TRATTORIA-2015 Lille, 25-27 Mars 2015

Spectroscopie atmosphérique et absorption gazeuse

Cyril Crevoisier

Laboratoire de Météorologie Dynamique

Remerciements :

LMD : R. Armante, V. Capelle, A. Chédin, A. Feofilov, N. Jacquinet, N. A. Scott *LATMOS* : H. Brogniez *LiPhy* : A. Campargue *LISA* : J.-M. Hartmann, A. Perrin, H. Tran







Applications du transfert radiatif pour l'observation de la Terre



Evolution sur 2008-2015

•Fort développement des recherches dans le SWIR (contexte des missions gaz à effet de serre : GOSAT, MicroCarb, CarbonSat, Merlin)

- Des couplages entre différentes bandes spectrales :
 - IR-MO : couplage classique (météo, thermodynamique, nuages)
 - IR-UV/Vis : étude de l'ozone et des aérosols (ex: IASI-GOME2)
 - IR-SWIR : développement en cours (gaz à effet de serre, aérosols).

•Des instruments de plus en plus performants (IASI, GOME-2, SAPHIR, TCCON, etc) :

- Détection/estimation de nouvelles espèces (ex : plus de 25 « vues » par IASI).
- Retour sur la spectroscopie et le TR par suivi des niveaux 1 et évaluation des niveaux 2.

•**Des approches opérationnelles...** aussi pour la composition atmosphérique (contexte GMES/Copernicus).

→ Ces recherches ont fait évolué les besoins en spectroscopie et en modélisation du transfert radiatif sur les 7 dernières années.





$\frac{dL_{\nu}}{dl}\left(\vec{r},\vec{R}\right) = -K_{\nu}\left(\vec{r}\right)\left[L_{\nu}\left(\vec{r},\vec{R}\right) - J_{\nu}\left(\vec{r},\vec{R}\right)\right]$ $K_{\lambda}: \text{ coefficient d'extinction}$

= K_a : coefficient d'absorption si l'on néglige les phénomènes de diffusion.

L'absorption du rayonnement par les molécules atmosphériques est intimement liée à leurs caractéristiques énergétiques.

→transfert d'énergie entre les niveaux énergétiques discrets associés à des états de rotation, de vibration ou de configuration électronique.





Fonction source

L'équation de transfert radiatif

Pour une transition E1 \rightarrow E2 donnée :









L'équation de transfert radiatif







Transmittance et équation de transfert radiatif intégrée



• Transmittance spectrale :

$$\mathcal{T}_{V}\left(s_{2}, s_{1}\right) = \exp\left[-\int_{s_{1}}^{s_{2}} K_{v}(s)\rho_{a}(s)ds\right]$$

avec $K_{v}(s) = \sum_{j=1}^{N} S_{j}(v, s)f_{j}(v, s)$

• **Résolution de l'ETR avec les hypothèses** : milieu non diffusif, atmosphère plan parallèle homogène et Equilibre Thermodynamique Local $(J_v = B_v(T))$

$$L_{\tilde{v}}^{sat}(s) = \varepsilon_{\tilde{v}}^{surf} B_{\tilde{v}}(T_{surf}) T_{\tilde{v}}(s,0) + \int_{0}^{s} B_{\tilde{v}}(T(s')) \frac{\partial T_{\tilde{v}}(s,s')}{\partial s'} ds' + (1-\varepsilon_{\tilde{v}}) T_{\tilde{v}}(s,0) \left[\int_{\infty}^{0} B_{\tilde{v}}(T(s')) \frac{\partial T_{\tilde{v}}(\infty,s')}{\partial s'} ds' \right] + J_{\tilde{v}}(\odot) t_{\tilde{v}}(\infty,0) (1-\varepsilon_{\tilde{v}}) t_{\tilde{v}}(s,0)$$
surface

Problématiques physiques à considérer



Questions	TRATTORIA 2008	TRATTORIA 2015
1. Paramètres spectroscopiques des raies d'absorption	 Image: A second s	
Gestion des bases de données.	 Image: A set of the set of the	
Nouveaux paramètres à considérer ?	 Image: A second s	
Quelle précision ?	 Image: A second s	
2. Modélisation des raies d'absorption	 ✓ 	
Limitation du profil de Voigt	 Image: A second s	
Profils non-Voigt	 Image: A second s	
Interférences entre raies (line-mixing)	 Image: A second s	
Effet Zeeman	 Image: A second s	
3. Effet bandes larges	v	
Continuum O ₂ , N ₂	 Image: A second s	
Continuum H ₂ O	 Image: A second s	
Sections efficaces d'absorption	 ✓ 	
4. Rupture de l'Equilibre Thermodynamique Local	v	

Problématiques physiques à considérer



Questions	TRATTORIA 2008	TRATTORIA 2015
1. Paramètres spectroscopiques des raies d'absorption	✓	 ✓
Gestion des bases de données.	 Image: A second s	 Image: A set of the set of the
Nouveaux paramètres à considérer ?	 Image: A set of the set of the	 ✓
Quelle précision ?	 Image: A set of the set of the	 Image: A set of the set of the
2. Modélisation des raies d'absorption	 Image: A second s	 ✓
Limitation du profil de Voigt	 Image: A second s	 Image: A set of the set of the
Profils non-Voigt	 Image: A second s	v
Interférences entre raies (line-mixing)	 Image: A second s	v
Effet Zeeman	 Image: A second s	v
3. Effet bandes larges	 Image: A second s	v
Continuum O ₂ , N ₂	 Image: A second s	 Image: A second s
Continuum H ₂ O	V	 Image: A set of the set of the
Sections efficaces d'absorption	✓	 Image: A second s
4. Rupture de l'Equilibre Thermodynamique Local	 Image: A set of the set of the	V









Utilisation de la chaîne de cal/val du LMD



MD









LMD

Analyse statistique des résidus « calc - obs »



Les statistiques sur plusieurs milliers de colocations radiosondages/ satellites permettent de s'affranchir des bruits (instruments, géo-localisation) et de faire ressortir des signatures spectrales très fines.







1. Les paramètres spectroscopiques des raies d'absorption

- **1.1. Les bases de données**
- 1.2. Les mises à jour
- **1.3. Les isotopologues**
- **1.4. Précision des paramètres**



Les deux principales bases de données spectroscopiques utilisées en Observation de la Terre





HITRAN 2012	GEISA 2014
https://www.cfa.harvard.edu/hitran/	http://www.pole-ether.fr/geisa/
Paramètres spectroscopiques	Paramètres spectroscopiques
Sections efficaces d'absorption	Sections efficaces d'absorption
-	Caractéristiques des aérosols
HITEMP (haute température)	-



Contenu des bases de données spectroscopiques

6029.1078701.4250D-230.060062.90000.853116666029.0828001.1090D-230.065562.87980.853116L08-0.0110606029.1078701.4250D-230.065762.88110.733116H12-0.012100



Contenu des bases de données spectroscopiques



Mises à jour récurrentes des bases de données

→ Quel choix pour les paramètres ?

Impact de mises à jour et comparaison des bases

Absorption du CH_4 et de H_2O dans le SWIR (1.65 µm)



Comparaison des résidus obtenus avec GEISA2011, GEISA2014 et HITRAN2012.

 \rightarrow Identification des paramètres responsables des résidus élevés.

Impact de mises à jour et comparaison des bases

Absorption du CH_4 et de H_2O dans le SWIR (1.65 µm)



Impact de mises à jour et comparaison des bases

Absorption du CH_4 et de H_2O dans le SWIR (1.65 µm)



Impact de mises à jour et comparaison des bases

Absorption du CH_4 et de H_2O dans le SWIR (1.65 µm)

.MD



Impact de mises à jour et comparaison des bases





.MD



Une spectroscopie « bien connue » : exemple des micro-ondes



Figure 3.2-1: Repartition of water vapour channels

Mise en évidence d'un biais (calc-obs) présent sur tous les sondeurs MO (AMSU-B, MHS, ATMS).

Origine : paramètres spectro (largeur à mi-hauteur, intensité, continuum)?

Tests en cours au JPL, UK MetOffice, LATMOS et LMD

•Spectroscopie MO basée sur Liebe-93

•SAPHIR: 6 canaux sur la raie H₂O à 183,31 GHz







Les isotopologues : H_2O vs. HDO à 4 μ m



- \rightarrow H₂O et HDO sont désormais différenciés dans GEISA.
- → Pas encore dans 4A/OP (en cours)



Les isotopologues : H_2O vs. HDO à 4 μm



Scott et al., ITSC, 2012







Pics: signatures de raies H_2O .

Des variations non reliées à H₂O apparaissent vers 4810 et 4900 cm⁻¹

 \rightarrow Signature des isotopologues de CO₂ ?



CON





Précision des paramètres spectroscopiques

Cas d'une raie isolée de vapeur d'eau

→ Etude de sensibilité aux paramètres spectroscopiques (GEISA) par perturbation de 5 paramètres :



+5% intensité | +5% E0 | +5% largeur mi-hauteur | +0.001cm⁻¹ P shift | +0.001 cm⁻¹ position





Cas d'une raie isolée de vapeur d'eau

→ Etude de sensibilité aux paramètres spectroscopiques (GEISA) par perturbation de 5 paramètres :



+5% intensité | +5% E0 | +5% largeur mi-hauteur | +0.001cm⁻¹ P shift | +0.001 cm⁻¹ position



• Le besoin en précision augmente avec l'amélioration des caractéristiques spectrales et radiométriques des instruments.

• Identification des paramètres à mieux connaître pour satisfaire les besoins mission. 32





Des besoins différents suivant les communautés

Au-delà des grandes basses de données GEISA et HITRAN, d'autres bases de données existent :

- Lien avec un instrument.
- Besoin de très grandes précisions sur peu de paramètres.

ex : intensité, position et identification des raies pour l'astronomie.

→ Consortium VAMDC : http://www.vamdc.org/



Virtual Atomic and Molecular Data Centr

24 partenaires internationaux33 bases de données.

→ possibilité d'extraire une sélection de données issues de plusieurs bases.



2. Modélisation des raies

To use Voigt or not to use Voigt, that is the question...



2.1. Raies isolées2.2. Raies non isolées2.3. Effet Zeeman



Limitation du profil de Voigt pour les raies isolées





Limitation du profil de Voigt pour les raies isolées

•Le profil de Voigt néglige :

♦les changements de vitesse dus aux collisions entre molécules.

→ Réduction de l'élargissement Doppler → effet Dicke de rétrécissement

♦ la dépendance en vitesse de la largeur de la raie et de son déplacement spectral.

→ Effet Speed-dependent

•Développement de différents modèles non-Voigt :

 \diamond Pour les changements de vitesse :

- Galatry (soft collisions) profile.
- Rautian or Nelkin-Ghatak (hard collisions) profile.
- → introduit un taux de changement de la vitesse relié au coef. de diffusion.

Recommandation Octobre 2013

IUPAC (International Union of Pure and Applied Chemistry)

Etant donnée la précision désormais atteinte avec ce type de profils, utiliser ces nouveaux profils pour les raies isolées

 \rightarrow Réflexion en cours dans les BDD pour inclure ces nouveaux paramètres.

 \rightarrow A terme, changement de la modélisation de la forme des raies dans les codes de TR.



Limitation du profil de Voigt pour les raies non isolées

Line-mixing (interférences entre raies):

Lorsque plusieurs raies se juxtaposent, les collisions induisent des transferts de population entre les niveaux qui conduisent à des transferts d'énergie entre les raies





•Mesures en laboratoire O_2/N_2 A band à 0,76 μ m :

→ Spectre à faible résolution spectrale sur toute la bande de O_2 regroupant plusieurs centaines de raies.

- → Le profil de Voigt n'est plus adapté.
- → Amélioration du résidu en prenant en compte le line-mixing.



Line-mixing du CO_2 à 15 µm et 4.3 µm







A 4,3 μm : utilisation des paramètres de 15 μm. Corrige en partie mais nécessité de calculer des paramètres spécifiques.



Le HNO₃ à 11,3 μ m : évaluation des paramètres spectro. obtenus au LISA



Multiplet (6 raies) du CH_4 « Merlin » à 1.65 µm

•Résidu plus élevé avec GEISA 2014... malgré des paramètres spectroscopiques up-to-date.

→ Nécessité de prendre en compte le line-mixing des 6 raies CH₄.

- •Or, la précision requise pour Merlin est de... 0.1 % !!
 - → Ajustement simultané de l'ensemble des paramètres (en cours au LISA)

Lorentz	Doppler D	Dicko	Speed-	l ino-miving
		DICKE	dependent	Line-mixing

Modélisation des raies

Effet Zeeman dans les micro-ondes

L'effet Zeeman a pour origine la subdivision des niveaux d'énergie des atomes ou des molécules plongés dans un champ magnétique. Selon les conditions, les raies spectrales se divisent en un nombre impair dit « normal » ou bien en un nombre pair dit « anormal »

Effet Zeeman sur l'O₂ dans la stratosphère mesuré par le radiomètre MO TEMPERA au sol

Simulation de l'effet Zeeman par le code Atmospheric Radiative Transfer Simulator (ARTS) Buehler et al. (2005), version 2.2 by Larsson et al. (2014).

Navas-Guzman et al AMTD 2015

3. Les effets bandes larges

3.1. Les continua

3.2. Les sections efficaces

Les continua

•CIA O₂, N₂ (Collisional Induced Absorption): raies très élargies par effet collisionnel

•Ailes de raies mal modélisées :

 \rightarrow pas de profils de raie adaptés à ce jour (ex: effet sub-Lorentzien pour H₂O) •Coupures des ailes de raies dans les codes de TR :

 \rightarrow choix dans le code de TR.

 \rightarrow exemple du continuum de vapeur d'eau.

Continuum de vapeur d'eau

Coefficient d'absorption du continuum de vapeur d'eau :

 Intensité des raies d'absorption de H₂O (GEISA 2014)

- Continuum MTCKD 2.5 (Clough)

Le continnum MTCKD de Clough a été calculé avec la coupure des ailes de raies à 25 cm⁻¹ utilisée dans LBLRTM

Impact de la coupure des ailes de raies sur la prise en compte du continuum

•Augmentation de la zone d'exploration des ailes de raies pour mieux prendre en compte les variations en T et P de l'absorption.

→ Nécessité de réajuster le continuum de Clough en fonction de la coupure des ailes de raies utilisée dans le code de TR.

Continuum de vapeur d'eau : études en cours

•Un nouveau continuum de vapeur d'eau : CAVIAR [Ptashnik et al.]

•De nouvelles mesures en laboratoire :

D. Mondelain, S. Kassi, A. Campargue,

Continuum de vapeur d'eau : études en cours

Les mesures par CRDS sont en fort désaccord avec le continuum CAVIAR mais en bon accord avec le continuum MTCKD de Clough.

Mondelain et al JGR 2014 Mondelain et al PCCP submitted

\rightarrow De nombreuses régions (P,T) restent à explorer...

49

Effets bandes larges

Les CFCs

Elargissement des raies trop important pour pouvoir déterminer les paramètres spectro \rightarrow utilisation des sections efficaces d'absorption

•**Première étape** : interpolation des mesures en labos (+) effectuée pour des couples (P,T) donnés.

EISA

Sous-BDD

section

efficace

Les CFCs

•<u>Deuxième étape</u> : prise en compte de la variation spectrale des sections efficaces
 → Influence de la résolution spectrale des mesures en labo

Les CFCs

LMD

•Deuxième étape : prise en compte de la variation spectrale des sections efficaces

 \rightarrow Influence de la résolution spectrale des mesures en labo

4. La rupture de l'Equilibre Thermodynamique Local (LTE)

Basse atmosphère :

Les populations des niveaux d'énergie sont déterminées par les collisions moléculaires, suivant la loi de Boltzman.

Milieu et haute atmosphère :

Des facteurs non-locaux (rayonnement) modifient les populations des niveaux d'énergie.

→Rupture de l'ETL

La hauteur de la rupture dépend de l'intéraction entre les termes collisionels et radiatifs (pompage solaire, rayonnement des basses couches, photochimie)

Rupture de l'Equilibre Thermodynamique Local

Impact des effets non-ETL au limbe

Effets non-LTE principalement pris en compte pour les mesures au limbe et pour l'étude des atmosphères d'autres planètes.

Simulations à l'aide du "code non-LTE" ALI-ARMS (utilisé pour les atmosphères de la Terre, Mars, Titan, Saturne).

Impact sur les mesures au nadir

2.5 2 1.5 1

0.5

0 -0.5 -1 -1.5

Impact sur les mesures au nadir

Impact sur les mesures au nadir

Prise en compte du non-ETL dans les codes de TR

• Correction a posteriori :

LUT de corrections à appliquer à chaque canal après calcul du TR en conditions ETL.

- → LUT calculées par codes non-ETL.
- \rightarrow Pas de modification du code de TR
- \rightarrow Mais LUT à refaire pour chaque instrument, canal, etc.

(ex: DeSouza-Machado et al., 2007)

• Approche physique :

Remplacer la partie ETL par une partie non-ETL en modifiant l'émission par prise en compte de T_{vib} à la place de T_{kin} .

→ Approche universelle ("vrai TR")

 \rightarrow Mais calcul de T_{vib} à réaliser pour toutes les transitions de chaque molécule.

Le rayonnement solaire

•Effet du rayonnement solaire (de jour...)

Influence de la surface

 \rightarrow vers une prise en compte des BRDF ?

Conclusion

- De nombreuses avancées sur les 4 grands thèmes :
 - Paramètres spectroscopiques des raies d'absorption.
 - Modélisation des formes de raies d'absorption.
 - Effets bandes larges.
 - Rupture de l'équilibre thermodynamique local.

•Les performances atteintes conjointement par les instruments, notamment spatiaux, les codes de transfert radiatif, les bases de données spectroscopiques et les bases de données auxiliaires permettent désormais une évaluation fine des avancées et des problèmes existants.

•Mise en place d'une boucle complète de mise à jour et d'évaluation de la modélisation du TR et des données spectroscopiques.

•Retour vers les agences spatiales pour les besoins de préparation de nouvelles missions.

