

GAZ À EFFET DE SERRE INDIRECTS ET QUALITÉ DE L'AIR AUX LATITUDES MOYENNES DE L'HÉMISPHERE NORD : TENDANCES Á LONG TERME ET VARIABILITÉ DÉDUITES DE TÉLÉMESURES EFFECTUÉES AU JUNGFRAUJOCH (ALPES SUISSES, 3580 m)

FRANCO B. ⁽¹⁾, BADER W. ⁽¹⁾, LEJEUNE B. ⁽¹⁾, BOVY B. ⁽¹⁾

(1) Institut d'Astrophysique et de Géophysique, ULg, 17 Allée du 6 Août, 4000 Liège, Belgique
[bruno.franco@ulg.ac.be]

Résumé – Nous présentons un aperçu des recherches récentes effectuées par le Groupe InfraRouge de Physique Atmosphérique et Solaire au sein de l'Université de Liège portant sur la surveillance et la caractérisation à long terme de gaz affectant la qualité de l'air aux latitudes moyennes de l'hémisphère nord et possédant un effet radiatif indirect. Les concentrations de ces gaz dans l'atmosphère sont extraites de spectres d'absorption solaire à très haute résolution enregistrés de façon récurrente dans l'infrarouge à la station du Jungfraujoch (Alpes suisses, 46,5° N, 8,0° E, 3580 m alt.) à l'aide de spectromètres par transformée de Fourier. Les séries temporelles dérivées de ces observations, utilisées conjointement avec des données satellites et des simulations de modèles numériques, permettent d'étudier la variabilité et l'évolution récente de ces espèces gazeuses et s'avèrent essentielles à la caractérisation de la qualité de l'air et à l'étude des changements climatiques.

Mots-clés : gaz à effet de serre indirect, qualité de l'air, spectres d'absorption solaire, tendances à long terme.

Abstract – *Indirect greenhouse gases and air quality at Northern Hemisphere mid-latitudes: long-term trends and variability derived from ground-based remote sensing at Jungfraujoch (Swiss Alps, 3580 m a.s.l.).* We present an overview of recent investigations conducted by the Solar and Atmospheric Physics Infrared Group at the University of Liège and dedicated to the long-term monitoring of atmospheric gases with an indirect greenhouse effect and affecting air quality at Northern Hemisphere mid-latitudes. Gas concentrations are derived from high-resolution solar spectra recorded at the Jungfraujoch station (Swiss Alps, 46.5° N, 8.0° E, 3580 m a.s.l.), using Fourier transform infrared spectrometers. Time series obtained from these observations, along with satellite measurements and simulations from numerical models, allow for the study of both variability and recent evolution of these species and are critical for air quality monitoring and understanding climate changes.

Keywords: indirect greenhouse gases, air quality, solar spectra, long-term trends.

Introduction

Les émissions de précurseurs d'ozone (O₃), le polluant majeur de la troposphère terrestre et un important gaz à effet de serre, vont continuer de croître en raison de l'industrialisation grandissante à travers le monde. Une exposition à de fortes concentrations en O₃ peut engendrer de graves effets pour la santé humaine et les écosystèmes. Le processus à l'origine de la formation d'O₃ troposphérique consiste en une série de réactions chimiques complexes au cours desquelles les composés organiques volatiles (COVs) et le monoxyde de carbone (CO) servent de « carburant » et subissent différentes étapes successives d'oxydation en présence de rayonnement solaire et de monoxyde d'azote. Il résulte de ce cycle catalytique une production nette de vapeur d'eau, de dioxyde de carbone (CO₂) et d'O₃. Par ailleurs, l'abondance des COVs affecte la capacité oxydante de la troposphère car ceux-ci réagissent avec le radical hydroxyle (OH), le détergent de l'atmosphère et le puits principal d'O₃ et du méthane (CH₄), un des principaux gaz à effet de serre. En utilisant une partie des radicaux OH qui auraient pu détruire O₃ et CH₄, les COVs ont un effet de forçage radiatif indirect en augmentant les concentrations en O₃ troposphérique et la durée de vie de CH₄.

Pour une meilleure compréhension de l'évolution de la composition chimique de l'atmosphère et une surveillance de la qualité de l'air, des recherches récentes effectuées au sein de l'Université de Liège par le GIRPAS (Groupe InfraRouge de Physique Atmosphérique et Solaire) sont dédiées au suivi et à la caractérisation à long terme de ces gaz précurseurs d'O₃. Le présent document offre un aperçu de ces recherches.

1. Technique et données

Les instruments d'observation basés au sol contribuent de manière significative à la surveillance de la composition chimique de l'atmosphère. Parmi eux, les spectromètres infrarouges à transformée de Fourier (FTIR) permettent d'enregistrer des observations d'absorption solaire à large bande et à haute résolution spectrales couvrant les signatures d'un grand nombre de gaz atmosphériques. Plus d'une vingtaine de spectromètres FTIR distribués à travers le monde à des sites stratégiques enregistrent de manière régulière des spectres infrarouge (IR) dans le cadre du réseau NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change ; <http://www.ndsc.ncep.noaa.gov/>), notamment la station du Jungfraujoch où de telles observations sont réalisées de manière ininterrompue depuis 1984.

1.1. Site de mesure

La station scientifique internationale du Jungfraujoch (46,5° N, 8,0° E, 3580 m alt. ; Zander *et al.*, 2008) est localisée sur une crête montagneuse entre deux sommets, la Jungfrau (4158 m a.s.l.) et le Mönch (4099 m a.s.l.), sur la face nord des Alpes suisses (Fig. 1). Cette station offre d'excellentes conditions pour réaliser des observations solaires, particulièrement dans le domaine de l'infrarouge, grâce à la très faible pollution locale (pas d'industries importantes endéans les 20 km) et à la très grande sécheresse qui y règne de par l'altitude et la présence du grand glacier d'Aletsch (la vapeur d'eau est une interférence majeure dans le domaine de l'infrarouge). La station du Jungfraujoch permet donc d'étudier la composition chimique de l'atmosphère libre au-dessus de l'Europe continentale, ainsi que le mélange entre des masses d'air de la couche limite planétaire et de la troposphère libre. La modélisation de trajectoire inverse des masses d'air révèle l'influence d'émissions biogéniques et anthropiques d'Europe de l'Ouest (par exemple des vallées du Pô et du Rhône), mais aussi de masses d'air originaires d'autres continents.



Figure 1. Vue d'hélicoptère de l'observatoire *Sphinx* de la station du Jungfraujoch. Source : <http://www.ifjungo.ch/>

1.2. Observations FTIR

Déterminer la distribution x_r d'un gaz cible le long de la verticale (z) dans l'atmosphère à partir d'un spectre d'absorption solaire FTIR consiste à résoudre un problème d'inversion selon l'équation suivante :

$$x_r(z) = x_a(z) + A(x_t(z) - x_a(z))$$

dans laquelle les vecteurs x_a et x_t décrivent respectivement les distributions verticales *a priori* et réelle du gaz cible. La matrice des fonctions de moyennage A décrit comment le profil retrouvé du gaz cible est relié aux vecteurs x_a et x_t , informe sur la gamme d'altitude à laquelle les mesures sont réellement sensibles et caractérise de manière objective le contenu en information de l'inversion (par exemple, la part de l'inversion issue de la mesure plutôt que des informations postulées *a priori*). Le problème d'inversion est résolu par des algorithmes basés sur l'implémentation semi-empirique de la méthode optimale d'estimation, qui prend en compte les conditions géophysiques et la variabilité naturelle du gaz cible, ou par une régularisation mathématique de Tikhonov. Les bilans d'erreur correspondants sont évalués précautionneusement (par exemple, au travers du calcul des matrices de gain et de

sensibilité) et les stratégies d'inversion sont optimisées de manière à minimiser les erreurs dues à l'inversion.

1.3. Le modèle GEOS-Chem

Les télémessures telles que les observations FTIR sont de plus en plus demandées pour la calibration/validation des modèles numériques de transport chimique, tandis que les simulations réalisées par ces modèles fournissent des informations supplémentaires très utiles pour étudier, par exemple, la variabilité des gaz dans l'atmosphère ou encore la localisation et les contributions respectives des sources d'émissions.

Le modèle global de transport chimique GEOS-Chem (<http://acmg.seas.harvard.edu/geos/>), utilisé au sein du GIRPAS, simule la distribution et le transport de plus de 100 traceurs gazeux et d'aérosols à l'échelle du globe. Il est forcé par les champs météorologiques assimilés GEOS-5 du NASA Global Modeling Assimilation Office. Les données GEOS-5 sont disponibles à une résolution horizontale native de $0,5^\circ \times 0,667^\circ$ sur 72 niveaux verticaux décrivant l'atmosphère jusqu'à la pression de 0,01 hPa, à une fréquence 6 heures (3 heures pour les variables de surface). Dans le cadre des études présentées ici, nous avons utilisé les données GEOS-5 à une résolution horizontale de $2^\circ \times 2,5^\circ$ sur 47 niveaux verticaux en regroupant les niveaux supérieurs à ~80 hPa. Nous avons également employé la simulation standard de GEOS-Chem (v9-01-03) incluant les mécanismes chimiques détaillés et couplés O₃ – oxydes d'azote (NO_x) – COVs – aérosols.

2. Résultats

Une partie des recherches récentes menées par le GIRPAS ont porté sur l'éthane (C₂H₆ ; voir Franco *et al.*, 2015a), le méthanol (CH₃OH ; voir Bader *et al.*, 2015), le formaldéhyde (HCHO ; voir Franco *et al.*, 2015b), et trois COVs jouant un rôle important dans les réactions photochimiques responsables de la formation d'O₃ troposphérique et dont le processus de dégradation influe sur la durée de vie de CH₄. Quant à l'oxysulfure de carbone (OCS ; voir Lejeune *et al.*, 2015), c'est un gaz à effet de serre dans la troposphère et une source d'aérosols sulfatés dans la stratosphère. Nous présentons ici, pour chacune de ces espèces, les séries temporelles des moyennes journalières depuis 1995, dérivées des observations FTIR réalisées à la station du Jungfraujoch (Fig. 2). Ces séries de télémessures sont les plus longues à l'heure actuelle pour ces gaz, et sont uniques en termes de qualité et de densité de mesures. De ces séries temporelles sont dégagées des tendances à l'aide d'un outil de ré-échantillonnage statistique, combinant une fonction linéaire et une série de Fourier de 3^{ième} ordre prenant en compte la variabilité intra-annuelle des sets de données.

2.1. Ethane (C₂H₆)

C₂H₆ est l'hydrocarbure hors CH₄ le plus abondant dans l'atmosphère terrestre et est principalement émis dans l'hémisphère nord en raison de fuites dans la production et le transport de gaz naturel, de la consommation de carburants fossiles, ou encore du raffinage du pétrole. De par sa durée de vie relativement longue dans l'atmosphère (environ 2 mois), C₂H₆ est capable d'être transporté à l'échelle du globe et est susceptible d'affecter la qualité de l'air dans des régions reculées en tant que précurseur d'O₃ troposphérique. Il représente donc un indicateur sensible de la pollution et du transport dans la troposphère. Sa dégradation en présence du radical OH mène également à la formation de CO et de peroxyacétylnitrate (PAN), un des principaux réservoirs d'oxydes d'azote (NO_x) dans l'atmosphère.

Après une période de décroissance régulière liée à des politiques d'abattements des émissions anthropiques polluantes, nous avons détecté une brutale ré-augmentation de l'abondance en C_2H_6 au-dessus du Jungfraujoch à partir de 2009 (Fig. 2a), à un taux proche de 5%/an. Les observations depuis l'espace par l'instrument ACE-FTS (Atmospheric Chemistry Experiment – Fourier Transform Spectrometer) à bord du satellite SCISAT-1 ont confirmé que cet accroissement récent est étendu à tout l'hémisphère nord, mais n'apparaît pas dans l'hémisphère sud. Il pourrait être dû à d'importantes émissions fugitives de C_2H_6 en lien avec l'exploitation récente et massive de gaz de schiste et de réserves de pétrole dans l'hémisphère nord, telles que détectées récemment depuis l'espace au-dessus de régions d'Amérique du Nord où les activités de forage ont rapidement augmenté après 2009. Une étude dirigée par le GIRPAS est en cours afin d'identifier clairement les causes de la ré-augmentation du C_2H_6 . La comparaison entre les observations FTIR et les simulations de GEOS-Chem montre un très bon accord en termes de modulation saisonnière (Fig. 3a). Cependant, le fait que le modèle sous-estime l'abondance de C_2H_6 et ne simule pas sa ré-augmentation suggère des insuffisances au niveau des inventaires d'émissions implémentés par GEOS-Chem et montre la nécessité de mettre ces derniers à jour pour que le modèle puisse reproduire l'évolution récente de C_2H_6 .

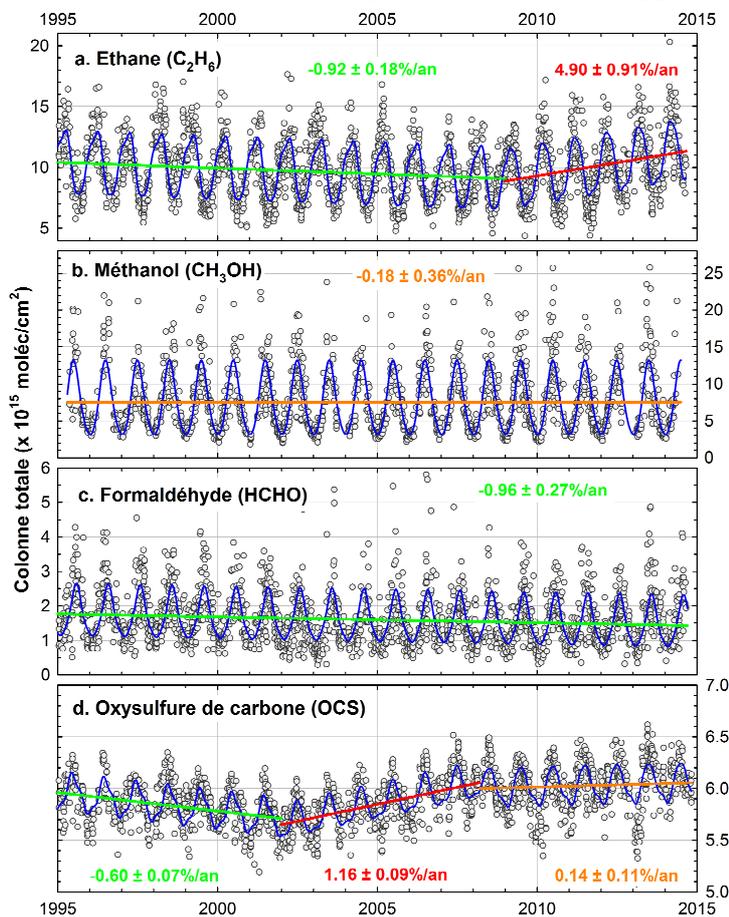


Figure 2. Moyennes journalières des colonnes totales ($\times 10^{15}$ moléc/cm²) de C_2H_6 (a), CH_3OH (b), $HCHO$ (c) et OCS (d) au Jungfraujoch. La courbe bleue correspond à l'ajustement des moyennes par la combinaison d'une fonction linéaire et d'une série de Fourier de 3^{ème} ordre. Les tendances sont données avec 2 écarts-types d'intervalle de confiance.

2.2. Méthanol (CH_3OH)

CH_3OH est un composé organique abondant dans l'atmosphère terrestre. La croissance de la végétation en est la source majeure et constitue de 65 à 80% de ses émissions totales. La production directe de CH_3OH dans l'atmosphère représente quant à elle jusqu'à 23% du total, le solde étant constitué de la décomposition de la matière végétale, des feux de biomasse, de la combustion de carburants fossiles, des émissions des véhicules, etc. CH_3OH étant comme C_2H_6 un COV réactif dont la voie de dégradation principale est l'oxydation par le radical OH, son abondance dans l'atmosphère contribue à la formation de vapeur d'eau et d' O_3 troposphérique, ainsi qu'à allonger la durée de vie de CH_4 .

L'analyse de la série temporelle de CH_3OH ne révèle aucune tendance significative à long terme (Fig. 2b), mais montre une très grande amplitude saisonnière pic à pic (définie ici comme la différence entre les moyennes mensuelles maximum et minimum, divisée par la moyenne annuelle) de près de 130%, en lien avec la forte saisonnalité de ses sources

(croissance de la végétation, etc.). Ces observations FTIR ont montré un bon accord en termes de modulation saisonnière dans la basse troposphère avec des mesures *in situ*, ainsi que dans la haute troposphère – basse stratosphère avec les observations de l'instrument ACE-FTS.

2.3. Formaldéhyde (HCHO)

HCHO est le composé carbonyle organique le plus abondant dans la troposphère terrestre. Etant majoritairement produit à haut rendement par l'oxydation de la plupart des COVs primaires d'origine naturelle ou liée aux activités humaines, il est omniprésent dans l'atmosphère. Les COVs à longue durée de vie comme CH_4 contribuent à produire le niveau de base de HCHO dans l'atmosphère, tandis que sa variabilité spatiale est avant tout associée à l'oxydation de COVs réactifs d'origine biogénique (CH_3OH , l'isoprène, etc.) ou anthropique (C_2H_6 , le butane, etc.). HCHO est un gaz extrêmement réactif et possède donc un très court temps de vie dans l'atmosphère (pas plus de quelques heures). De ce fait, les pics locaux de HCHO peuvent être étroitement reliés aux émissions de ses précurseurs et peuvent servir en une approche inverse à inférer leur propre distribution spatiale si le temps de vie de ces précurseurs est assez court pour éviter à la relation spatiale d'être atténuée par le transport atmosphérique. En raison de sa destruction par oxydation, HCHO est aussi utilisé comme proxy de la concentration en OH dans le but d'étudier la capacité oxydante de l'atmosphère.

Une étude est en cours au GIRPAS afin d'exploiter la série temporelle de HCHO et d'étudier sa variabilité interannuelle. Les résultats préliminaires permettent de mettre en évidence une décroissance progressive de HCHO au-dessus du Jungfraujoch à près de 1%/an entre 1995 et 2014 (Fig. 2c). Cette tendance négative peut refléter une diminution globale de l'abondance en précurseurs de HCHO. Mais comme CH_4 , une des sources principales de HCHO, est généralement mesuré en augmentation depuis le début des années 2000, la diminution de HCHO ces dernières années pourrait alors être essentiellement l'effet d'une réduction d'émissions anthropiques. La Fig. 3b montre que GEOS-Chem simule un cycle saisonnier de HCHO en phase avec les observations FTIR, mais sous-estime le maximum estival. Des tests de sensibilité effectués avec le modèle suggèrent que des incertitudes sur les émissions de précurseurs biogéniques de HCHO sont à l'origine de la différence observée en été.

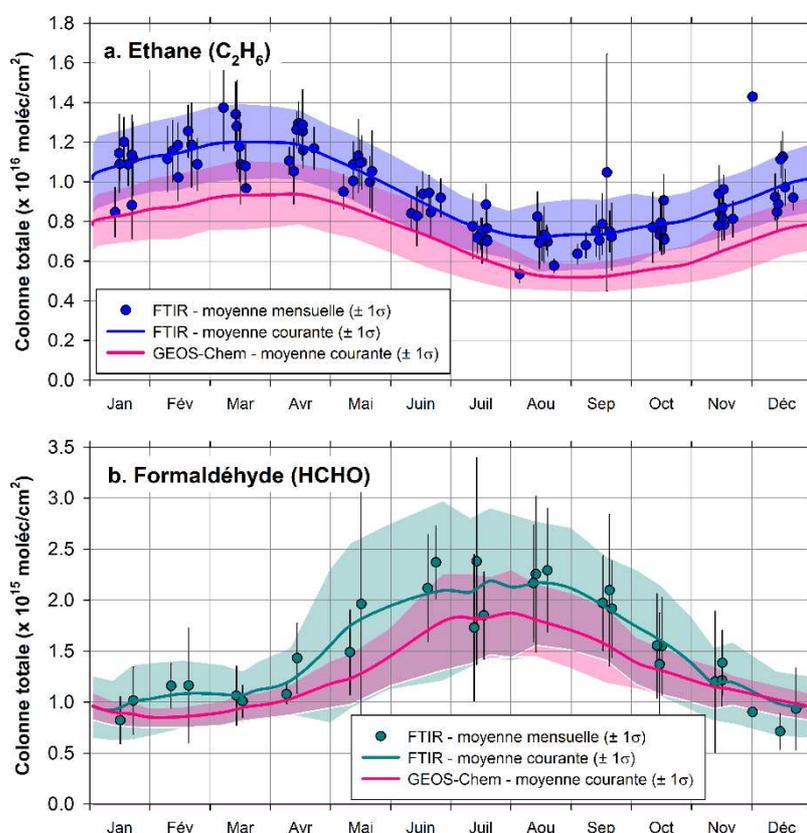


Figure 3. Moyennes mensuelles des colonnes totales de C_2H_6 (a) et HCHO (b) au Jungfraujoch avec une variabilité d'un écart-type. Les courbes et aires colorées correspondent respectivement à la moyenne courante des moyennes journalières (avec 2 mois d'intégration et 15 jours de pas de temps) et à un écart-type pour les observations FTIR et les simulations de GEOS-Chem.

2.4. Oxysulfure de carbone (OCS)

OCS est le principal gaz soufré atmosphérique. Les océans et certaines émissions anthropiques sont ses sources majeures, alors que ses puits principaux sont la capture par la végétation (de manière similaire au CO₂) et les sols, à laquelle s'ajoutent des pertes atmosphériques via oxydation par OH et photolyse. De ce fait, il influence également la capacité oxydante de l'atmosphère. En raison de sa durée de vie suffisante (de 2 à 6 ans), OCS est capable d'atteindre la stratosphère où il représente le principal contributeur d'aérosols stratosphériques sulfatés. Ces derniers jouent un rôle important dans la destruction de la couche d'O₃ stratosphérique et possèdent un fort effet radiatif en renvoyant vers l'espace une partie des rayonnements solaires.

À la ré-augmentation d'OCS à un taux de près de 1%/an au-dessus du Jungfraujoch depuis 2002 fait suite une période de stabilisation depuis 2008 (Fig. 2d). Ces variations d'abondance d'OCS sont principalement de nature troposphérique, aucune évolution significative n'étant détectée dans la stratosphère, ce que confirment des observations ACE-FTS. Bien que de nombreuses inconnues subsistent dans le budget global d'OCS, l'importance relative des émissions anthropiques permet d'envisager un lien entre la récente évolution contrastée d'OCS et les activités humaines : par exemple, chute de la production de viscose depuis la fin des années 1980 et augmentation de la combustion mondiale de charbon à partir du début des années 2000.

Conclusions

Les observations FTIR effectuées à la station du Jungfraujoch permettent entre autres de déterminer l'abondance et la distribution verticale de gaz précurseurs d'O₃ troposphérique qui, par leur voie de dégradation, affectent la capacité oxydante de l'atmosphère. Les séries temporelles dérivées de ces observations, couvrant une vingtaine d'années, offrent la possibilité d'analyser et de caractériser la variabilité et l'évolution récente de ces gaz dans l'atmosphère libre, aux latitudes moyennes de l'hémisphère nord. Ces télémessures sont également précieuses pour le processus de calibration d'instruments à bord de satellites, limités en termes de couverture temporelle, et de modèles de transport chimique, notamment pour mettre à jour, compléter et valider leurs inventaires d'émission afin que ces modèles puissent *in fine* reproduire et contribuer à expliquer les changements observés.

Références bibliographiques

- Bader W., Stavrou T., Müller J.-F., Reimann S., Boone C.D., Harrison J.J., Flock O., Bovy B., Franco B., Lejeune B., Servais C., Mahieu E., 2014 : Long-term evolution and seasonal modulation of methanol above Jungfraujoch (46.5° N, 8.0° E): Optimisation of the retrieval strategy, comparison with model simulations and independent observations. *Atmos. Meas. Tech.*, **7**, 3861-3872, doi: 10.5194/amt-7-3861-2014.
- Franco B., Bader W., Toon G.C., Bray C., Perrin A., Fischer E.V., Sudo K., Boone C.D., Bovy B., Lejeune B., Servais C., Mahieu E., 2015a : Retrieval of C₂H₆ from ground-based FTIR solar spectra using improved spectroscopy: recent burden increase above Jungfraujoch, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. T.*, **160**, 36-49, doi: 10.1016/j.jqsrt.2015.03.017.
- Franco B., Hendrick F., Van Roozendaal M., Müller J.-F., Stavrou T., Marais E., Bovy B., Bader W., Fayt C., Hermans C., Lejeune B., Pinardi G., Servais C., Mahieu E., 2015b : Retrievals of formaldehyde from ground-based FTIR and MAX-DOAS observations at the Jungfraujoch station and comparisons with GEOS-Chem and IMAGES model simulations. *Atmos. Meas. Tech.*, **8**, 1733-1756, doi:10.5194/amt-8-1733-2015.
- Lejeune B., Bader W., Bovy B., Franco B., Servais C., Mahieu E., 2015 : Optimized approach to retrieve information on the carbonyl sulfide (OCS) vertical distribution above Jungfraujoch from high-resolution FTIR solar spectra. *Atmos. Meas. Tech.*, in preparation.
- Zander R., Mahieu E., Demoulin P., Duchatelet P., Roland G., Servais C., De Mazière M., Reimann S., Rinsland C.P., 2008 : Our changing atmosphere : evidence based on long-term infrared solar observations at the Jungfraujoch since 1950. *Sci. Total Environ.*, **391**, 184-195, doi:10.1016/j.scitotenv.2007.10.018.