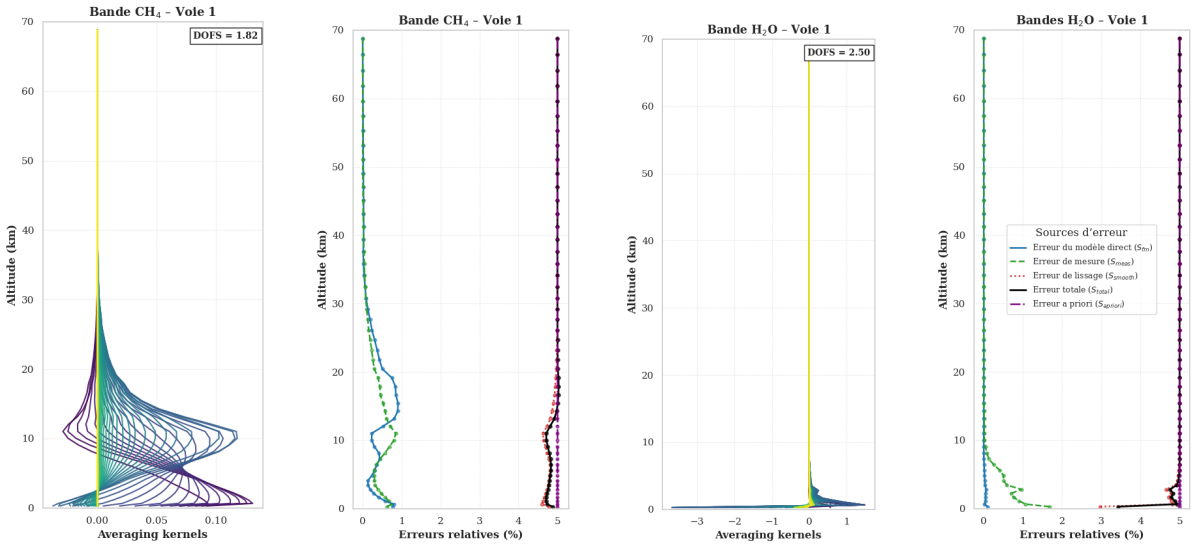


Figure 5.8: Averaging kernels (panneaux a, c, e, g) et bilans d'erreur a posteriori (panneaux b, d, f, h) obtenus pour le couplage de deux bandes consécutives de CO_2 dans la voie 1 de l'EM27/SUN. Chaque courbe d'AVK correspond à un niveau d'altitude défini à partir du profil a priori GGG2020. Les couleurs indiquent l'altitude, les teintes sombres représentant les niveaux les plus bas et les teintes claires les plus élevés. Les valeurs du DOFS associées à chaque combinaison de bandes sont indiquées dans les panneaux correspondants. Les différentes sources d'erreur contribuant à l'incertitude totale sont détaillées dans la légende des panneaux d'erreur.

Le méthane (CH_4) et la vapeur d'eau (H_2O) ont également été analysés sur la voie 1. Pour le CH_4, une seule bande spectrale est disponible. La bande utilisée pour l'étude de H_2O correspond à celle déjà intégrée dans PROFFAST, avec la perspective d'examiner d'autres bandes ultérieurement.

La figure (a - 5.9) montre que la matrice AVK du CH_4 montre deux régions principales de sensibilité verticale : l'une située dans les deux premiers kilomètres de l'atmosphère et l'autre autour de 10 km. Le DOFS associé est de 1,82, ce qui correspond à environ deux niveaux d'information verticale indépendants.
Le DOFS proche de 2 indique que l'inversion est sensible à deux modes verticaux du profil de CH_4. La présence d'une sensibilité marquée dans la basse atmosphère laisse penser que cette configuration pourrait, en théorie, être favorable à l'étude de variations situées essentiellement près de la surface, comme celles associées aux émissions locales. Cependant, cette capacité doit être interprétée avec prudence. Les deux niveaux d'information identifiés par le DOFS ne correspondent pas directement à des altitudes précises. Ils reflètent plutôt la manière dont l'instrument et l'inversion regroupent l'information verticale disponible dans cette bande spectrale. La résolution verticale reste aussi limitée par le lissage, les corrélations entre niveaux proches et la présence d'interférences, en particulier avec la vapeur d'eau.
Ainsi, même si la structure du DOFS suggère un potentiel pour analyser des variations situées en basse altitude, cette possibilité doit être considérée comme indicative et dépendante des limites propres au système d'observation.
Nous avons mené une analyse similaire pour H_2O. L'illustration ci-dessous (c - 5.9) montre que les noyaux dmoyens (AVK) de H_2O révèlent que la sensibilité de la restitution est essentiellement concentrée dans la basse troposphère. Le DOFS atteint 2,5, ce qui indique que l'inversion permet de restituer environ deux structures verticales indépendantes pour la vapeur d'eau. Ce résultat est cohérent avec la forte variabilité verticale de H_2O dans les premières couches de l'atmosphère, où l'humidité est fortement influencée par les échanges avec la surface et les processus thermodynamiques.
L'analyse des bilans d'erreur montre que l'erreur totale de H_2O est dominée par l'erreur a priori et par l'erreur de lissage, comme observé pour le CO_2 et le CH_4. L'erreur de modèle est quasiment nulle sur toute la colonne atmosphérique, ce qui indique que les approximations du modèle direct affectent peu la récupération de H_2O dans cette bande

spectrale. L'erreur de mesure est principalement visible dans les huit premiers kilomètres, là où l'absorption de H_2O est la plus forte. Au-delà, la sensibilité de la mesure diminue rapidement, ce qui réduit l'impact du bruit instrumental.
L'ensemble de ces résultats montre que la bande étudiée fournit une bonne sensibilité à la vapeur d'eau dans la basse atmosphère, mais que la résolution verticale reste limitée par le lissage inhérent à l'inversion. Ainsi, même si H_2O présente plusieurs degrés d'information verticale, la capacité à distinguer des structures fines reste contrainte par la forte variabilité du signal en basse altitude et par la physique de la mesure.



(a) (b) (c) (d)

Figure 5.9: Les AVK et les bilans d'erreur des profils verticaux de CH_4 et de H_2O de la voie 1 : (a) AVK du CH_4, (b) bilans d'erreur du CH_4, (c) AVK du H_2O, (d) bilans d'erreur du H_2O. Chaque courbe d'AVK correspond à un niveau d'altitude défini à partir du profil a priori GGG2020. Les couleurs représentent les altitudes : les teintes sombres correspondent aux niveaux les plus bas et les teintes claires aux plus élevés. Les différentes sources d'erreur sont détaillées dans la légende de la figure.

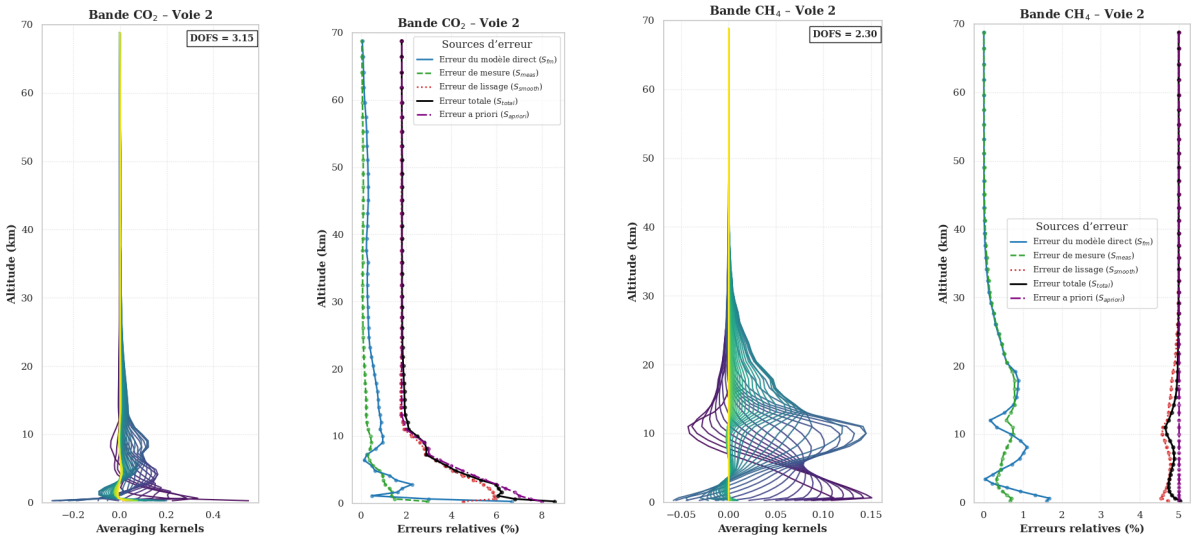
- **Voie 2:**

La voie 2 de EM27/SUN est généralement associée au produit CO [Alberti *et al.*, 2022, Lodia, 2024] mais elle contient également des bandes spectrales permettant d'extraire de l'information sur d'autres gaz. Dans le cadre de ce travail, l'étude ne s'est donc pas limitée au CO, mais a également pris en compte d'autres gaz. Nous avons en effet élargi l'analyse à l'ensemble des gaz présentant des signatures spectrales exploitables dans cette voie.

- Analyse du CO_2 de la voie 2:

La figure 5.10 (a–b) montre les AVK et les bilans d'erreur des profils verticaux de CO_2 dans cette voie. Les AVK présentent plusieurs zones de sensibilité verticale bien marquées, notamment dans la basse troposphère ainsi qu'autour de 5 km et 10 km. Cette structure traduit la présence de plusieurs modes verticaux détectables par l'inversion.
Le DOFS associé est de 3,15, ce qui indique que la voie 2 permet d'accéder à environ trois niveaux d'information verticale partiellement indépendants. Cette valeur est plus élevée que celle obtenue dans la voie 1, ce qui s'explique par la présence de raies d'absorption plus intenses dans cette région spectrale.
L'analyse des bilans d'erreur montre que, comme pour la voie 1, l'erreur totale est principalement dominée par l'erreur a priori et l'erreur de lissage. Les erreurs de modèle et de mesure restent faibles dans la troposphère puis deviennent quasi nulles en altitude. Cela confirme que, malgré une meilleure sensibilité verticale, la restitution du CO_2 reste fortement influencée par la structure a priori et par la capacité du système à séparer les différents modes verticaux.
Globalement, la voie 2 fournit donc une résolution verticale améliorée pour le CO_2, ce qui la rend particulièrement adaptée à l'analyse des variations verticales du gaz dans la basse et la moyenne troposphère.
La voie 2 apporte un contenu d'information plus élevé que la voie 1 pour le CO_2 et le CH_4. Les raies d'absorption présentes dans cette région spectrale sont plus marquées et moins perturbées, ce qui renforce la sensibilité verticale de l'inversion. Cela réduit les corrélations entre niveaux voisins et permet d'identifier plusieurs modes verticaux indépendants, comme le montrent les DOFS plus élevés obtenus pour ces deux gaz. Cependant, l'erreur totale reste dominée par l'erreur a priori et l'erreur de lissage, ce qui rappelle les limites

de la résolution verticale obtenue.



(a) (b) (c) (d)

Figure 5.10: Averaging kernels et bilans d'erreur des profils verticaux de CO_2 et de CH_4 dans la voie 2. (a) AVK du CO_2, (b) bilans d'erreur du CO_2, (c) AVK du CH_4, (d) bilans d'erreur du CH_4. Chaque courbe d'AVK correspond à un niveau d'altitude défini à partir du profil a priori GGG2020. Les couleurs représentent les altitudes : les teintes sombres indiquent les basses altitudes et les teintes claires les niveaux les plus élevés. Les différentes sources d'erreur sont indiquées dans la légende.

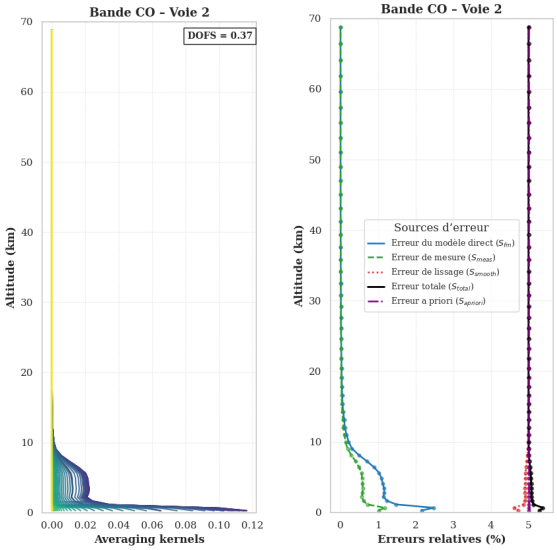
- Analyse du CO dans la voie 2:

Le CO n'est pas un gaz à effet de serre direct, mais il influence le climat de manière indirecte, d'une part en tant que précurseur de l'ozone troposphérique et d'autre part par son interaction avec les radicaux OH. Cette oxydation constitue le principal puits de CO atmosphérique, avec 90 à 95 % de l'élimination totale, et affecte donc aussi la durée de vie du CH_4 en limitant la disponibilité de l'OH [Tu *et al.*, 2025]. Sa durée de vie relativement courte, de l'ordre d'un à deux mois [Valant *et al.*, 2005], limite sa dispersion verticale et favorise son accumulation dans la basse troposphère.
Les AVKS de CO de la voie 2 (voir la figure a - 5.11) montrent que la sensibilité de

l'inversion est fortement concentrée dans les premiers kilomètres.
Au-delà de cette région, les AVK deviennent rapidement très faibles, ce qui reflète la faiblesse des raies d'absorption du CO dans la voie 2. Le DOFS obtenu est de 0,37, ce qui indique que l'information verticale provenant directement de la mesure est limitée et que la restitution dépend fortement de l'a priori.
Les bilans d'erreur confirment cette analyse : l'erreur totale est principalement contrôlée par l'erreur a priori et l'erreur de lissage, tandis que les erreurs de modèle et de mesure restent faibles dans la basse atmosphère. Ces résultats traduisent la faible capacité de la voie 2 à contraindre réellement le profil vertical du CO.
Cette faible valeur du DOFS du CO suggère une information limitée, ce qui pourrait remettre en question la pertinence du produit de l'inversion PROFFAST. Cependant, un DOFS faible ne signifie pas nécessairement que le produit est inexploitable. Ces résultats ont été présentés lors de la téléconférence du réseau COCCON du 2 octobre 2025 (présentation disponible sur le site du réseau COCCON[1]), Les discussions scientifiques qui ont suivi ont permis de confirmer que ce résultat était conforme aux attentes pour le monoxyde de carbone (CO) dans le contexte des observations solaires réalisées depuis le sol. Le Pr Frank Hase a notamment souligné que la faible sensibilité verticale obtenue pour ce gaz constituait une caractéristique attendue de ce type de mesure et ne traduisait pas une limitation spécifique de la méthode de restitution. En effet, l'exploitabilité d'un produit ne dépend pas uniquement de la valeur absolue du DOFS, mais également de la variabilité atmosphérique du gaz considéré. Le CO est une substance qui varie beaucoup dans l'espace et dans le temps, surtout près des sources (les incendies de forêt ou les épisodes de pollution intense). Cela permet de détecter des changements importants, même lorsque la quantité d'informations intégrées sur la colonne est faible. Un faible DOFS ne signifie donc pas nécessairement que le CO est insensible aux variations atmosphériques. Le faible DOFS obtenu pour la voie 2 du CO indique que les observations apportent une information limitée sur la distribution verticale du gaz. Cependant, cette limitation ne remet pas nécessairement en cause l'intérêt du produit pour l'étude des variations atmosphériques. En raison de la forte variabilité temporelle du CO, les variations de colonne peuvent rester détectables malgré une contrainte verticale réduite. L'évaluation de la pertinence d'un produit de restitution nécessite de considérer le contenu en information

[1] https://www.imkasf.kit.edu/downloads/Coccon/Telecons_EM27/2025-10-02/MonitoringofgreenhousegasesattheMD.pdf

verticale et les objectifs scientifiques associés à son utilisation.
Il est également important de souligner que des hypothèses fondamentales différentes sous-tendent l'analyse ARAHMIS et l'inversion PROFFAST. La première vise à quantifier le contenu réel en information des observations, indépendamment de toute contrainte a priori, tandis que la seconde applique un facteur d'échelle à un profil de référence (GGG2020). Ces deux approches peuvent donc conduire à des diagnostics différents. En conséquence, la faible valeur du DOFS constatée pour le CO traduit avant tout les limites inhérentes à la mesure et à l'approche d'inversion, et non de juger l'intérêt du produit.



(a) (b)

Figure 5.11: Averaging kernels et bilans d'erreur des profils verticaux de CO dans la voie 2. (a) AVK du CO ; (b) bilans d'erreur correspondants. Chaque courbe d'AVK représente un niveau d'altitude défini à partir du profil a priori GGG2020. Les couleurs indiquent l'altitude : les teintes sombres correspondent aux basses altitudes et les teintes claires aux niveaux plus élevés. Les différentes contributions à l'erreur totale sont précisées dans la légende.

Il est également important de distinguer notre analyse, réalisée avec ARAHMIS, d'une inversion opérationnelle effectuée par PROFFAST. ARAHMIS permet d'évaluer la quantité réelle d'information apportée par les mesures, tandis que PROFFAST réalise un

scaling factor appliqué au profil a priori GGG2020. Les deux approches ne fournissent donc pas exactement les mêmes diagnostics sur la qualité du produit CO.
Dans ce contexte, nous avons souhaité examiner si, malgré un DOFS faible, la voie 2 pouvait capturer des variations réelles de CO lors d'un événement marqué. L'épisode extrême du 3 juin 2025 constitue un cas d'étude pertinent pour évaluer cette question.

Analyse d'un épisode extrême

Pour évaluer la contribution réelle de la mesure, deux journées ont été comparées :

- le 13 juin 2023, correspondant à une situation atmosphérique stable (figure 5.12),
- le 3 juin 2025, marqué par un pic de XCO lié au transport de masses d'air en provenance des feux de forêt au Canada (figure 5.14 en rouge)

Pour cela, nous avons traité les deux journées avec PROFFAST. Chaque jour a été traité selon son profil a priori. Pour la journée du 13 juin 2023, nous l'avons retraitée en conservant les mêmes conditions atmosphériques (température, humidité, profils des autres espèces) et en ne modifiant que le profil a priori de CO (la courbe bleue de la figure 5.14). Le pic de XCO reste présent si nous comparons le XCO inversé par PROFFAST le 3 juin 2025 avec le profil de CO a priori remplacé par le profil du 13 juin 2023 (courbe bleue 5.14), et avec le XCO inversé le 3 juin 2025 avec leur profil a priori sans modification (courbe rouge 5.14). L'anomalie observée ne peut donc être uniquement attribuée à l'a priori de CO, mais doit être au moins en partie expliquée par la mesure. Cependant, étant donné le faible DOFS et le fait que PROFFAST applique un facteur d'échelle au profil a priori, cette analyse doit être considérée comme un test qualitatif, et non comme une validation complète de la restitution du CO.

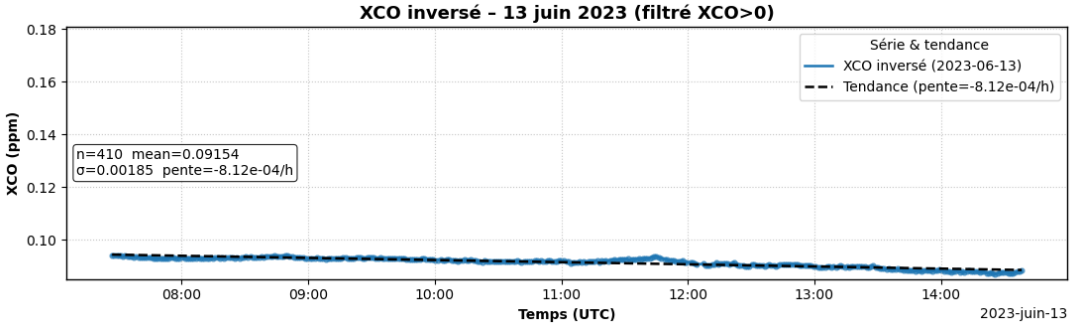


Figure 5.12: XCO inversé par PROFFAST le 13 juin 2023.

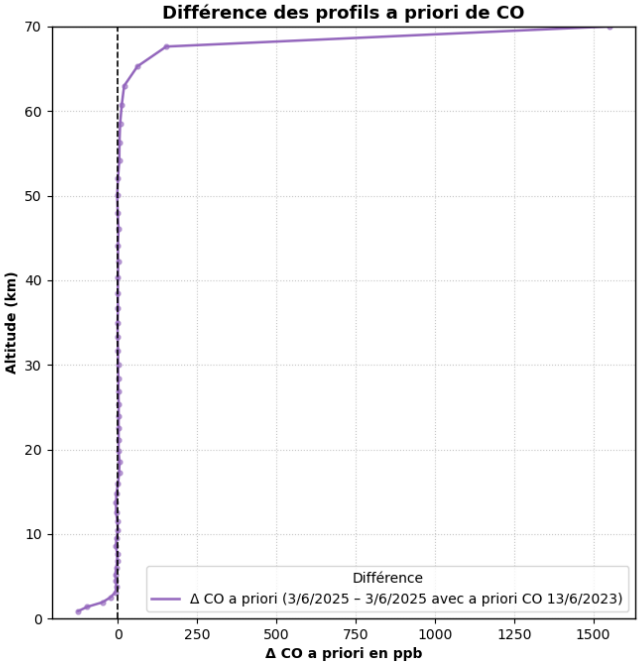


Figure 5.13: Différence entre les deux profils a priori CO (GGG2020) du 3 juin 2025: profil normal vs profil VMR du 13 juin 2023.

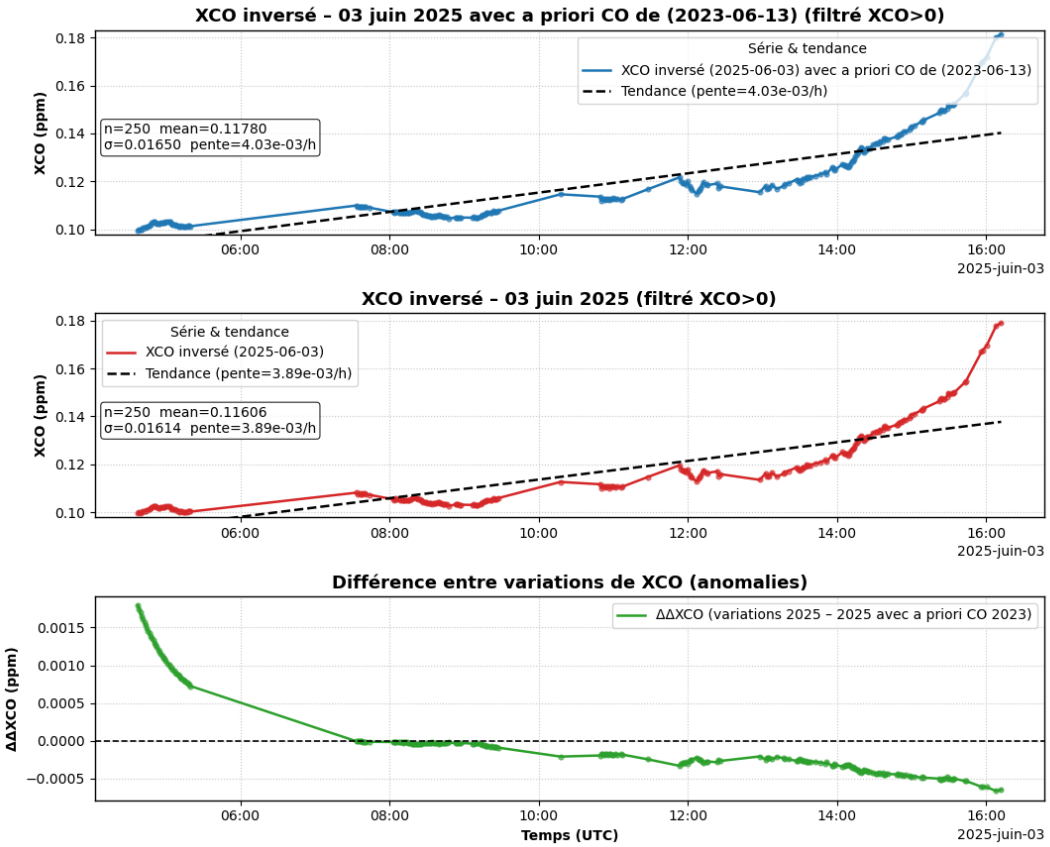
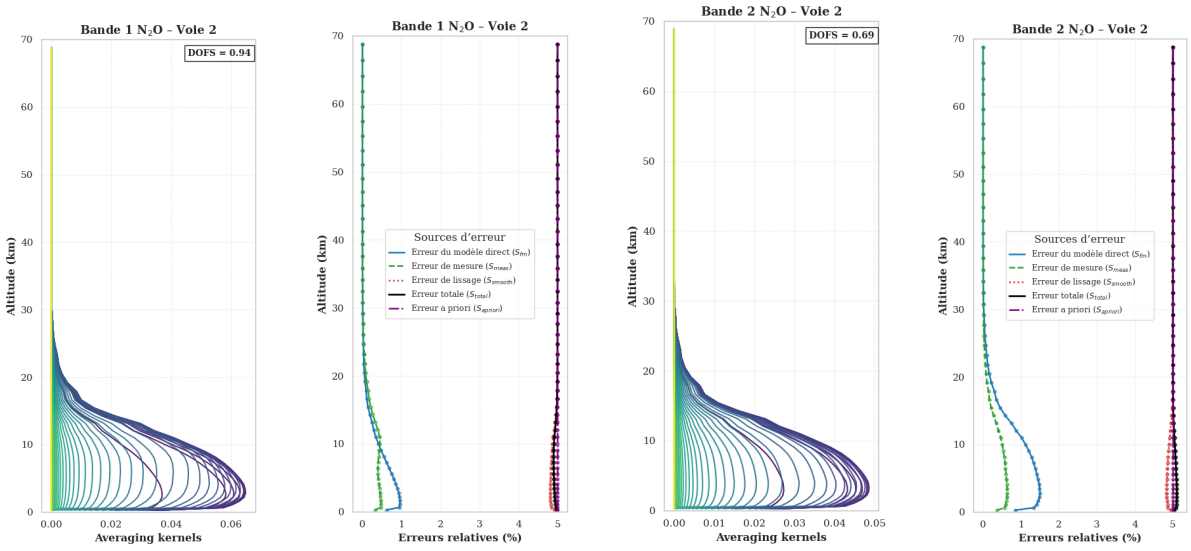


Figure 5.14: XCO inversé par PROFFAST le 3 juin 2025 avec a priori 13 juin 2023 en haut (courbe bleu), XCO inversé et le 3 juin 2025 avec a priori normal au milieu (courbe rouge., et différence entre les variations ΔΔXCO en bas (courbe verte)

- Analyse du N_2O dans la voie 2 :

Lors de l'étape de sélection des bandes d'absorption, nous avons identifié deux régions spectrales distinctes de N_2O, la premiere se situe entre [4371.0723 et 4442.9070] et la deuxiéme entre [4699.14982 et 4756.7622].
Les averaging kernels associés à ces deux bandes (Figure a et c 5.15) montrent une sensibilité verticale principalement concentrée dans la basse et la moyenne troposphère. Cette sensibilité atteint des valeurs significatives jusqu'à 20 km d'altitude. Les DOFS associés sont de 0,94 pour la bande 1 et de 0,69 pour la bande 2, ce qui indique que la bande 1

permet d'accéder à un niveau d'information verticale partiellement indépendant.
Le N_2O est un gaz important pour le climat. C'est le troisième gaz qui contribue le plus au forçage radiatif anthropique, après le CO_2 et le CH_4. Il joue également un rôle clé dans la chimie de l'ozone stratosphérique [Kangah, 2017]. C'est pourquoi il est essentiel de le surveiller de manière précise et continue.



(a) (b) (c) (d)

Figure 5.15: Averaging kernels et bilans d'erreur des profils verticaux de N_2O dans la voie 2. (a) AVK de la bande 1 ; (b) bilans d'erreur associés ; (c) AVK de la bande 2 ; (d) bilans d'erreur associés. Chaque courbe d'AVK correspond à un niveau d'altitude défini à partir du profil a priori GGG2020. Les couleurs représentent l'altitude : teintes sombres pour les basses altitudes et teintes claires pour les niveaux plus élevés. Les différentes contributions à l'erreur totale sont indiquées dans la légende.

La concentration moyenne globale de N_2O a augmenté de maniére quasi linéaire sur les deux dernieres decennies (Figure 5.16). En septembre 2025, la concentration atmosphérique moyenne globale de N_2O était de 339,03 ppb, selon les données rapportées sur le site de NOAA [NOAA Global Monitoring Laboratory, 2026]. Malgré l'entrée en vigueur de l'Accord de Paris en 2016, qui vise à limiter l'augmentation de la température globale, les concentrations de N_2O continuent d'augmenter à l'échelle mondiale.
Un suivi précis du N_2O reste donc essentiel. Bien que cette étude fournisse des informations limitées sur le profil vertical, elle contribue à la surveillance de ce gaz en fournissant des données cohérentes avec les tendances globales observées. Ces résultats suggèrent que le N_2O pourrait être considéré comme un nouveau produit en colonne totale dans le cadre de PROFFAST, sous réserve de validations supplémentaires fondées sur l'analyse d'une inversion journalière, saisonnière et annuelle.

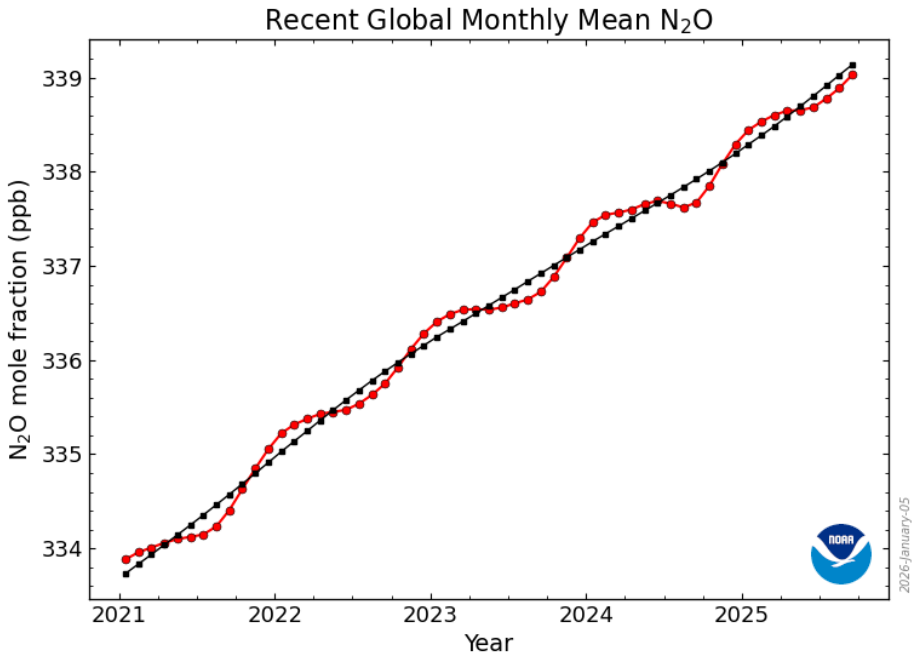


Figure 5.16: La concentration moyenne de N_2O entre 2000 et 2025 [NOAA Global Monitoring Laboratory, 2026]

Comparaison du contenu en informations des deux voies

L'analyse des AVK, des DOFS et des erreurs indique que la voie 2 d'EM27/SUN fournit un contenu en information plus élevé que la voie 1 pour certains gaz, en particulier pour le CO_2 et le CH_4. Pour le CO_2, le tableau 5.3, qui synthétise les DOFS et les valeurs maximales des erreurs selon l'altitude montre que la voie 1 fournit une information verticale limitée, avec une sensibilité concentrée dans la basse atmosphère. Le meilleur résultat est obtenu en combinant les bandes 2 et 3, avec un DOFS de 2,16, ce qui est très proche du résultat obtenu avec les quatre bandes (DOFS = 2,22). Il est donc possible de réduire le temps de calcul sans perte significative. En comparaison, la voie 2 atteint un contenu en information plus élevé avec un DOFS de 3,15, ce qui traduit une meilleure capacité à restituer plusieurs modes verticaux indépendants du CO_2. Pour le CH_4 (tableau A 5.4), la voie 2 présente également un contenu en information plus élevé, avec un DOFS de 2,30 contre 1,82 pour la voie 1, indiquant que deux modes verticaux partiellement indépendants sont accessibles dans cette voie.
Concernant le CO (voir le Tableau B 5.4), la voie 2 fournit une information extrêmement limitée, avec un DOFS de 0,37, indiquant que l'information indépendante provenant des mesures est très limitée et que l'inversion reste principalement contrainte par l'a priori. Cette observation s'explique par l'intensité réduite des raies d'absorption du CO dans cette zone spectrale. Par conséquent, les variations du XCO reflètent principalement la variation de l'a priori. Pour le N_2O, deux bandes exploitables ont été identifiées en voie 2, mais les DOFS restent inférieurs à 1, indiquant une capacité limitée à restituer une information, même si la sensibilité reste non négligeable dans la basse et la moyenne troposphère.
Dans l'ensemble, cette étude montre que la voie 2 fournit un contenu en information supérieur pour le CO_2 et le CH_4, alors que le CO reste faiblement contraint et que le N_2O présente un potentiel exploitable mais limité.
En conclusion, les deux options présentent un intérêt majeur, car elles offrent toutes deux des avantages non négligeables. La voie 1 offre une meilleure sensibilité dans certaines bandes clés utilisées par COCCON, tandis que la voie 2 fournit des informations verticales plus détaillées sur certains gaz. Par exemple, le CH_4 peut être suivi sur les deux voies : la voie 1 pour le suivi et la comparaison avec TCCON, et la voie 2 qui présente un intérêt

particulier, car elle utilise une bande spectrale similaire à celle exploitée par Sentinel-5P (TROPOMI). Cela facilite les comparaisons entre les colonnes totales mesurées au sol et celles issues de l'observation satellitaire, ouvrant ainsi la voie à des validations croisées qui s'avèrent utiles pour le suivi du méthane à grande échelle.

Voie	Bande	DOFS	CO_2							
			Erreur du modèle		Erreur de mesure		Erreur de lissage		Erreur totale	
			S_{fm} (% max)	Altitude	S_{meas} (% max)	Altitude	S_{smooth} (% max)	Altitude	S_{total} (% max)	Altitude
Voie 1	Bande 1 [6038.21709–6107.88233]	1.01	1.356760	0.65	0.792184	0.65	7.750120	0.28	7.858250	0.28
	Bande 2 [6166.21794–6259.02458]	1.93	1.71100	0.28	1.49387	0.28	7.18440	0.28	7.53491	0.28
	Bande 3 [6293.01351–6379.79374]	1.90	1.53706	0.28	1.46421	0.28	7.20534	0.28	7.51155	0.28
	Bande 4 [6463.92236–6533.82866]	0.98	1.974740	0.65	0.799893	0.65	7.756640	0.28	7.936460	0.28
	Bandes 1 et 2	1.98	2.00014	0.28	1.46559	0.28	7.19798	0.28	7.61311	0.28
	Bandes 2 et 3	2.16	2.30291	0.28	1.56021	0.28	7.07130	0.28	7.59874	0.28
	Bandes 3 et 4	1.94	1.73759	0.28	1.46801	0.28	7.20179	0.28	7.55248	0.28
	Bandes 1 à 4	2.22	2.71747	0.28	1.58282	0.28	7.05730	0.28	7.72628	0.28
Voie 2	Bande [4722.0501–5002.1574]	3.15	6.65811	0.28	2.94866	0.28	5.93085	0.65	8.56782	0.28

Table 5.3: Contribution des différentes sources d'erreur et DOFS pour les bandes spectrales considérées.

Voie	Bande	DOFS	CH_4							
			Erreur du modèle		Erreur de mesure		Erreur de lissage		Erreur totale	
			S_{fm} (% max)	Altitude	S_{meas} (% max)	Altitude	S_{smooth} (% max)	Altitude	S_{total} (% max)	Altitude
Voie 1	Bande [5741.2358–6170.0748]	1.82	0.906681	15.41	0.846543	11.01	5.000000	51.05	5.030900	17.85
Voie 2	Bande [4179.1915–4675.7673]	2.30	1.675550	0.65	0.792456	15.41	5.000000	53.13	5.039280	0.28

Tableau A : Contribution des différentes sources d'erreur et DOFS pour CH_4.

Voie	Bande	DOFS	H_2O / CO / N_2O							
			Erreur du modèle		Erreur de mesure		Erreur de lissage		Erreur totale	
			S_{fm} (% max)	Altitude	S_{meas} (% max)	Altitude	S_{smooth} (% max)	Altitude	S_{total} (% max)	Altitude
Voie 1	H_2O [8318.12676–8598.2340]	2.50	0.103191	0.28	1.685190	0.28	5.000040	13.13	5.000470	7.25
Voie 2	CO [4187.1464–4326.9590]	0.37	2.480170	0.65	1.178930	0.65	5.000000	35.85	5.378580	0.65
	N_2O (Bande 1) [4371.0723–4442.9070]	0.94	0.958671	1.65	0.471796	1.13	5.000000	35.85	5.000000	34.13
	N_2O (Bande 2) [4699.14982–4756.7622]	0.69	1.496450	2.81	0.630187	2.81	5.000000	34.13	5.101910	2.21

Tableau B : Contribution des différentes sources d'erreur et DOFS pour H_2O, CO et N_2O.

Table 5.4: Contribution des différentes sources d'erreur et DOFS pour les bandes spectrales considérées (voie 2).

5.3.3 Effet de la matrice de covariance de l'a priori sur les DOFS et les erreurs de lissage pour le CO_2 et le CH_4 pour les deux voies

Pour évaluer l'impact de la prise en compte des corrélations verticales dans la description de l'a priori sur les résultats, une matrice de covariance a été intégrée à l'algorithme d'inversion ARAHMIS. Cette matrice représente de manière réaliste la variabilité atmosphérique autour de la localisation géographique de notre EM27/SUN. C'est en quelque sorte une prise en compte des masses d'air représentatives de notre région et de la date de mesure. L'introduction d'une matrice de covariance modifie la manière dont l'a priori intervient dans l'inversion. Jusqu'ici, chaque niveau du profil pouvait varier indépendamment, ce qui revient à supposer que les erreurs a priori sont sans lien entre les couches. En ajoutant la covariance, on impose au contraire que les variations verticales soient corrélées, comme cela est observé dans l'atmosphère réelle. Cela signifie que l'a priori n'agit plus seulement comme une contrainte sur l'ampleur des variations, mais aussi sur leur forme verticale. Dans le cadre de Rodgers, cela réduit l'espace des solutions possibles et oriente l'inversion vers des profils plus cohérents physiquement. Cette matrice de covariance à été construite à partir des profils atmosphériques issus des mesures de ballons équipés d'un AirCore lancés depuis notre laboratoire ainsi que les données de CAMS (*hues reanalysis*). Nous avons retenu 19 jours autour de la date du spectre étudié. Les profils dérivés de ces mesures couvrent la colonne atmosphérique, de la surface jusqu'à environ 30 km d'altitude. Au-delà de cette altitude, jusqu'à 70 km, les profils ont été complétés à l'aide des sorties du modèle CAMS. Avant d'effectuer le calcul de la matrice de covariance l'ensemble de ces données ont été ré-interpolées sur la grille de GGG2020 afin d'assurer une cohérence totale entre l'a priori utilisé dans notre étude et la matrice de covariance calculée.

Nous avons appliqué cette approche de manière identique pour le CO_2 et le CH_4 des deux voies EM27/SUN. La matrice de covariance permet donc maintenant, non seulement de décrire la variabilité propre à chaque niveau atmosphérique, mais surtout d'introduire les corrélations verticales entre couches. En pratique, cela renforce la cohérence interne du profil a priori et modifie l'équilibre entre la contribution de l'a priori et celle des mesures dans l'inversion.

Le tableau 5.5 compare les DOFS et les erreurs de lissage avec et sans matrice de covariance.

Globalement, l'introduction de la matrice de covariance conduit à une diminution notable des DOFS. En l'absence de covariance, les DOFS peuvent prendre des valeurs supérieures à 1, ce qui suggère une capacité de restitution relativement riche en informations indépendantes. Lorsque la covariance est prise en compte, les DOFS diminuent et se situent entre 0,44 et 1,42 selon les bandes spectrales et le gaz. Cette baisse s'explique par le fait que les corrélations verticales imposent une régularisation plus forte : moins de structures indépendantes peuvent être ajustées sans violer les contraintes a priori.

D'autre part, lorsque la covariance est prise en compte, l'erreur de lissage diminue de manière significative. En l'absence de covariance, les valeurs maximales sur la verticale s'élèvent à environ 7 % dans plusieurs bandes. En revanche, lorsque la covariance est prise en compte, ces valeurs baissent significativement pour atteindre environ 0,06 à 3,26 %, en fonction de la bande considérée. Autrement dit, l'erreur de lissage diminue également, car la covariance impose déjà une structure verticale plus cohérente, ce qui réduit les variations fines que l'inversion doit compenser. Enfin, on observe que la voie 2 conserve globalement de meilleures performances que la voie 1, même après l'intégration de la covariance. Cela confirme que cette voie spectrale, déjà plus riche en information brute, reste moins dégradée par les contraintes a priori et offre un contenu d'information plus robuste.

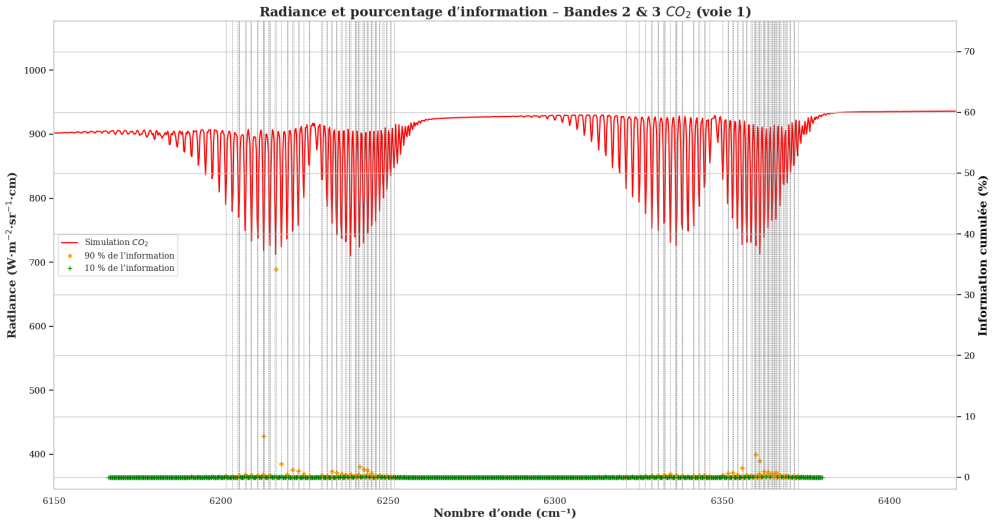
Fenêtre	CO_2					
	Sans matrice de covariance			Avec matrice de covariance		
	DOFS	S_{smooth} (% max)	Altitude	DOFS (avec covariance)	S_{smooth} (% max)	Altitude
Fenêtre 1 : 6038.21709–6107.88233	1.01	7.750120	0.28	0.440	3.26277	0.275
Fenêtre 2 : 6166.21794–6259.02458	1.93	7.18440	0.28	0.979	1.88078	13.13
Fenêtre 3 : 6293.01351–6379.79374	1.90	7.20534	0.28	0.980	1.88071	13.13
Fenêtre 4 : 6463.92236–6533.82866	0.98	7.756640	0.28	0.508	2.91026	0.275
Fenêtres 2 et 3	2.16	7.07130	0.28	0.997	1.87477	13.13
	CH_4					
Fenêtre : 5741.2358300–6170.07483765	1.82	5.00000	51.05	1.099	0.06545	21.81
	CO_2					
Fenêtre CO_2 : 4722.0501–5002.1574	3.15	5.93085	0.65	1.047	1.82914	13.13
	CH_4					
Fenêtre CH_4 : 4179.1915–4675.7673	2.30	5.00000	53.13	1.424	0.060426	21.81

Table 5.5: Comparaison des DOFS et de l'erreur de lissage avec et sans matrice de covariance pour le CO_2 et le CH_4 pour les deux voies.

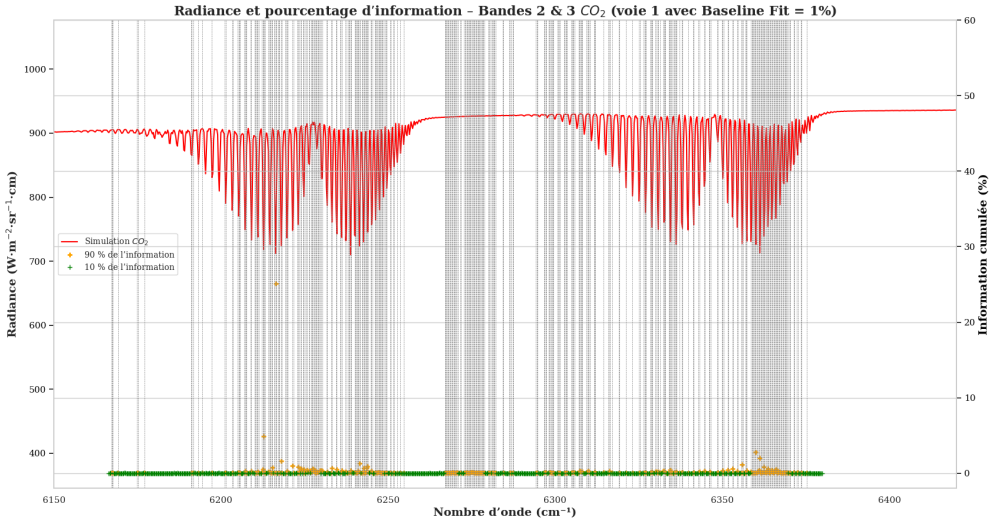
5.3.4 Sélection des canaux

Les deux voies spectrales de l'EM27/SUN contiennent un grand nombre de canaux, qui ne contribuent pas tous de manière utile à l'estimation des gaz étudiés. Certains canaux sont peu sensibles au gaz d'intérêt, d'autres sont fortement corrélés entre eux, et d'autres encore peuvent être dominés par le continuum ou par des paramètres supplémentaires tels que la ligne de base ou la correction du spectre solaire. Dans ce contexte, il n'est pas optimal d'utiliser l'ensemble des canaux dans l'inversion. Il est donc nécessaire de sélectionner ceux qui apportent réellement de l'information indépendante sur le gaz considéré. Pour cela, ARAHMIS utilise la méthode de sélection proposée par Rodgers [Rodgers, 2000], qui repose sur une analyse matricielle du contenu en information pour sélectionner les canaux, dans le but de minimiser le temps de calcul et d'éliminer les canaux redondants ou fortement corrélés entre eux. Cette méthode permet d'optimiser la restitution des paramètres géophysiques. Elle consiste à sélectionner de manière objective un sous-ensemble de canaux. L'objectif est de fournir le plus d'informations possible issues des instruments.
L'exemple représentatif de la sélection des canaux spectraux est présenté dans la figure 5.17. Elle montre la sélection des canaux de la bande de couplage des bandes 2 et 3 de CO_2 de la voie 1 de l'EM27/SUN avec (a) la sélection sans ajustement de la ligne de base, où l'information est principalement concentrée autour des raies d'absorption les plus marquées, et (b) avec 1 % d'ajustement de la ligne de base, où l'on observe une sélection plus large des canaux. Cette introduction de 1% d'erreur sur la ligne de base permet de prendre en compte les petites variations qui peuvent apparaître entre les spectres et permet de prendre en compte que dans le cadre de futures inversions systématiques nous devrons aussi un peu ajuster notre ligne de base. Cette valeur est ici purement arbitraire mais nous paraît être assez réaliste. La courbe rouge représente l'impact de l'absorption du CO_2, et l'on peut clairement y observer les raies d'absorption de la molécule. Les zones grisées verticales correspondent aux canaux identifiés comme informatifs par la méthode de sélection. Les croix jaunes indiquent les canaux nécessaires pour atteindre 90 % de l'information cumulée, tandis que les croix vertes correspondent aux canaux associés aux 10 % restants. Cette représentation permet de visualiser la distribution spectrale de l'information, ainsi que les régions qui contribuent le plus à la sensibilité au CO_2.

La comparaison entre les figures (a) et (b) montre que l'algorithme devient plus flexible et plus réaliste face aux incertitudes radiométriques lorsque l'on ajoute une liberté sur la ligne de base, ce qui est un avantage certain. Dans notre étude, la ligne de base est ajustée à partir du spectre solaire de l'ATMOS. Cette intégration prend notamment en compte l'effet des aérosols (AOD) et l'angle zénithal solaire (SZA) 4.2.2.1. Cette méthode permet de mieux représenter l'atténuation atmosphérique du signal mesuré. Cependant, cet ajustement peut aussi réduire l'information utile associée au gaz en redistribuant une partie de l'information vers des canaux liés à l'ajustement du continuum.
Afin de mieux comprendre la dispersion de l'information sur les canaux spectraux, nous avons procédé à une comparaison. Cette dernière porte sur le nombre de canaux nécessaires pour contenir 90 % de l'information cumulée, avec et sans ajustement de la ligne de base. Les résultats sont présentés dans le tableau 5.6 pour le CO_2 et le CH_4 de la voie 1.
Le CO_2 présente des différences marquées entre les deux bandes du DOFS faible (bande 1 de $\approx 1,01$) et élevé (bande 2 de $\approx 1,93$). L'ajustement de la ligne de base avec 1% entraine une augmentation plus forte du nombre de canaux pour la bande 1 (48 à 170, soit $\approx *3,5$) que pour la bande 2 (73 à 177, soit $\approx *2,4$). Cela montre que lorsque la bande est fortement informative, l'effet de l'ajustement de la ligne de base est moins prononcé. En outre, bien que la combinaison des bandes 2 et 3 couvre une région spectrale plus étendue qui apporte un DOFS plus élevé de 2,16, l'accroissement du nombre de canaux reste comparable à celui observé pour les bandes 2 et 3 considérées séparément (145 à 370 soit $\approx *2,6$). Cela montre que l'ajout de la bande 3 apporte principalement des informations complémentaires, sans changer significativement la manière dont l'ajustement redistribue l'information.
L'effet est encore plus marqué pour le CH_4, le nombre de canaux passe de 42 à 394 ($\approx *9,4$). Cela montre que l'ajustement de la ligne de base a un impact bien plus important sur la distribution de l'information que pour le CO_2. Cette augmentation importante est cohérente avec la plus faible intensité des raies du CH_4 dans la voie 1 : dans ce cas, la ligne de base absorbe une partie plus importante de la variabilité du spectre, ce qui disperse l'information utile sur un plus grand nombre de canaux.



(a)



(b)

Figure 5.17: La selection des canaux pour la bande de couplage 2 et 3 de la voie 1 (jaune = 90%, vert = 10% de l'information cumulée). la figure (a) sans ajustement de la ligne de base et (b) avec 1% d'ajustement

CO_2		
Bandes	Nombre de canaux avec 90 % d'information	Nombre de canaux avec 90 % d'information (ajustement de la ligne de base = 0.01)
Bande 1	48	170
Bande 2	73	177
Bande 3	69	165
Bande 4	48	162
Bandes 2 et 3	145	370
CH_4		
Bande CH_4	42	394

Table 5.6: Nombre de canaux contenant 90 % de l'information avec et sans ajustement de la ligne de base de la voie 1 de CO_2 et deCH_4.

Conclusion du chapitre

Cette étude a permis de caractériser en détail le contenu en informations des mesures EM27/SUN pour le CO_2, le CH_4, le CO, le N_2O et le H_2O. Les résultats montrent que la voie 2 apporte davantage d'information verticale pour le CO_2 et le CH_4, avec des DOFS plus élevés et des noyaux moyens mieux structurés. Le CO et le N_2O présentent au contraire des DOFS faibles, ce qui limite leur restitution verticale mais n'empêche pas leur utilisation pour suivre des variations intégrées ou des épisodes spécifiques.
Le choix pour le couplage des bandes 2 et 3 pour le CO_2, le CH_4 et H_2O de la voie 1 de EM27/SUN, ainsi que la bande de CO de la voie 2, sont confirmés par une comparaison entre notre sélection des bandes pour chaque molécule et les choix intégrés dans PROFFAST.
L'introduction d'une matrice de covariance issue de données AirCore/CAMS modifie sensiblement la répartition de l'information entre a priori et mesure, en réduisant le DOFS et en diminuant les erreurs de lissage. Cela illustre l'importance de décrire correctement la variabilité atmosphérique dans l'inversion.
Enfin, l'analyse de la sélection des canaux montre que l'ajustement du continuum élargit la distribution de l'information et peut fortement augmenter le nombre de canaux utiles,

en particulier pour les bandes moins informatives.
Dans l'ensemble, cette approche fournit un cadre clair pour optimiser l'utilisation des deux voies de l'EM27/SUN et pour orienter les développements futurs, notamment en vue de produits supplémentaires (comme le N_2O) ou d'applications ciblées (par exemple la détection d'épisodes extrêmes de CO).

Conclusion générale et perspectives

Le suivi quantitatif et spatialisé des GES est un enjeu majeur pour les générations actuelles et futures. Cependant, les approches conventionnelles de télédétection spatiale présentent des limites pour quantifier la concentration de GES proche de la basse atmosphère. En outre, ces données doivent être suffisamment précises pour répondre à l'objectif européen qui vise à développer des systèmes satellitaires pour la surveillance des émissions de CO_2, avec une précision de 1 ppm et des erreurs systématiques inférieures à 0,5 ppm, d'ici 2030 [Ciais *et al.*, 2015]. C'est pour calibrer et valider ces observations satellitaires des GES qu'a été créé le réseau COCCON, qui a permis de déployer des centaines de spectromètres EM27/SUN sur différents sites. Dans le cadre de ce réseau, les mesures sont généralement traitées avec le logiciel PROFFAST. Il présente l'avantage d'être un outil simple à déployer et contribue à un traitement harmonisé des différents EM27/SUN, mais il souffre toutefois d'un certain effet « boîte noire », limitant la maîtrise totale de la précision de l'inversion (le facteur de débiaisage est parfois peu ou pas expliqué). C'est la raison pour laquelle le logiciel ARAHMIS a été utilisé pour la première fois dans cette thèse, afin d'étudier le contenu en informations de cet instrument.

En termes d'approche méthodologique, nous avons choisi un spectre maximal d'une journée caractérisée par un ensoleillement excellent, stable et intense (le 13 juin 2023). Ensuite, nous avons adapté les entrées d'ARAHMIS au traitement des données EM27/SUN. Pour ce faire, il a fallu tout d'abord mettre en place une calibration radiométrique afin d'obtenir un spectre en unités de radiance, comme l'exige Arahmis. Puis, nous avons pris en compte l'état de l'atmosphère en effectuant les adaptations nécessaires pour pouvoir utiliser l'a priori de PROFFAST (GGG2020), et en introduisant les épaisseurs optiques des aérosols (AOD et ROD via le réseau AERONET). Nous avons également

introduit tous les effets connus dans les gammes spectrales de l'EM27/SUN comme les CIA, le linemixing, les continua (CO2, H20) ainsi que le spectre solaire à haute résolution (`http://bdap.ipsl.fr/voscat/spectressolaires.html`). Enfin, nous avons considéré le bruit de l'instrument ainsi que sa fonction d'appareil spécifique.

Les résultats des différentes analyses ont permis de caractériser en détail le contenu en informations des mesures EM27/SUN pour le CO_2, le CH_4, le CO, le N_2O et le H_2O. Les résultats montrent que la voie 2 apporte davantage d'information verticale pour le CO_2 et le CH_4, avec des DOFS plus élevés et des noyaux de moyennage mieux structurés. Le CO et le N_2O présentent au contraire des DOFS faibles, ce qui limite leur restitution verticale mais n'empêche pas leur utilisation pour suivre des variations intégrées ou des évènements intenses.

Le choix pour le couplage de la bande 2 et 3 pour le CO_2, le CH_4 et H_2O de la voie 1 de EM27/SUN, ainsi que la bande de CO de la voie 2, sont confirmés par une comparaison entre notre sélection des bandes pour chaque molécule et les choix intégrés dans PROFFAST.

L'introduction d'une matrice de covariance issue de données AirCore/CAMS modifie sensiblement la répartition de l'information entre a priori et mesure, en réduisant le DOFS et en diminuant les erreurs de lissage. Cela illustre l'importance de décrire correctement la variabilité atmosphérique dans l'inversion.

Enfin, l'analyse de la sélection des canaux montre que l'ajustement du continuum (ligne de base) élargit la distribution de l'information et peut fortement augmenter le nombre de canaux utiles, en particulier dans les bandes moins informatives.

Dans l'ensemble, cette approche fournit un cadre clair pour optimiser l'utilisation des deux voies de l'EM27/SUN et pour orienter les développements futurs de la détection des GES, notamment pour les traces telles que le N_2O, ou pour des applications ciblées (par exemple la détection d'épisodes extrêmes de CO).

Cependant, cette étude est limitée à l'analyse d'un contexte spécifique, à savoir un seul spectre d'une journée ensoleillée, et ne prend pas en compte la temporalité journalière ou annuelle dans son ensemble. La suite à donner à ces travaux de thèse consisterait donc à automatiser ARAHMIS pour les inversions quotidiennes (jeu de spectres d'une journée complète). Le développement d'une méthodologie robuste est nécessaire pour mettre en œuvre une routine de traitement. Tout d'abord, la calibration radiométrique devra être automatisée en utilisant le gain et l'offset que nous avons déterminés et qui sont

représentatifs de la réponse de notre instrument. Seuls deux facteurs correctifs explicites, pourront varier:

- Il s'agit premièrement de l'épaisseur optique des aérosols (AOD), que nous prenons déjà en compte mais dont l'extraction des données AERONET devra être automatisée.

- Ensuite, un second facteur correspondant à un coefficient représentant la dégradation de la luminosité par rapport à la radiance attendue devra être introduit. Il sera, à la fois, représentatif des passages nuageux et de l'état de dégradation des miroirs de l'instrument EM27/SUN (évolution des performances optiques de l'instrument au fil du temps).

Ensuite, une automatisation complète des entrées d'ARAHMIS devra être mise en place pour permettre le traitement systématique des spectres. Cela inclut la détermination automatique de l'angle zénithal solaire au moment de chaque acquisition. En outre, il sera nécessaire de procéder à l'extraction automatique des valeurs journalières d'épaisseur optique des aérosols (AOD) à partir de la base de données AERONET. Cette opération s'avère possible puisque notre site est équipé d'un photomètre du réseau AERONET. Enfin, il faudra développer une procédure automatisée permettant d'intégrer les profils a priori issus de GGG2020, en réalisant l'interpolation des trois profils autour de midi, puis de les convertir au format ATM requis par ARAHMIS.
L'ensemble de ces étapes constitue la méthodologie à suivre pour obtenir une inversion complète à l'échelle d'une journée avec les deux options possibles avec ARAHMIS, fondées soit sur la résolution de l'équation de transfert radiatif ou par le calcul du facteur d'échelle (*Scaling Factor*), et donc de comparer les résultats avec ceux de PROFFAST.
L'un des objectifs majeurs de cette comparaison est de vérifier si l'inversion à partir de la résolution de l'équation de transfert radiatif permet réellement d'obtenir des informations en altitude, ce que semble démontrer notre analyse du contenu en information.
Enfin, une perspective supplémentaire consistera à élargir notre analyse de H_2O à l'ensemble de ses bandes d'absorption possibles sur les deux voies. Par ailleurs, l'exploration du potentiel de l'extraction du N_2O constitue une voie de recherche complémentaire prometteuse, qui permettrait d'élargir le champ d'application de la méthodologie développée à

d'autres gaz atmosphériques d'intérêt.

Références

[mos, 1991] (1991). *Spectroscopie FTIR quantitative de réflectance et transmittance diffuses, author=Moser-Boroumand, Farnaz.* (Thèse de doctorat). EPFL. (Référence citée en pages vi, 53, 54 et 60)

[ICO, 2026] (2026). ICOS Carbon Portal – Integrated Carbon Observation System. `https://www.icos-cp.eu`. Accédé le 3 septembre 2026. (Référence citée en page 105)

[Aigner *et al.*, 2023] Aigner, P., Makowski, M., Luther, A., Dietrich, F. et Chen, J. (2023). Pyra : automated EM27/SUN greenhouse gas measurement software. *Journal of Open Source Software*, *8*(84), 5131. (Référence citée en page 74)

[Alalam *et al.*, 2024] Alalam, P., Ducos, F. et Herbin, H. (2024). The role of refractive indices in measuring mineral dust with high-spectral-resolution infrared satellite sounders : application to the Gobi Desert. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *24*(21), 12277–12294. (Référence citée en page 107)

[Alberti *et al.*, 2024] Alberti, C., Hase, F., Dubravica, D., Dehn, A. et Castracane, P. (2024). *The COllaborative Carbon Column Observing Network (COCCON) quality management.* Rapport technique, Copernicus Meetings. (Référence citée en page 34)

[Alberti *et al.*, 2022] Alberti, C., Hase, F., Frey, M., Dubravica, D., Blumenstock, T., Dehn, A., Castracane, P., Surawicz, G., Harig, R., Baier, B. C. *et al.* (2022). Improved calibration procedures for the EM27/SUN spectrometers of the COllaborative Carbon Column Observing Network (COCCON). *Atmospheric Measurement Techniques*, *15*(8), 2433–2463. (Référence citée en pages 71, 72, 73, 115, 116 et 148)

[Arrhenius et Holden, 1897] Arrhenius, S. et Holden, E. S. (1897). On the influence of carbonic acid in the air upon the temperature of the earth. *Publications of the Astronomical Society of the Pacific*, *9*(54), 14–24. (Référence citée en page 18)

[Avrett, 2008] Avrett, E. H. (2008). Introduction to Non-LTE radiative transfer and atmospheric modeling. *Lecture notes*. (Référence citée en page 90)

[Ayasse *et al.*, 2023] Ayasse, A. K., Cusworth, D., O'Neill, K., Fisk, J., Thorpe, A. K. et Duren, R. (2023). Performance and sensitivity of column-wise and pixel-wise methane retrievals for imaging spectrometers. *Atmospheric Measurement Techniques*, *16*(24), 6065–6074. `http://dx.doi.org/10.5194/amt-16-6065-2023`. Récupéré de `https://amt.copernicus.org/articles/16/6065/2023/` (Référence citée en page 29)

[Bacsik *et al.*, 2004] Bacsik, Z., Mink, J. et Keresztury, G. (2004). FTIR spectroscopy of the atmosphere. I. Principles and methods. *Applied spectroscopy reviews*, *39*(3), 295–363. (Référence citée en page 53)

[Bader, 2015] Bader, W. (2015). *Long-Term Study of Methane and Two of its Derivatives from Solar Observations Recorded at the Jungfraujoch Station*. Universite de Liege (Belgium). (Référence citée en page 97)

[Bastviken *et al.*, 2022] Bastviken, D., Wilk, J., Duc, N. T., Gålfalk, M., Karlson, M., Neset, T.-S., Opach, T., Enrich-Prast, A. et Sundgren, I. (2022). Critical method needs in measuring greenhouse gas fluxes. *Environmental Research Letters*, *17*(10), 104009. (Référence citée en pages 11 et 25)

[Bernath, 2025] Bernath, P. F. (2025). *Spectra of atoms and molecules*. Oxford university press. (Référence citée en page 48)

[Brchnelova, 2020] Brchnelova, M. (2020). *Radiation Modelling for Hypersonic and Combustion Flows*. (Thèse de doctorat). `http://dx.doi.org/10.13140/RG.2.2.27716.55689` (Référence citée en pages vi et 43)

[Bruggeman *et al.*, 2014] Bruggeman, P. J., Sadeghi, N., Schram, D. et Linss, V. (2014). Gas temperature determination from rotational lines in non-equilibrium plasmas : a review. *Plasma Sources Science and Technology*, *23*(2), 023001. (Référence citée en page 46)

[Bruhwiler *et al.*, 2021] Bruhwiler, L., Basu, S., Butler, J. H., Chatterjee, A., Dlugokencky, E., Kenney, M. A., McComiskey, A., Montzka, S. A. et Stanitski, D. (2021). Observations of greenhouse gases as climate indicators. *Climatic Change*, *165*(1), 12. (Référence citée en pages 11 et 25)

[Buchwitz *et al.*, 2013] Buchwitz, M., Reuter, M., Bovensmann, H., Pillai, D., Heymann, J., Schneising, O., Rozanov, V., Krings, T., Burrows, J., Boesch, H. *et al.* (2013). Carbon monitoring satellite (carbonsat) : Assessment of atmospheric CO_2 and CH_4 retrieval errors by error parameterization. *Atmospheric Measurement Techniques*, *6*(12), 3477–3500. (Référence citée en pages 12 et 25)

[Cassia *et al.*, 2018] Cassia, R., Nocioni, M., Correa-Aragunde, N. et Lamattina, L. (2018). Climate change and the impact of greenhouse gasses : CO_2 and NO, friends and foes of plant oxidative stress. *Frontiers in plant science*, *9*, 273. (Référence citée en page 11)

[Chai *et al.*, 2020] Chai, J., Zhang, K., Xue, Y., Liu, W., Chen, T., Lu, Y. et Zhao, G. (2020). Review of MEMS based Fourier transform spectrometers. *Micromachines*, *11*(2), 214. (Référence citée en page 12)

[Chatterjee, 1999] Chatterjee, K. (1999). Causes of greenhouse gas emissions. In *Climate Change : An Integrated Perspective* 143–200. Springer. (Référence citée en page 21)

[Cheng, 2019] Cheng, J. (2019). Ground-based Measurements of Atmospheric Trace Gases in Beijing during the Olympic Games. *Sci*, *1*(1), 23. (Référence citée en page 97)

[Chevallier *et al.*, 2017] Chevallier, F., Bousquet, P., Breon, F.-M. et Broquet, G. (2017). Quantifier les puits et sources des gaz à effet de serre : une nouvelle ambition pour la télédétection spatiale. *La Météorologie*, (97), 46. (Référence citée en page 32)

[Ciais *et al.*, 2015] Ciais, P., Crisp, D., Denier van der Gon, H., Engelen, R., Heimann, M., Janssens-Maenhout, G., Rayner, P. et Scholze, M. (2015). *Towards a European operational observing system to monitor fossil CO_2 emissions*. Rapport technique JRC98161, European Commission, Expert Group Report. Final report from the Expert Group (Référence citée en pages 12, 25 et 169)

[Clough *et al.*, 2005] Clough, S. A., Shephard, M. W., Mlawer, E. J., Delamere, J., Iacono, M. J., Cady-Pereira, K., Boukabara, S. et Brown, P. D. (2005). Atmospheric radiative transfer modeling : A summary of the AER codes. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, *91*(2), 233–244. (Référence citée en pages 93 et 96)

[Collins *et al.*, 2006] Collins, W., Ramaswamy, V., Schwarzkopf, M. D., Sun, Y., Portmann, R. W., Fu, Q., Casanova, S., Dufresne, J.-L., Fillmore, D. W., Forster, P. *et al.* (2006). Radiative forcing by well-mixed greenhouse gases : Estimates from climate models in the Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) Fourth Assessment Report (AR4). *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *111*(D14). (Référence citée en page 95)

[Connor *et al.*, 2015] Connor, B., Sherlock, V., Toon, G., Wunch, D. et Wennberg, P. (2015). GFIT2 : an experimental algorithm for vertical profile retrieval from near IR spectra. *Atmospheric Measurement Techniques Discussions*, *8*(11). (Référence citée en page 97)

[Crawford *et al.*, 1949] Crawford, M., Welsh, H. et Locke, J. (1949). Infra-red absorption of oxygen and nitrogen induced by intermolecular forces. *Physical Review*. (Référence citée en page 51)

[Crisp *et al.*, 2017] Crisp, D., Pollock, H. R., Rosenberg, R., Chapsky, L., Lee, R. A. M., Oyafuso, F. A., Frankenberg, C., O'Dell, C. W., Bruegge, C. J., Doran, G. B., Eldering, A., Fisher, B. M., Fu, D., Gunson, M. R., Mandrake, L., Osterman, G. B., Schwandner, F. M., Sun, K., Taylor, T. E., Wennberg, P. O. et Wunch, D. (2017). The on-orbit performance of the Orbiting Carbon Observatory-2 (OCO-2) instrument and its radiometrically calibrated products. *Atmospheric Measurement Tech-*

niques, *10*(1), 59–81. http://dx.doi.org/10.5194/amt-10-59-2017. Récupéré de https://amt.copernicus.org/articles/10/59/2017/ (Référence citée en page 29)

[de La Casinière *et al.*, 2005] de La Casinière, A., Cachorro, V., Smolskaia, I., Lenoble, J., Sorribas, M., Houët, M., Massot, O., Antón, M. et Vilaplana, J. M. (2005). Comparative measurements of total ozone amount and aerosol optical depth during a campaign at El Arenosillo, Huelva, Spain. *Annales Geophysicae*, *23*(11), 3399–3406. http://dx.doi.org/10.5194/angeo-23-3399-2005. Récupéré de https://angeo.copernicus.org/articles/23/3399/2005/ (Référence citée en page 109)

[Delahaye *et al.*, 2021] Delahaye, T., Armante, R., Scott, N., Jacquinet-Husson, N., Chédin, A., Crépeau, L., Crevoisier, C., Douet, V., Perrin, A., Barbe, A. *et al.* (2021). The 2020 edition of the GEISA spectroscopic database. *Journal of Molecular Spectroscopy*, *380*, 111510. (Référence citée en page 94)

[Deutscher *et al.*, 2010] Deutscher, N., Griffith, D., Bryant, G., Wennberg, P., Toon, G., Washenfelder, R., Keppel-Aleks, G., Wunch, D., Yavin, Y., Allen, N. *et al.* (2010). Total column CO_2 measurements at Darwin, Australia-site description and calibration against in situ aircraft profiles. *Atmospheric Measurement Techniques*, *3*(4), 947–958. (Référence citée en page 85)

[Diémoz *et al.*, 2016] Diémoz, H., Eleftheratos, K., Kazadzis, S., Amiridis, V. et Zerefos, C. S. (2016). Retrieval of aerosol optical depth in the visible range with a brewer spectrophotometer in athens. *Atmospheric Measurement Techniques*, *9*(4), 1871–1888. http://dx.doi.org/10.5194/amt-9-1871-2016. Récupéré de https://amt.copernicus.org/articles/9/1871/2016/ (Référence citée en page 110)

[Dietrich *et al.*, 2021] Dietrich, F., Chen, J., Voggenreiter, B., Aigner, P., Nachtigall, N. et Reger, B. (2021). MUCCnet : Munich urban carbon column network. *Atmospheric Measurement Techniques*, *14*(2), 1111–1126. (Référence citée en page 74)

[Dogniaux, 2021] Dogniaux, M. (2021). *Suivi de la concentration atmosphérique de CO_2 par satellite : performances et sensibilités des prochains concepts d'observation dans le*

proche infrarouge. (Thèse de doctorat). Institut Polytechnique de Paris. (Référence citée en page 84)

[El Kattar *et al.*, 2020] El Kattar, M.-T., Auriol, F. et Herbin, H. (2020). Instrumental characteristics and potential greenhouse gas measurement capabilities of the Compact High-Spectral-Resolution Infrared Spectrometer : CHRIS. *Atmospheric Measurement Techniques*, *13*(7), 3769–3786. (Référence citée en pages 107 et 108)

[El Kattar *et al.*, 2025] El Kattar, M. T., Wei, T., Saxena, A., Herbin, H. et Chen, W. (2025). Potential CO_2 measurement capabilities of a transportable Near Infrared Laser Heterodyne Radiometer (LHR). *Atmospheric Measurement Techniques*, *18*(17), 4515–4526. (Référence citée en page 115)

[Eldering *et al.*, 2017] Eldering, A., Wennberg, P., Crisp, D., Schimel, D., Gunson, M., Chatterjee, A., Liu, J., Schwandner, F., Sun, Y., O'dell, C. *et al.* (2017). The Orbiting Carbon Observatory-2 early science investigations of regional carbon dioxide fluxes. *Science*, *358*(6360), eaam5745. (Référence citée en page 30)

[Emma Turner et Cimini, 2022] Emma Turner, Stuart Fox, V. M. et Cimini, D. (2022). EUMETSAT MW/sub-mm Spectroscopy Literature Review. (Référence citée en page 95)

[Erland *et al.*, 2022] Erland, B. M., Thorpe, A. K. et Gamon, J. A. (2022). Recent advances toward transparent methane emissions monitoring : a review. *Environmental Science & Technology*, *56*(23), 16567–16581. (Référence citée en pages 12, 24 et 25)

[Evseeva *et al.*, 2021] Evseeva, O., Evseeva, S. et Dudarenko, T. (2021). The impact of human activity on the global warming. Dans *E3S Web of Conferences*, volume 284, p. 11017. EDP Sciences. (Référence citée en page 20)

[Fabry et Buisson, 1913] Fabry, C. et Buisson, H. (1913). L'absorption de l'ultra-violet par l'ozone et la limite du spectre solaire. *J. Phys. Theor. Appl.*, *3*(1), 196–206. (Référence citée en page 39)

[Fässler, 2026] Fässler, A. (2026). *Mankind's Problem : Climate Change : Scientific Facts with Philosophical Considerations and Contributions*. Springer Nature. (Référence citée en page 22)

[Feld *et al.*, 2024] Feld, L., Herkommer, B., Vestner, J., Dubravica, D., Alberti, C. et Hase, F. (2024). Proffastpylot : Running proffast with python. *Journal of Open Source Software*, *9*(96), 6481. (Référence citée en pages 75, 101 et 102)

[Filonchyk *et al.*, 2024] Filonchyk, M., Peterson, M. P., Zhang, L., Hurynovich, V. et He, Y. (2024). Greenhouse gases emissions and global climate change : Examining the influence of CO_2, CH_4, and N_2O. *Science of The Total Environment*, *935*, 173359. (Référence citée en page 21)

[for the Detection of Atmospheric Composition Change (NDACC),] for the Detection of Atmospheric Composition Change (NDACC), N. About NDACC. Hosted by NASA Langley Research Center. Récupéré le 2025-11-12 de `https://ndacc.larc.nasa.gov/about` (Référence citée en page 34)

[Forster *et al.*, 2025] Forster, E. J., Styles, D. et Healey, J. R. (2025). Temperate forests can deliver future wood demand and climate-change mitigation dependent on afforestation and circularity. *Nature communications*, *16*(1), 3872. (Référence citée en page 23)

[Frey *et al.*, 2015] Frey, M., Hase, F., Blumenstock, T., Groß, J., Kiel, M., Mengistu Tsidu, G., Schäfer, K., Sha, M. et Orphal, J. (2015). Calibration and instrumental line shape characterization of a set of portable ftir spectrometers for detecting greenhouse gas emissions. *Atmospheric Measurement Techniques*, *8*(7), 3047–3057. (Référence citée en pages 73 et 115)

[Frey *et al.*, 2019] Frey, M., Sha, M. K., Hase, F., Kiel, M., Blumenstock, T., Harig, R., Surawicz, G., Deutscher, N. M., Shiomi, K., Franklin, J. E. *et al.* (2019). Building the COllaborative Carbon Column Observing Network (COCCON) : long-term stability and ensemble performance of the EM27/SUN Fourier transform spectrometer. *Atmospheric Measurement Techniques*, *12*(3), 1513–1530. (Référence citée en pages 12, 65 et 72)

[Frey *et al.*, 2021] Frey, M. M., Hase, F., Blumenstock, T., Dubravica, D., Groß, J., Göttsche, F., Handjaba, M., Amadhila, P., Mushi, R., Morino, I. *et al.* (2021). Long-term column-averaged greenhouse gas observations using a COCCON spectrometer at the high surface albedo site Gobabeb, Namibia. *Atmospheric Measurement Techniques Discussions*, *2021*, 1–42. (Référence citée en page 100)

[Friedlingstein *et al.*, 2025] Friedlingstein, P., O'Sullivan, M., Jones, M. W., Andrew, R. M., Hauck, J., Landschützer, P., Le Quéré, C., Li, H., Luijkx, I. T., Olsen, A., Peters, G. P., Peters, W., Pongratz, J., Schwingshackl, C., Sitch, S., Canadell, J. G., Ciais, P., Jackson, R. B., Alin, S. R., Arneth, A., Arora, V., Bates, N. R., Becker, M., Bellouin, N., Berghoff, C. F., Bittig, H. C., Bopp, L., Cadule, P., Campbell, K., Chamberlain, M. A., Chandra, N., Chevallier, F., Chini, L. P., Colligan, T., Decayeux, J., Djeutchouang, L. M., Dou, X., Duran Rojas, C., Enyo, K., Evans, W., Fay, A. R., Feely, R. A., Ford, D. J., Foster, A., Gasser, T., Gehlen, M., Gkritzalis, T., Grassi, G., Gregor, L., Gruber, N., Gürses, O., Harris, I., Hefner, M., Heinke, J., Hurtt, G. C., Iida, Y., Ilyina, T., Jacobson, A. R., Jain, A. K., Jarníková, T., Jersild, A., Jiang, F., Jin, Z., Kato, E., Keeling, R. F., Klein Goldewijk, K., Knauer, J., Korsbakken, J. I., Lan, X., Lauvset, S. K., Lefèvre, N., Liu, Z., Liu, J., Ma, L., Maksyutov, S., Marland, G., Mayot, N., McGuire, P. C., Metzl, N., Monacci, N. M., Morgan, E. J., Nakaoka, S.-I., Neill, C., Niwa, Y., Nützel, T., Olivier, L., Ono, T., Palmer, P. I., Pierrot, D., Qin, Z., Resplandy, L., Roobaert, A., Rosan, T. M., Rödenbeck, C., Schwinger, J., Smallman, T. L., Smith, S. M., Sospedra-Alfonso, R., Steinhoff, T., Sun, Q., Sutton, A. J., Séférian, R., Takao, S., Tatebe, H., Tian, H., Tilbrook, B., Torres, O., Tourigny, E., Tsujino, H., Tubiello, F., van der Werf, G., Wanninkhof, R., Wang, X., Yang, D., Yang, X., Yu, Z., Yuan, W., Yue, X., Zaehle, S., Zeng, N. et Zeng, J. (2025). Global Carbon Budget 2024. *Earth System Science Data*, *17*(3), 965–1039. `http://dx.doi.org/10.5194/essd-17-965-2025`. Récupéré de `https://essd.copernicus.org/articles/17/965/2025/` (Référence citée en pages v, 22 et 23)

[Gakaev *et al.*, 2024] Gakaev, R., Gatsaeva, L. et Eskiev, M. (2024). Impacts of greenhouse gas-induced climate change : risks, vulnerabilities, and adaptation strategies. Dans *E3S Web of Conferences*, volume 537, p. 03009. EDP Sciences. (Référence citée en page 24)

[Galipeau, 2024] Galipeau, J. (2024). Le rôle des grands émetteurs industriels dans la décarbonation du québec : vers une plus grande efficience du spede. (Référence citée en page 11)

[Gaudet *et al.*, 2017] Gaudet, B. J., Lauvaux, T., Deng, A. et Davis, K. J. (2017). Exploration of the impact of nearby sources on urban atmospheric inversions using large eddy simulation. *Elementa Science of the Anthropocene*, *5*, 60. (Référence citée en page 86)

[Gelb *et al.*, 1974] Gelb, A. *et al.* (1974). *Applied optimal estimation*. MIT press. (Référence citée en page 125)

[Gisi, 2012] Gisi, M. (2012). *Setup of precise camera based solar tracker systems and greenhouse gas measurements using a modified portable spectrometer*. (Thèse de doctorat). Karlsruhe, Karlsruher Institut für Technologie (KIT), Diss., 2012. (Référence citée en page 70)

[Gisi *et al.*, 2011a] Gisi, M., Hase, F., Dohe, S. et Blumenstock, T. (2011a). Camtracker : a new camera controlled high precision solar tracker system for ftir-spectrometers. *Atmospheric Measurement Techniques*, *4*(1), 47–54. (Référence citée en pages vi et 66)

[Gisi *et al.*, 2011b] Gisi, M., Hase, F., Dohe, S. et Blumenstock, T. (2011b). Camtracker : a new camera controlled high precision solar tracker system for FTIR-spectrometers. *Atmospheric Measurement Techniques*, *4*(1), 47–54. `http://dx.doi.org/10.5194/amt-4-47-2011`. Récupéré de `https://amt.copernicus.org/articles/4/47/2011/` (Référence citée en page 66)

[Gisi *et al.*, 2012] Gisi, M., Hase, F., Dohe, S., Blumenstock, T., Simon, A. et Keens, A. (2012). XCO_2-measurements with a tabletop FTS using solar absorption spectroscopy. *Atmospheric Measurement Techniques*, *5*(11), 2969–2980. `http://dx.doi.org/10.5194/amt-5-2969-2012`. Récupéré de `https://amt.copernicus.org/articles/5/2969/2012/` (Référence citée en pages vi, 13, 66, 67, 69 et 75)

[Gordon *et al.*,] Gordon, I., Rothman, L., Hargreaves, R., Hashemi, R., Karlovets, E.,

Skinner, F., Conway, E., Hill, C., Kochanov, R., Tan, Y., Wcisło, P., Finenko, A., Nelson, K., Bernath, P., Birk, M., Boudon, V., Campargue, A., Chance, K., Coustenis, A., Drouin, B., Flaud, J., Gamache, R., Hodges, J., Jacquemart, D., Mlawer, E., Nikitin, A., Perevalov, V., Rotger, M., Tennyson, J., Toon, G., Tran, H., Tyuterev, V., Adkins, E., Baker, A., Barbe, A., Canè, E., Császár, A., Dudaryonok, A., Egorov, O., Fleisher, A., Fleurbaey, H., Foltynowicz, A., Furtenbacher, T., Harrison, J., Hartmann, J., Horneman, V., Huang, X., Karman, T., Karns, J., Kassi, S., Kleiner, I., Kofman, V., Kwabia–Tchana, F., Lavrentieva, N., Lee, T., Long, D., Lukashevskaya, A., Lyulin, O., Makhnev, V., Matt, W., Massie, S., Melosso, M., Mikhailenko, S., Mondelain, D., Müller, H., Naumenko, O., Perrin, A., Polyansky, O., Raddaoui, E., Raston, P., Reed, Z., Rey, M., Richard, C., Tóbiás, R., Sadiek, I., Schwenke, D., Starikova, E., Sung, K., Tamassia, F., Tashkun, S., Vander Auwera, J., Vasilenko, I., Vigasin, A., Villanueva, G., Vispoel, B., Wagner, G., Yachmenev, A. et Yurchenko, S. the hitran2020 molecular spectroscopic database. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*. (Référence citée en page 115)

[Gordon *et al.*, 2022] Gordon, I. E., Rothman, L. S., Hargreaves, e. R., Hashemi, R., Karlovets, E. V., Skinner, F., Conway, E. K., Hill, C., Kochanov, R. V., Tan, Y. *et al.* (2022). The HITRAN2020 molecular spectroscopic database. *Journal of quantitative spectroscopy and radiative transfer*, *277*, 107949. (Référence citée en page 95)

[Guerrero-Pérez et Patience, 2020] Guerrero-Pérez, M. O. et Patience, G. S. (2020). Experimental methods in chemical engineering : Fourier transform infrared spectroscopy—FTIR. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, *98*(1), 25–33. (Référence citée en pages 53 et 54)

[Guivarch, 2020] Guivarch, C. (2020). Quelles transformations pour l'atténuation du changement climatique ? des trajectoires d'émissions mondiales à la trajectoire française. *Comptes Rendus. Géoscience*, *352*(4-5), 309–317. (Référence citée en page 11)

[Hannah, 2015] Hannah, L. (2015). Chapter 19 - carbon sinks and sources. In L. Hannah (dir.), *Climate Change Biology (Second Edition)* 403–422. Boston : Academic Press, (second edition éd.) (Référence citée en page 21)

[Hannigan *et al.*, 2024] Hannigan, J., Palm, M., Jones, N., Ortega, I., Langerock, B., Mahieu, E., Zhou, M. et Smale, D. (2024). SFIT4 Line-by-line nonlinear spectral fitting software : version 1.0.18. Récupéré le 2025-11-28 de `https://data.aeronomie.be/dataset/sfit4-v1-0-18-line-by-line-nonlinear-spectral-fitting-software` (Référence citée en page 97)

[Hansen et Travis, 1974] Hansen, J. E. et Travis, L. D. (1974). Light scattering in planetary atmospheres. *Space science reviews*, *16*(4), 527–610. (Référence citée en page 110)

[Hase *et al.*, 1999] Hase, F., Blumenstock, T. et Paton-Walsh, C. (1999). Analysis of the instrumental line shape of high-resolution Fourier transform IR spectrometers with gas cell measurements and new retrieval software. *Applied Optics*, *38*(15), 3417–3422. (Référence citée en pages vii, 71 et 72)

[Hase *et al.*, 2016] Hase, F., Frey, M., Kiel, M., Blumenstock, T., Harig, R., Keens, A. et Orphal, J. (2016). Addition of a channel for XCO observations to a portable FTIR spectrometer for greenhouse gas measurements. *Atmospheric Measurement Techniques*, *9*(5), 2303–2313. (Référence citée en pages vii, 69 et 70)

[Herbin, 2014] Herbin, H. (2014). *Analyses atmosphériques par mesures infrarouges à haute résolution spectrale*. (Habilitation à diriger les recherches). Université Lille 1. (Référence citée en page 118)

[Herkommer *et al.*, 2024] Herkommer, B., Alberti, C., Castracane, P., Chen, J., Dehn, A., Dietrich, F., Deutscher, N. M., Frey, M. M., Groß, J., Gillespie, L. *et al.* (2024). Using a portable FTIR spectrometer to evaluate the consistency of TCCON measurements on a global scale : The COCCON Travel Standard. *EGUsphere*, *2024*, 1–46. (Référence citée en page 101)

[Horvath, 1993] Horvath, H. (1993). Atmospheric light absorption—A review. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, *27*(3), 293–317. (Référence citée en page 39)

[Iacono *et al.*, 2008] Iacono, M. J., Delamere, J. S., Mlawer, E. J., Shephard, M. W.,

Clough, S. A. et Collins, W. D. (2008). Radiative forcing by long-lived greenhouse gases : Calculations with the AER radiative transfer models. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *113*(D13). (Référence citée en page 95)

[Imasu *et al.*, 2023] Imasu, R., Matsunaga, T., Nakajima, M., Yoshida, Y., Shiomi, K., Morino, I., Saitoh, N., Niwa, Y., Someya, Y., Oishi, Y. *et al.* (2023). Greenhouse gases Observing SATellite 2 (GOSAT-2) : mission overview. *Progress in Earth and Planetary Science*, *10*(1), 33. (Référence citée en page 30)

[IPCC, 2013a] IPCC (2013a). Climate Change 2013 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Voir chapitre 6, URL : `https://www.ipcc.ch/site/assets/uploads/2018/02/WG1AR5_Chapter06_FINAL.pdf`. (Référence citée en page 21)

[IPCC, 2013b] IPCC (dir.) (2013b). *Climate Change 2013 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, publisher = Cambridge University Press*. Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA. pp. 1535, doi :10.1017/CBO9781107415324. Récupéré de `https://www.ipcc.ch/report/ar5/wg1/` (Référence citée en page 23)

[IPCC, 2023a] IPCC (2023a). Climate Change 2023 : Synthesis Report. Contribution of Working Groups I, II and III to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Récupéré de `https://www.ipcc.ch/report/ar6/syr/downloads/report/IPCC_AR6_SYR_FullVolume.pdf` (Référence citée en pages v, 18 et 19)

[IPCC, 2023b] IPCC (dir.) (2023b). *Climate Change 2023 : Synthesis Report. Contribution of Working Groups I, II and III to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Geneva, Switzerland : Cambridge University Press / IPCC. Longer Report (downloadable PDF). Récupéré de `https://www.ipcc.ch/report/ar6/syr/downloads/report/IPCC_AR6_SYR_LongerReport.pdf` (Référence citée en pages 11 et 24)

[Jain, 1993] Jain, P. C. (1993). Greenhouse effect and climate change : scientific basis and overview. *Renewable energy*, *3*(4-5), 403–420. (Référence citée en page 20)

[Kangah, 2017] Kangah, Y. (2017). *Mesure du protoxyde d'azote (N_2O) depuis l'espace*. (Thèse de doctorat). Université Paul Sabatier-Toulouse III. (Référence citée en page 155)

[Keilhauer *et al.*, 2004] Keilhauer, B., Blümer, J., Engel, R., Klages, H. et Risse, M. (2004). Impact of varying atmospheric profiles on extensive air shower observation : atmospheric density and primary mass reconstruction. *Astroparticle Physics*, *22*(3-4), 249–261. (Référence citée en page 39)

[Keita, 2023] Keita, S. (2023). *Comportement des gaz dans des ouvrages souterrains fermés*. (Thèse de doctorat). Sorbonne Université. (Référence citée en page 105)

[Khidr et Mahmood, 2025] Khidr, A. A. Q. et Mahmood, E. M. N. (2025). Enhancing fuzzy transform using PCHIP interpolation : A novel approach to function approximation and solving differential equations. *Statistics, Optimization & Information Computing*. (Référence citée en page 111)

[Kilgour et Van Orden, 2015] Kilgour, D. P. et Van Orden, S. L. (2015). Absorption mode fourier transform mass spectrometry with no baseline correction using a novel asymmetric apodization function. *Rapid Communications in Mass Spectrometry*, *29*(11), 1009–1018. (Référence citée en page 63)

[La Notte *et al.*, 2018] La Notte, A., Tonin, S. et Lucaroni, G. (2018). Assessing direct and indirect emissions of greenhouse gases in road transportation, taking into account the role of uncertainty in the emissions inventory. *Environmental Impact Assessment Review*, *69*, 82–93. (Référence citée en pages 11 et 24)

[Laughner *et al.*, 2023a] Laughner, J. L., Roche, S., Kiel, M., Toon, G. C., Wunch, D., Baier, B. C., Biraud, S., Chen, H., Kivi, R., Laemmel, T. *et al.* (2023a). A new algorithm to generate a priori trace gas profiles for the ggg2020 retrieval algorithm. *Atmospheric Measurement Techniques*, *16*(5), 1121–1146. (Référence citée en page 114)

[Laughner *et al.*, 2023b] Laughner, J. L., Toon, G. C., Mendonca, J., Petri, C., Roche, S., Wunch, D., Blavier, J.-F., Griffith, D. W., Heikkinen, P., Keeling, R. F. *et al.* (2023b). The Total Carbon Column Observing Network's GGG2020 Data Version. *Earth System Science Data Discussions*, *2023*, 1–86. (Référence citée en page 74)

[Lee *et al.*, 2021] Lee, D. D., Bendana, F. A., Nair, A. P., Danczyk, S. A., Hargus Jr, W. A. et Spearrin, R. M. (2021). Exploiting line-mixing effects for laser absorption spectroscopy at extreme combustion pressures. *Proceedings of the Combustion Institute*. (Référence citée en page 53)

[Li *et al.*, 2014] Li, Y., Deng, J., Mu, C., Xing, Z. et Du, K. (2014). Vertical distribution of co2 in the atmospheric boundary layer : Characteristics and impact of meteorological variables. *Atmospheric Environment*, *91*, 110–117. (Référence citée en page 105)

[Li *et al.*, 2025] Li, Y., Wu, K., Yung, Y. L., Wang, X. et Han, J. (2025). Analysis of the Current Situation of CO_2 Satellite Observation. *Remote Sensing*, *17*(21). `http://dx.doi.org/10.3390/rs17213635`. Récupéré de `https://www.mdpi.com/2072-4292/17/21/3635` (Référence citée en page 32)

[Lodia, 2024] Lodia, G. (2024). *Data analysis and acquisition using spectrometer EM27/SUN to validate satellite missions for greenhouse gas monitoring.* (Thèse de doctorat). Politecnico di Torino. (Référence citée en page 148)

[Long *et al.*, 2021] Long, Y., Jiang, Y., Chen, P., Yoshida, Y., Sharifi, A., Gasparatos, A., Wu, Y., Kanemoto, K., Shigetomi, Y. et Guan, D. (2021). Monthly direct and indirect greenhouse gases emissions from household consumption in the major japanese cities. *Scientific Data*, *8*(1), 301. (Référence citée en page 24)

[Lüthi *et al.*, 2008] Lüthi, D., Le Floch, M., Bereiter, B., Blunier, T., Barnola, J.-M., Siegenthaler, U., Raynaud, D., Jouzel, J., Fischer, H., Kawamura, K. *et al.* (2008). High-resolution carbon dioxide concentration record 650,000-800,000 years before present. *nature*, *453*(7193), 379–382. (Référence citée en page 21)

[Membrive, 2016] Membrive, O. (2016). *Caractérisation de la distribution verticale des gaz à effet de serre CO_2 et CH_4 par mesures sous ballons : Application à la validation d'observations satellites.* (Thèse de doctorat). Université Pierre et Marie Curie - Paris 6. Récupéré de `https://theses.fr/2016PA066509` (Référence citée en pages 12 et 25)

[Messerschmidt *et al.*, 2011] Messerschmidt, J., Geibel, M. C., Blumenstock, T., Chen, H., Deutscher, N. M., Engel, A., Feist, D. G., Gerbig, C., Gisi, M., Hase, F. *et al.* (2011). Calibration of TCCON column-averaged CO_2 : the first aircraft campaign over European TCCON sites. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *11*(21), 10765–10777. (Référence citée en page 33)

[Michard, 1953] Michard, R. (1953). L'atmosphère terrestre, source de difficultés pour l'astronome. *L'Astronomie, Vol. 67, p. 465*, *67*, 465. (Référence citée en page 86)

[Moore et Jacobson, 2015] Moore, J. et Jacobson, A. D. (2015). Seasonally varying contributions to urban CO_2 in the chicago, illinois, usa region : Insights from a high-resolution CO_2 concentration and δ13C record. *Elementa*, *3*, 000052. (Référence citée en page 25)

[Nayak *et al.*, 2020] Nayak, H., Yadav, S. P. et Yadav, D. K. (2020). Contribution of Natural and Anthropogenic Activities in Greenhouse Gases Emission. *Energy*, *4*(2). (Référence citée en page 20)

[NOAA Global Monitoring Laboratory, 2026] NOAA Global Monitoring Laboratory (2026). Trends in N_2O. Récupéré le 2026-01-10 de `https://gml.noaa.gov/ccgg/trends_n2o/` (Référence citée en pages x et 156)

[Norton et Beer, 1976] Norton, R. H. et Beer, R. (1976). New apodizing functions for fourier spectrometry. *Journal of the Optical Society of America*, *66*(3), 259–264. (Référence citée en page 63)

[Norton et Beer, 1977] Norton, R. H. et Beer, R. (1977). New apodizing functions for fourier spectrometry : errata. *Journal of the Optical Society of America, vol. 67, issue 3, p. 419*, *67*, 419. (Référence citée en page 63)

[Nunes, 2023] Nunes, L. J. (2023). The rising threat of atmospheric CO_2 : A review on the causes, impacts, and mitigation strategies. *Environments*, *10*(4), 66. (Référence citée en page 21)

[Patiño Rosas et Cézard, 2024] Patiño Rosas, W. et Cézard, N. (2024). Greenhouse gas monitoring using an IPDA lidar based on a dual-comb spectrometer. *Optics Express*, *32*(8), 13614–13627. (Référence citée en page 27)

[Pierrehumbert, 2011] Pierrehumbert, R. T. (2011). Infrared radiation and planetary temperature. *Physics Today*, *64*(1), 33–38. (Référence citée en page 90)

[Pollard *et al.*, 2022] Pollard, D. F., Hase, F., Sha, M. K., Dubravica, D., Alberti, C. et Smale, D. (2022). Retrievals of XCO_2, XCH_4 and XCO from portable, near-infrared Fourier transform spectrometer solar observations in Antarctica. *Earth System Science Data Discussions*, *2022*, 1–16. (Référence citée en pages 100, 101 et 102)

[Prölss, 2011] Prölss, G. W. (2011). Density perturbations in the upper atmosphere caused by the dissipation of solar wind energy. *Surveys in Geophysics*, *32*(2), 101–195. (Référence citée en page 39)

[Randall *et al.*, 2007] Randall, D. A., Wood, R. A., Bony, S., Colman, R., Fichefet, T., Fyfe, J., Kattsov, V., Pitman, A., Shukla, J., Srinivasan, J. *et al.* (2007). Climate models and their evaluation. In *Climate change 2007 : The physical science basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the IPCC (FAR)* 589–662. Cambridge University Press. (Référence citée en page 86)

[Reshi *et al.*, 2024] Reshi, A. R., Pichuka, S. et Tripathi, A. (2024). Applications of Sentinel-5P TROPOMI Satellite Sensor : A Review. *IEEE Sensors Journal*, *24*(13), 20312–20321. `http://dx.doi.org/10.1109/JSEN.2024.3355714` (Référence citée en page 31)

[Revercomb *et al.*, 1988] Revercomb, H. E., Buijs, H., Howell, H. B., LaPorte, D. D., Smith, W. L. et Sromovsky, L. (1988). Radiometric calibration of IR Fourier transform

spectrometers : solution to a problem with the High-Resolution Interferometer Sounder. *Applied Optics*, *27*(15), 3210–3218. (Référence citée en page 108)

[Richard *et al.*, 2012] Richard, C., Gordon, I. E., Rothman, L. S., Abel, M., Frommhold, L., Gustafsson, M., Hartmann, J.-M., Hermans, C., Lafferty, W. J., Orton, G. S. *et al.* (2012). New section of the HITRAN database : Collision-induced absorption (CIA). *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, *113*(11), 1276–1285. (Référence citée en page 51)

[Rodgers, 2000] Rodgers, C. D. (2000). *Inverse methods for atmospheric sounding : theory and practice*, volume 2. World scientific. (Référence citée en pages 93, 99, 124, 131 et 164)

[Rodrigues *et al.*, 2025] Rodrigues, A., Albuquerque Sardinha, R. et Pita, G. (2025). Fundamentals of global carbon budgets and climate change. In *Fundamental Principles of Environmental Physics* 303–351. Springer. (Référence citée en page 22)

[Rothman *et al.*, 2013] Rothman, L. S., Gordon, I. E., Babikov, Y., Barbe, A., Benner, D. C., Bernath, P. F., Birk, M., Bizzocchi, L., Boudon, V., Brown, L. R. *et al.* (2013). The HITRAN2012 molecular spectroscopic database. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, *130*, 4–50. (Référence citée en page 48)

[Ruddiman, 2003] Ruddiman, W. F. (2003). The anthropogenic greenhouse era began thousands of years ago. *Climatic change*, *61*(3), 261–293. (Référence citée en page 21)

[Schimel *et al.*, 1996] Schimel, D. c., Alves, D., Enting, I., Heimann, M., Joos, F., Raynaud, D., Wigley, T., Prather, M., Derwent, R., Ehhalt, D. *et al.* (1996). Radiative forcing of climate change. *Climate change 1995 : the science of climate change*, 65–131. (Référence citée en page 20)

[Scott et Chedin, 1981] Scott, N. et Chedin, A. (1981). A fast line-by-line method for atmospheric absorption computations : The Automatized Atmospheric Absorption Atlas. *Journal of Applied Meteorology (1962-1982)*, 802–812. (Référence citée en page 96)

[Seinfeld et Pandis, 2016] Seinfeld, J. H. et Pandis, S. N. (2016). *Atmospheric chemistry and physics : from air pollution to climate change*. John Wiley & Sons. (Référence citée en page 82)

[Shephard *et al.*, 2009] Shephard, M., Clough, S., Payne, V., Smith, W., Kireev, S. et Cady-Pereira, K. (2009). Performance of the line-by-line radiative transfer model (LBLRTM) for temperature and species retrievals : IASI case studies from JAIVEx. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *9*(19), 7397–7417. (Référence citée en page 95)

[Soeder, 2025] Soeder, D. J. (2025). Greenhouse gas and climate change. In *Energy futures : The story of fossil fuel, greenhouse gas, and climate change* 97–141. Springer. (Référence citée en page 21)

[Spurr, 2008] Spurr, R. (2008). LIDORT and VLIDORT : Linearized pseudo-spherical scalar and vector discrete ordinate radiative transfer models for use in remote sensing retrieval problems. In *Light scattering reviews 3 : Light scattering and reflection* 229–275. Springer. (Référence citée en page 119)

[St. Louis *et al.*, 1992] St. Louis, R. H., Siems, W. F. et Hill, H. H. (1992). Apodization functions in fourier transform ion mobility spectrometry. *Analytical Chemistry*, *64*(2), 171–177. (Référence citée en page 63)

[Swayze *et al.*, 2003] Swayze, G. A., Clark, R. N., Goetz, A. F., Chrien, T. G. et Gorelick, N. S. (2003). Effects of spectrometer band pass, sampling, and signal-to-noise ratio on spectral identification using the tetracorder algorithm. *Journal of Geophysical Research : Planets*, *108*(E9). (Référence citée en page 116)

[Tang *et al.*, 2021] Tang, Y., Luan, X., Sun, J., Zhao, J., Yin, Y., Wang, Y. et Sun, S. (2021). Impact assessment of climate change and human activities on GHG emissions and agricultural water use. *Agricultural and Forest Meteorology*, *296*, 108218. (Référence citée en page 20)

[Taylor *et al.*, 2020] Taylor, T. E., Eldering, A., Merrelli, A., Kiel, M., Somkuti, P., Cheng,

C., Rosenberg, R., Fisher, B., Crisp, D., Basilio, R., Bennett, M., Cervantes, D., Chang, A., Dang, L., Frankenberg, C., Haemmerle, V. R., Keller, G. R., Kurosu, T., Laughner, J. L., Lee, R., Marchetti, Y., Nelson, R. R., O'Dell, C. W., Osterman, G., Pavlick, R., Roehl, C., Schneider, R., Spiers, G., To, C., Wells, C., Wennberg, P. O., Yelamanchili, A. et Yu, S. (2020). OCO-3 early mission operations and initial (vEarly) XCO_2 and SIF retrievals. *Remote Sensing of Environment*, *251*, 112032. `http://dx.doi.org/https://doi.org/10.1016/j.rse.2020.112032`. Récupéré de `https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0034425720304028` (Référence citée en page 31)

[Tellier *et al.*, 2021] Tellier, Y., Crevoisier, C., Armante, R., Dufresne, J.-L. et Meilhac, N. (2021). Computation of longwave radiative flux and vertical heating rate with 4A-Flux v1. 0 as integral part of the radiative transfer code 4A/OP v1. 5. *Geoscientific Model Development Discussions*, *2021*, 1–29. (Référence citée en pages 96 et 97)

[Toon *et al.*, 2016] Toon, G. C., Blavier, J.-F., Sung, K., Rothman, L. S. et Gordon, I. E. (2016). HITRAN spectroscopy evaluation using solar occultation FTIR spectra. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, *182*, 324–336. (Référence citée en page 97)

[Tourasse, 2016] Tourasse, G. (2016). *Mesure et Analyse Statistique Tout Temps du Spectre du Rayonnement Solaire*. (Thèse de doctorat). Université de Lyon. (Référence citée en pages vii et 82)

[Tu *et al.*, 2024] Tu, Q., Hase, F., Qin, K., Alberti, C., Lu, F., Bian, Z., Cao, L., Fang, J., Gu, J., Guan, L. *et al.* (2024). COCCON Measurements of XCO_2, XCH_4 and XCO over Coal Mine Aggregation Areas in Shanxi, China, and Comparison to TROPOMI and CAMS Datasets. *Remote Sensing*, *16*(21). (Référence citée en page 100)

[Tu *et al.*, 2021] Tu, Q., Hase, F., Schneider, M., García, O., Blumenstock, T., Borsdorff, T., Frey, M., Khosrawi, F., Lorente, A., Alberti, C. *et al.* (2021). Quantification of CH_4 emissions from waste disposal sites near the city of Madrid using ground-and space-based observations of COCCON, TROPOMI and IASI. *Atmospheric Chemistry*

and Physics Discussions, *2021*, 1–36. (Référence citée en pages 12, 75 et 123)

[Tu *et al.*, 2025] Tu, Q., Hase, F., Zhang, Y., Fang, J., Jiang, Y., Li, X., Schneider, M., Yang, Z., Zhang, X. et Li, Z. (2025). Emission characteristics of greenhouse gases and air pollutants in a Qinghai-Tibetan Plateau city using a portable Fourier transform spectrometer and TROPOMI observations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *25*(23), 17779–17796. (Référence citée en page 149)

[Valant *et al.*, 2005] Valant, C., Lanoisellé, M., Schmidt, M., Sarda-Esteve, R. et Ramonet, M. (2005). *Mesure par chromatographie en phase gazeuse du monoxyde de carbone (CO) présent à l'état de trace dans l'atmosphère.* (Thèse de doctorat). IPSL. (Référence citée en page 149)

[Vincent-Geisse, 1956] Vincent-Geisse, J. (1956). Intensité et largeur de raies ou bandes d'absorption dans l'infrarouge. *Journal de Physique et le Radium.* (Référence citée en page 46)

[Vogel *et al.*, 2019] Vogel, F. R., Frey, M., Staufer, J., Hase, F., Broquet, G., Xueref-Remy, I., Chevallier, F., Ciais, P., Sha, M. K., Chelin, P. *et al.* (2019). XCO_2 in an emission hot-spot region : the COCCON Paris campaign 2015. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *19*(5), 3271–3285. (Référence citée en page 75)

[Wang *et al.*, 2023] Wang, J., Zhao, L., Xiao, Z., Zhang, P., Ren, Z., Zong, W., Qi, J., Huang, C., Xu, Y. et Lu, Y. (2023). Energy transmission processes in the effectuation chain of solar forcing to the terrestrial atmosphere—a review. *Frontiers in Earth Science*, *11*, 1164636. (Référence citée en page 39)

[Wintersteiner *et al.*, 1992] Wintersteiner, P. P., Picard, R. H., Sharma, R. D., Winick, J. R. et Joseph, R. A. (1992). Line-by-line radiative excitation model for the non-equilibrium atmosphere : Application to CO_2 15-μm emission. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *97*(D16), 18083–18117. (Référence citée en page 95)

[World Meteorological Organization (WMO), 2025] World Meteorological Or-

ganization (WMO) (2025). State of the Global Climate 2024. ISBN : 978-92-63-11368-5. Récupéré de `https://library.wmo.int/records/item/69455-state-of-the-global-climate-2024` (Référence citée en pages 11 et 18)

[Wunch *et al.*, 2011] Wunch, D., Toon, G. C., Blavier, J.-F. L., Washenfelder, R. A., Notholt, J., Connor, B. J., Griffith, D. W., Sherlock, V. et Wennberg, P. O. (2011). The total carbon column observing network. *Philosophical Transactions of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, *369*(1943), 2087–2112. (Référence citée en pages 12, 65, 75, 97 et 143)

[Xi-Liu et Qing-Xian, 2018] Xi-Liu, Y. et Qing-Xian, G. (2018). Contributions of natural systems and human activity to greenhouse gas emissions. *Advances in Climate Change Research*, *9*(4), 243–252. (Référence citée en page 20)

[Xu *et al.*, 2024] Xu, H., Chen, H., He, W. et Chen, L. (2024). Contributions of anthropogenic greenhouse gases and aerosol emissions to changes in summer precipitation over southern china. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *129*(12), e2023JD040331. (Référence citée en page 24)

[Yakovlev *et al.*, 2022] Yakovlev, S., Romanovskii, O., Sadovnikov, S., Tuzhilkin, D., Nevzorov, A., Kharchenko, O. et Kravtsova, N. (2022). Mobile mid-infrared differential absorption lidar for methane monitoring in the atmosphere : Calibration and first in situ tests. *Results in Optics*, *8*, 100233. `http://dx.doi.org/https://doi.org/10.1016/j.rio.2022.100233`. Récupéré de `https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S2666950122000232` (Référence citée en page 28)

[Zhang *et al.*, 2025] Zhang, X., Yang, H., Bu, L., Fan, Z., Xiao, W., Chen, B., Zhang, L., Liu, S., Wang, Z., Liu, J., Chen, W. et Lee, X. (2025). Estimation of diurnal emissions of CO_2 from thermal power plants using spaceborne integrated path differential absorption (ipda) lidar. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *25*(13), 6725–6740. `http://dx.doi.org/10.5194/acp-25-6725-2025`. Récupéré de `https://acp.copernicus.org/articles/25/6725/2025/` (Référence citée en page 27)

[Zhou *et al.*, 2016] Zhou, M., Dils, B., Wang, P., Detmers, R., Yoshida, Y., O'Dell, C. W., Feist, D. G., Velazco, V. A., Schneider, M. et De Mazière, M. (2016). Validation of TANSO-FTS/GOSAT XCO_2 and XCH_4 glint mode retrievals using TCCON data from near-ocean sites. *Atmospheric Measurement Techniques*, *9*(3), 1415–1430. `http://dx.doi.org/10.5194/amt-9-1415-2016`. Récupéré de `https://amt.copernicus.org/articles/9/1415/2016/` (Référence citée en page 29)

Déploiement et exploitation du spectromètre portable EM27/SUN pour la surveillance des gaz à effet de serre : analyse du contenu en information et optimisation des restitutions atmosphériques

---

Le suivi des gaz à effet de serre (GES) est essentiel pour comprendre et surveiller le changement climatique. Les observations satellitaires permettent de couvrir les concentrations de GES à l'échelle mondiale, cependant, ces mesures doivent être calibrées et validées par des mesures au sol. Le réseau *Total Carbon Column Observing Network* (TCCON) fournit des observations de référence grâce à des spectromètres haute résolution. Toutefois, la taille et le coût d'installation de ces instruments limitent leur déploiement. Pour élargir la couverture spatiale des observations, des spectromètres FTIR portables à plus faible résolution, les EM27/SUN, ont été développés dans le cadre du réseau COCCON (*Collaborative Carbon Column Observing Network*). Ces instruments permettent de mesurer les fractions molaires sèches moyennes par colonne de plusieurs gaz atmosphériques, tels que le dioxyde de carbone (CO_2), le méthane (CH_4), le monoxyde de carbone (CO), le protoxyde d'azote (N_2O) et l'eau (H_2O). Ce travail a pour objectif principal d'étudier le contenu en informations des mesures de l'instrument EM27/SUN, afin d'optimiser l'exploitation de ces deux voies spectrales (la voie 1 de 5 500 à 12 000 cm^{-1} et la voie 2 de 4 000 à 5 200 cm^{-1}) et de mieux caractériser la capacité de restitution des gaz atmosphériques. À cette fin, l'algorithme ARAHMIS a été utilisé pour la première fois dans le cadre de l'analyse des données EM27/SUN. Il a permis d'identifier les bandes spectrales les plus informatives, d'évaluer les degrés de liberté (DOF) et d'analyser les principales sources d'erreur.

EM27/SUN, COCCON, ARAHMIS, PROFFAST, GHG, Colonne totale intégrée, Contenu en informations, Sélection des canaux, DOFS

Deployment and operation of the EM27/SUN portable spectrometer for greenhouse gas monitoring : analysis of information content and optimization of atmospheric estimates

---

Monitoring greenhouse gases (GHGs) is crucial to understanding and monitoring climate change. Satellite observations provide global coverage of GHG concentrations, but these measurements must be calibrated and validated by ground-based measurements. The Total Carbon Column Observing Network (TCCON) provides reference observations using high-resolution spectrometers. However, the size and cost of installing these instruments limit their deployment. To expand the spatial coverage of observations, low-resolution portable FTIR spectrometers, the EM27/SUN, have been developed as part of the COCCON (Collaborative Carbon Column Observing Network). These instruments can measure the average dry molar fractions per column of several atmospheric gases, such as carbon dioxide (CO_2), methane (CH_4), carbon monoxide (CO), nitrous oxide (N_2O), and water (H_2O). The main objective of this work is to study the information content of the EM27/SUN instrument measurements in order to optimize the use of these two spectral channels (channel 1 from 5 500 to 12 000 cm^{-1} and channel 2 from 4 000 to 5 200 cm^{-1}) and better characterize the atmospheric gas retrieval capability. To this end, the ARAHMIS algorithm was used for the first time in the analysis of EM27/SUN data. It enabled the identification of the most informative spectral bands, the evaluation of degrees of freedom (DOF), and the analysis of the main sources of error.

EM27/SUN, COCCON, ARAHMIS, PROFFAST, GHG, Column Integrated, Information content, Channel selection, DOFS