

Assimilation de données satellitaires et inversion de sources pour l'étude de la composition chimique atmosphérique

SATELLITE DATA ASSIMILATION AND INVERSION OF SOURCES
FOR THE STUDY OF THE CHEMICAL COMPOSITION OF THE ATMOSPHERE

C. CLERBAUX ⁽¹⁾, A. HAUCHECORNE ⁽¹⁾, S. BEKKI ⁽¹⁾, C. GRANIER ⁽¹⁾, M. PIRRE ⁽²⁾, B. SPORTISSE ⁽³⁾,
J-P. ISSARTEL ⁽³⁾ et J-L ATTIE ⁽⁴⁾

⁽¹⁾ Service d'Aéronomie(SA) BP102 – Univ.Paris 6, 4 Place Jussieu, 75252 Paris Cedex 05

⁽²⁾ Laboratoire de Physique et Chimie de l'Environnement (LPCE), 3A Avenue de la Recherche Scientifique, 45071, Orléans Cedex 2

⁽³⁾ Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, Centre d'Enseignement et de Recherche en Eau, Ville et Environnement (CEREVE), Pole Air, 6-8 Avenue Blaise Pascal, Cité Descartes, 77455 Champs sur Marne

⁽⁴⁾ Laboratoire d'Aérodynamique (LA), 14 Avenue Edouard Belin, 31400 Toulouse.

Human activities are at the origin of emissions of polluted gases that can perturb the chemical composition of the atmosphere and the climate. The measurements of the concentration of atmospheric constituents at global scale is needed to forecast long term consequences of these emissions. Several space missions embarking instruments dedicated to the observation of minor atmospheric species have been launched recently or will be launched in the near future.

The measurements of chemical species are obtained at the global scale with vertical, horizontal and time sampling depending upon the instrument. Data assimilation techniques allow to reconstruct in an optimal way 3D global field of atmospheric parameters starting from a limited data set. They are widely used in weather forecast models and starts to develop in the field of atmospheric chemistry. This paper presents the work made within the French scientific community to develop and implement data assimilation methods in chemistry, dynamics and transport models in order to improve our knowledge of the composition of the troposphere and the stratosphere, using available measurements of atmospheric species (from satellites, balloons and aircrafts).

The work presented here has been done in the frame of French National Program of Atmospheric Chemistry (PNCA) in a coordinated project "Satellite data assimilation and sources inversion for the study of the atmospheric chemistry". It is made in interaction with other PNCA projects, "Chemistry at large scale and chemistry-climate interaction" and "Emissions of chemical compounds and aerosols".

The first part describes studies on the chemical composition of the troposphere. The major scientific issues concern the evolution of the oxydation poten-

tial of the troposphere, in particular:

- the impact of changes in emission of trace gases (CO, CH₄, hydrocarbons, ...);
 - the influence of highly industrialized regions on the distribution of chemical species;
 - the effect of biomass burning in the tropics.
- MOPITT (Measurement Of Pollution In The Troposphere) satellite data have been assimilated in a tropospheric Chemistry Transport Model (CTM) to obtain global fields of CO. MOPITT data will be also used to invert sources of CO and CH₄ by data assimilation techniques.

The second part presents development made to assimilate stratospheric ozone and minor species data in several CTM, using both variational and sequential assimilation techniques.

The third part concerns methodologic studies for the use of variational methods in data assimilation in CTM.

INTRODUCTION

Les activités humaines produisent des émissions de polluants qui sont susceptibles de perturber la composition chimique de l'atmosphère et le climat. La mesure de la concentration des constituants atmosphériques à l'échelle globale est donc indispensable si l'on veut pouvoir prévoir les conséquences à long terme de ces émissions. Le présent article présente les travaux effectués au sein de la communauté française sur l'utilisation des techniques d'assimilation de données et d'inversion de sources. Leur objectif est d'améliorer notre connaissance de l'atmosphère terrestre en utilisant les mesures de concentration des constituants atmosphériques (satellites, avions, ballons) afin de contraindre les modèles atmosphériques, tant pour l'étude de la composition de la troposphère que pour l'étude de la chimie stratosphérique. Les techniques d'assimilation de données permettent de reconstituer de

façon optimale des champs globaux 3D de paramètres atmosphériques à partir d'un jeu limité de données. Ces techniques, utilisées depuis longtemps en météorologie, se développent rapidement dans le domaine de la chimie atmosphérique. Ces travaux sont réalisés dans le cadre d'un projet soutenu par le Programme National de Chimie Atmosphérique (PNCA) coordonné par C. Clerbaux. D'autre part ils sont réalisés en interactions avec d'autres projets soutenus par le PNCA :

- Chimie à grande échelle et interactions chimie-climat (coordinateurs D. Hauglustaine et V.H. Peuch) ;
- Emissions des composés chimiques et des aérosols (coordinateurs C. Granier et C. Liousse).

Les interactions entre ces projets sont présentées sur la Fig. 1.

ETUDE DE LA COMPOSITION CHIMIQUE DE LA TROPOSPHERE

Sous l'influence des activités humaines, la composition chimique de la troposphère évolue et les concentrations de nombreuses espèces varient rapidement. La production d'énergie à partir des combustibles fossiles (charbon, pétrole), l'activité industrielle et agricole, le brûlage de la biomasse, conjugués à la croissance démographique continue, sont les principaux responsables de modification des émissions de constituants atmosphériques mineurs qui régissent la composition chimique de la troposphère, comme le monoxyde de carbone (CO), le méthane (CH₄), les oxydes d'azote (NO_x = NO + NO₂), les hydrocarbures et les composés soufrés. Les quantités supplémentaires de gaz en trace s'ajoutent à celles générées par les processus naturels liés aux échanges avec la biosphère (sols, végétation, océans) et aux volcans [WMO, 1999 ; IPCC, 2001].

Les modifications de la concentration en constituants primaires (gaz émis au niveau de la surface terrestre) induisent des changements dans la concentration des constituants secondaires, qui sont produits par les réactions photochimiques qui se déroulent au sein de l'atmosphère, comme l'ozone (O₃) et le radical hydroxyle (OH). La concentration en OH détermine la capacité oxydante de l'atmosphère, c'est-à-dire son efficacité à détruire les polluants par des processus d'oxydation. Le contrôle des émissions (protocole de Kyoto, convention de Montréal) pour les pays industrialisés et l'accroissement de l'activité économique dans les pays en voie de développement vont induire des modifications importantes dans la distribution des constituants à l'échelle de la planète. En effet, toute modification dans l'émission d'un gaz trace induit des changements au niveau de la concentration en espèces oxydante (O₃ et OH), qui à leur tour affectent la durée de vie des polluants et leur distribution.

Les questions scientifiques majeures pour l'étude de la troposphère concernent l'évolution de sa capacité d'oxydation, en particulier :

- l'impact des modifications d'émission en gaz traces (CO, CH₄, NO_x, hydrocarbures...) ;
- l'influence des régions fortement industrialisées sur la distribution des espèces ;
- l'effet des émissions liées au brûlage de la biomasse, en particulier dans les tropiques.

Pour étudier la composition de l'atmosphère, de nombreuses missions satellitaires comportant des instruments qui mesurent les concentrations en constituants atmosphériques ont été lancées ou sont proposées pour un lancement dans un futur proche. Les instruments spatiaux combinent sondages troposphériques, stratosphériques et haute-troposphère/basse-stratosphère, pour per-

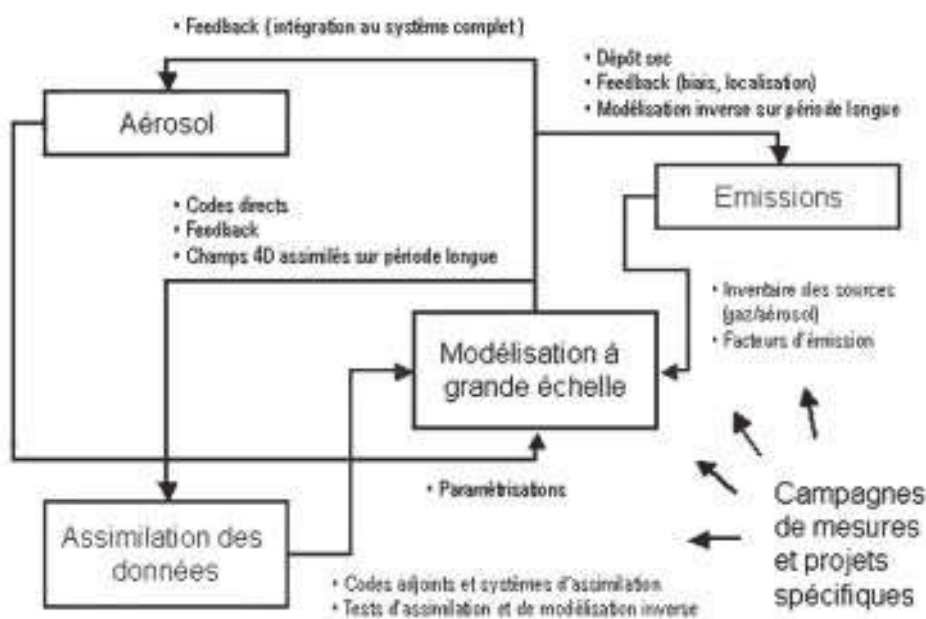


Fig. n°1 : Schéma des interactions entre les différents projets d'étude de la chimie atmosphérique

mettre l'étude des distributions spatio-temporelles des constituants atmosphériques minoritaires à l'échelle globale. Dans la troposphère, les observations depuis l'espace par visée au nadir permettent de mesurer les concentrations des espèces troposphériques avec une bonne couverture géographique et temporelle, au détriment de la résolution horizontale/verticale et de la précision. De ce fait, certaines espèces à courte durée de vie, comme OH, ne sont pas mesurables depuis l'espace. Les campagnes de mesures locales (mesures sol et in-situ) et régionales (avion, ballon) sont en général plus précises, tant d'un point de vue de la résolution spatiale et temporelle que de l'incertitude liée à la mesure. Elles permettent d'une part de valider les mesures satellitaires, d'autre part d'accéder aux concentrations de constituants qui ne peuvent être détectés par un sondeur embarqué sur satellite. L'utilisation de modèles de chimie-transport atmosphérique (CTM on-line ou off-line, régionaux ou globaux) permet de combiner différents types de mesures pour étudier les processus physico-chimiques qui régissent la composition atmosphérique, en utilisant des techniques d'assimilation de données (pour contraindre le modèle par les mesures) ou de modélisation inverse (pour quantifier les sources d'émission). Les instruments actuels fournissent des distributions d'ozone, de CO et de CH₄ et de NO₂ à l'échelle globale. Grâce à l'assimilation de données chimique, la mesure d'un des paramètres peut aussi apporter des informations sur les autres variables calculées et la distribution de certaines espèces chimiques non mesurées.

CHIMIE TROPOSPHERIQUE

Les équipes impliquées dans ce projet ont déjà à leur disposition des données mesurées par satellite pour plusieurs gaz traces, et de nouvelles observations devraient être disponibles dans les prochaines années avec le lancement récent de ENVISAT et le lancement programmé de METOP (2005). L'instrument GOME/ERS2 nous permet d'avoir accès aux distributions à l'échelle globale des contenus intégrés troposphériques en ozone, ainsi qu'en dioxyde d'azote [Velders et al., 2001] et en formaldéhyde. Ces données sont restituées et analysées dans le cadre du contrat européen POET (Precursors of Ozone and their Effects in the Troposphere). L'instrument IMG a volé à bord de la plate-forme ADEOS et a fourni des données pour la période novembre 1996 - juin 1997. L'analyse des spectres atmosphériques enregistrés en visée au nadir a permis la restitution de colonnes totales de CO, CH₄ (Hadjilazaro et al., 2002) et ozone (Turquety et al., 2002). Grâce aux mesures satellitaires réalisées par l'instrument canadien MOPITT (Measurement Of Pollution In The Troposphere; Drummond ; 1992) à bord de la plateforme US Terra depuis décembre 1999, nous disposons aussi maintenant de plusieurs mois de mesures à l'échelle globale de CO. En collaboration avec l'équipe MOPITT du NCAR (Lamarque et al., 1999 ; Kattharov et al., 2000) un module qui utilise un schéma d'assimilation séquentielle avait été implanté dans le modèle de chimie-transport MOZART (Brasseur et al., 1998 ; Hauglustaine et al., 1998) (version 2, forcée par les vents NCEP) pour l'analy-

se des données IMG/ADEOS (Clerbaux et al., 2001). Ces travaux ont permis d'obtenir des distributions globales de CO contraintes par les valeurs observées. Ils ont mis en évidence la nécessité d'améliorer les distributions des émissions de CO associées à la combustion de la biomasse dans le modèle et leurs cycles saisonniers. Les valeurs de rapport de mélange calculées en surface après assimilation des mesures IMG ont été validées avec les quantités mesurées par le réseau NOAA/CMDL durant les mêmes périodes.

Au cours de l'année 2002, ce schéma d'assimilation séquentielle (filtre de Kalman-Bucy) a été implémenté dans les modèles utilisés par notre groupe (MOCAGE/CNRM au LA et LMDz-INCA/IPSL au SA) avec l'aide deux chercheurs du NCAR (David Edwards et Jean-François Lamarque) qui ont séjourné en France fin 2001-début 2002. Il est constitué d'une librairie de sous-programmes à modifier en fonction des données satellitaires à assimiler. Il est actuellement en cours de test pour l'analyse des champs de CO fourni par l'instrument MOPITT. Une sortie du modèle MOCAGE après un jour d'assimilation de données est représentée Fig. 2.

Nous prévoyons en 2003 d'améliorer le code pour pouvoir l'utiliser sur des périodes de calcul plus longues. Les champs de CO calculés par chacun des modèles en utilisant un jeu de données commun seront comparés et analysés.

Les données MOPITT seront assimilées pour arriver à une distribution du CO aussi réaliste que possible afin d'étudier ensuite la redistribution du CO de la basse/haute troposphère tropicale vers les latitudes subtropicales [Edwards et al., 2003]. Une fois l'assimilation du CO de MOPITT effectuée, nous étudierons la sensibilité des HO_x et de l'ozone simulés par le modèle régional Mésio-nh (Lafore et al., 1998 ; Suhre et al., 2000) contraint par les résultats assimilés du modèle MOCAGE. La question est de savoir si on améliore vraiment la chimie du modèle et dans quelle proportion. Cette étude pourra se faire pendant la période de TRACE-P, expérience de validation de l'instrument MOPITT. Ainsi, nous pourrions comparer notamment des mesures in situ aux résultats Mésio-nh avec ou sans contrainte.

Les travaux d'assimilation à l'échelle globale seront étendus à l'assimilation conjointe de l'ozone et de ses précurseurs pour une période déterminée à partir des mesures IMG (CO, CH₄, O₃) et GOME (NO₂). Comme le modèle comprend un cycle chimique complet, la distribution de OH pourra être obtenue puisque les réactions chimiques entre les composés observés correspondent aux principaux processus de production et de destruction photo-chimique de OH. Les champs de OH ainsi déterminés pourront être utilisés pour l'optimisation des sources par modélisation inverse. A plus long terme, le code d'assimilation pourra être utilisé pour l'assimilation de diverses espèces chimiques et des aérosols.

INVERSION DE SOURCES

Au cours de l'année écoulée nous avons continué le développement d'une méthode numérique permettant de quantifier l'origine du monoxyde de carbone dans l'at-

mosphère. La technique du "tagine" ou "couleurs" permet de calculer en chaque point de l'atmosphère la contribution des différentes sources de CO (anthropique, combustion de la biomasse, sources océanique et biologique, oxydation du méthane et des différents hydrocarbures non-méthaniques). Cette technique, introduite dans les deux modèles de chimie-transport IMAGE (Muller et al., 1995) et MOZART, a permis de développer un schéma d'inversion bayésienne pour le composé chimiquement actif et de courte durée de vie qu'est CO. Les résultats obtenus avec les données du réseau de stations NOAA/CMDL (moyennes mensuelles pour la période 1990-1996) ont montré que les émissions de CO au dessus de l'Asie sont largement sous-estimées si on utilise les émissions de l'inventaire EDGAR-v2 comme a priori pour la période 1990-1996. Par ailleurs, cette étude a montré que la saisonnalité des émissions de CO dues au feux de biomasse au dessus des continents Africain et Sud-Américain issue des travaux de Hao et Liu (1994) ne correspond pas aux observations qui donnent un pic d'émission en septembre et non en octobre. Ces résultats sont présentés dans (Pétron et al., 2001). Nous avons récemment appliqué cette technique aux observations satellitaires du CO effectuées par l'instrument MOPITT. Les outils développés lors de la première étude d'inversion ont été adaptés pour ces nouvelles données et la technique d'inversion a été modifiée pour permettre des calculs plus rapides. Le nombre d'observations mensuelles est passé de 39 à près de 1500. La période couverte pour le moment par les données MOPITT est Mars 2000- Avril 2001. Nous travaillons avec les données MOPITT à 700 hPa. Les premiers résultats montrent la sensibilité de l'inversion aux émissions a priori. Un effort particulier a été consacré à l'amélioration des

émissions dues au "biomass burning", tenant compte des données satellite de mesure des feux mais aussi de facteurs d'émissions révisés. Une comparaison des résultats avec les données CMDL va permettre de tester et valider notre approche.

En utilisant le schéma d'inversion bayésienne décrit ci-dessus, nous continuerons à travailler à l'inversion des sources d'émission de CO à partir des données de l'instrument MOPITT (fournies à 6 niveaux, utilisation des mesures aux stations du réseau CMDL et des mesures avions durant la campagne Trace-P pour la validation). La quantité d'observations disponibles rend le problème de l'inversion moins sous-contraint que pour l'étude utilisant uniquement les observations des stations CMDL. Toutefois, l'inversion reste sensible au transport dans le modèle. Nous préciserons l'impact des vents utilisés (NCEP, ECMWF) sur les résultats de l'optimisation. Dans cette étude, les propriétés statistiques de la matrice d'observation qui lie les sources de CO aux concentrations de CO aux points d'observations sont étudiées. Les conclusions de ce travail permettront d'améliorer la technique d'inversion tout en précisant les limites.

D'autre part, des développements méthodologiques ont été entamés en utilisant la théorie des rétropanaches (Hourdin and Issartel, 2000). La théorie des rétropanaches est issue du domaine nucléaire où elle a été récemment développée pour identifier, à partir de mesures de concentration, la position des sources ponctuelles de contamination typiques de ce secteur : rejet ou accident de centrale, explosion militaire. Cette théorie établit essentiellement que l'information contenue dans une mesure de concentration d'un traceur linéaire peut être décrite et exploitée au travers d'un rétropanache qui se disperse vers le passé depuis le détecteur. Les traceurs

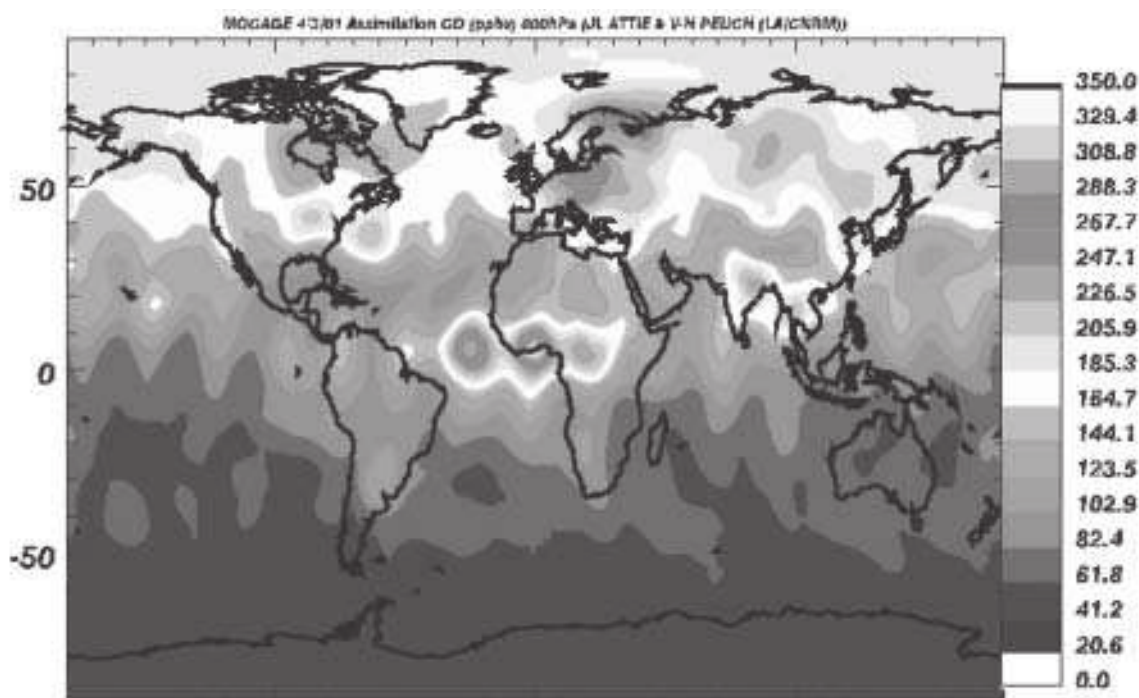


Fig. n°2 : Champ de CO (800 hPa, ppbv) obtenu après un jour d'assimilation des données MOPITT dans le modèle MOCAGE.

concernés par le présent programme sont, eux, émis ou absorbés au sol par des sources de géométrie complexe, diffusés dans l'espace (2D au sol) et dans le temps. Des calculs préliminaires ont montré que la reconstruction d'une telle source était possible au moyen d'une combinaison de rétropanaches. Les principes généraux de cette méthode ont été publiés. Il s'agit d'une méthode fondamentalement linéaire aussi a-t-on prévu d'en poursuivre le développement pour les traceurs suivant dont l'équation de dispersion est essentiellement linéaire: CO_2 , CO , CH_4 . Les deux derniers traceurs présentent un intérêt supplémentaire qui a également fait l'objet de calculs préliminaires encourageants. Ces traceurs ne sont pas absorbés au sol comme le dioxyde de carbone de sorte que la source à reconstruire est mieux contrainte par la nécessité d'être partout positive.

L'objectif principal étant d'utiliser les flux de mesures disponibles pour reconstituer la géométrie spatio-temporelle des sources de CO , CH_4 . Les objectifs secondaires sur lesquels nous prévoyons également de travailler sur deux objectifs secondaires: conception optimale des réseaux d'une part, l'assimilation de données satellitaires d'autre part (concentrations intégrées sur une colonne d'air).

Avant d'utiliser la méthode sur les sources réelles diffuses, on l'appliquera à un cas test académique afin de tester ses qualités intrinsèques et de régler des points méthodologiques secondaires. La source académique retenue est ETEX avec sa base de donnée. Cette source n'est pas diffuse mais concentrée sur le village breton de Monterfil pour une durée de douze heures. Cette source permettra donc de tester le degré de résolution spatiale et temporelle de la méthode de reconstruction proposée. L'idéal serait naturellement de reconstruire un "pic" lorsque la source, connue, est un pic. Si le pic reconstruit est très émoussé il faudra soit se contenter de reconstruire des sources assez lisses, soit envisager d'utiliser un réseau de mesures plus dense.

Au cours de l'année 2003 les études suivantes seront abordées:

- Reconstruction d'une source académique à méso-échelle. Nous proposons d'utiliser les données de la campagne ETEX pour reconstruire la source dont la géométrie simple est bien connue. On travaillera d'abord sans, puis avec la contrainte de positivité. On utilisera le code POLAIR avec une grille restreinte à la région Europe de l'ouest – Atlantique nord. Cette étape doit permettre de mieux définir les conditions d'application de la méthode et d'en circonscrire la précision.
- Reconstruction d'une source académique à échelle planétaire. On reproduira le résultat précédent en utilisant cette fois un maillage planétaire et, probablement, le code MOCAGE. L'objectif de cette phase sera de développer les méthodes nécessaires à la gestion de deux problèmes pratiques. D'une part le temps caractéristique des échanges inter hémisphériques est de deux ans. Cela signifie que chaque rétropanache contient encore, deux ans en arrière, un peu d'information. Il conviendra donc de voir comment cette information peut-être extraite en évitant de calculer les

rétropanaches sur des délais numériquement prohibitifs. D'autre part les réseaux de mesures produisent un flux continu de données. Il serait commode d'assimiler ces données sur une fenêtre de temps glissante qui intégrerait en permanence les nouvelles mesures et abandonnerait de plus anciennes.

- Reconstruction des sources réelles diffuses de CO et CH_4 à partir des bases de données disponibles sur les réseaux de stations au sol.

ETUDE DE LA CHIMIE DE L'OZONE DANS LA STRATOSPHERE

L'impact de l'activité humaine sur la composition de la stratosphère s'est manifesté de façon indubitable par la mise en évidence du trou d'ozone au printemps au-dessus de l'Antarctique à partir de 1985. Le rôle des chlorofluorocarbures (CFCs) inertes dans la troposphère mais pouvant être photolysés dans la stratosphère et conduire à la destruction d'ozone par des cycles impliquant les espèces actives du chlore (ClO , Cl , Cl_2O_2 ,...) a été clairement établi. Le Protocole de Montréal et ses amendements successifs ainsi que le respect de ce premier règlement international concernant l'environnement par une grande majorité des pays signataires, ont conduit à partir de 1996 à une stabilisation et maintenant à une diminution dans la troposphère des espèces sources les plus abondantes (comme CFC-11 et CFC-12).

Le maximum du chlore total dans la stratosphère semble avoir été atteint vers l'an 2000 avec une valeur de 3.8 ppb. Parmi les facteurs qui peuvent moduler les phénomènes de destruction d'ozone dans la stratosphère on peut citer: la modification de la dynamique atmosphérique globale qui peut accroître ou diminuer les échanges des composés halogénés entre les vortex polaires et les moyennes latitudes, l'évolution des composés NO_y qui selon le niveau d'altitude peuvent contribuer à détruire l'ozone ou à jouer un rôle tampon vis-à-vis des espèces chlorées et les modifications de la concentration et de la structure thermique de la haute troposphère/basse stratosphère (UT/LS), région qui détermine les échanges entre les deux compartiments.

Les questions scientifiques majeures pour l'étude de la stratosphère concernent donc l'observation, la compréhension et la modélisation de l'évolution de O_3 sur une échelle décennale:

- Quels sont les processus qui déterminent (et déterminent) les pertes chimiques de l'ozone stratosphérique ;
- Quelle est l'origine de la modulation interannuelle de la destruction de l'ozone par les phénomènes dynamiques et le changement de la composition chimique de l'UT/LS
- Quels sont les forçages radiatifs et les rétro actions qui déterminent la structure thermique et la dynamique de la basse stratosphère (pour la formation des PSCs en particulier) ;
- Comment quantifier l'impact des échanges troposphère-stratosphère sur la chimie atmosphérique et le climat (augmentation de H_2O et diminution de T stratosphérique).

L'étude de la stratosphère et de son interaction avec le climat repose aussi en grande partie sur les observations satellitaires qui sont les seules à pouvoir fournir une vision globale. L'analyse du transport atmosphérique à petite échelle horizontale (20 à 100 km) a connu un essor important lors de ces dernières années. Cela a permis entre autre l'étude des barrières dynamiques en stratosphère tels que le bord du vortex polaire et la barrière sub-tropicale. Les concentrations d'un grand nombre d'espèces chimiques sont mesurées dans la stratosphère et la haute troposphère par des satellites emportant des instruments de mesures de ces espèces. Il s'agit en premier lieu d'ENVISAT (instruments GOMOS, SCIAMACHY, MIPAS) mais aussi de ODIN, SAGE III et bientôt ADEOS II. La communauté scientifique se prépare à utiliser ces données afin, en particulier, de tester la bonne connaissance des mécanismes photochimiques dans différentes conditions. La communauté française dispose, de plus, d'instruments sous ballons stratosphériques qui outre leur grande importance dans les campagnes de validation apportent des mesures complémentaires aux mesures satellitaires : espèces non mesurées par les satellites, évolution diurne des espèces, mesures in situ. La répartition spatio-temporelle des observations satellitaires est souvent très inhomogène et il est difficile d'obtenir des coïncidences spatio-temporelles parfaites entre les mesures satellitaires et celles de validation (mesures avions, ballons et sol). De plus l'inhomogénéité des mesures satellitaires rend difficile l'utilisation de ces données dans des études sur les processus atmosphériques ou climatologiques pour lesquelles on a besoin de disposer de champs 3D homogènes globaux des variables atmosphériques au lieu de simples séries de mesures successives. L'assimilation de données chimiques dans les modèles de chimie transport permet une interpolation "intelligente" des données satellitaires sur des grilles régulières permettant de les comparer de façon cohérente avec d'autres mesures, sol en particulier. Elle peut permettre aussi d'effectuer des études plus fines de la photochimie des espèces chimiques en combinant de manière optimale des mesures et des simulations de modèles. Plusieurs des espèces impliquées dans la chimie de l'ozone possèdent des temps de vie inférieurs à quelques jours. L'objectif du projet est tout d'abord de valider la mesure de ces espèces pour un instrument satellite donné à partir de la mesure d'autres instruments sous ballons ou à bord d'autres satellites. L'ensemble de ces mesures sera ensuite utilisé pour tester la connaissance de la photochimie relativement rapide de la stratosphère et de la haute troposphère dans différentes conditions d'altitude, de latitude, de saison et de composition particulière de l'atmosphère (aérosols dont le contenu pourrait varier au cours de la mission ENVISAT, suies, cirrus, PSC). Les travaux entamés au LPCE ont été poursuivis. Une première étude avait permis de démontrer l'intérêt de l'assimilation de données chimiques pour la validation des mesures satellitaires à partir de mesures effectuées sous ballons stratosphériques (NO_2 et O_3 dans ce cas). Dans cette étude, il a tout d'abord été vérifié que des mesures de l'instrument AMON et des instruments satellitaires

HALOE et SAGE 2, bien que réalisées à plusieurs jours d'intervalle, étaient situées dans les mêmes masses d'air. Le code d'assimilation a alors recherché le meilleur accord entre l'ensemble des mesures et les concentrations des espèces chimiques simulées par le modèle, aux différents points de mesures. Cette étude a été présentée en détail à l'ESTEC en mai 2001 (Taupin et al., 2001). Le modèle lagrangien avec le code d'assimilation développé au NCAR par Khattatov a été utilisé pour cette étude.

La première application réelle de l'utilisation de l'assimilation pour la validation des instruments satellitaires à partir de ce même code et des mesures ballons a été faite dans le cadre de la validation des instruments dédiés à l'aéronomie du satellite ODIN. Les résultats du vol de SPIRALE du 20 juin 2001 depuis Gap ont été utilisés à cet effet. Les profils de concentration des espèces suivantes ont été obtenus : O_3 , CO , N_2O , NO_2 , HNO_3 , COF_2 , HOCl , H_2O_2 . Cette étude n'a pas encore été menée à son terme, car du au problèmes qu'a rencontré ODIN en 2001, les mesures de ce satellite ne sont pas encore disponibles. Une étude a cependant été faite pour tenter de valider la mesure par SPIRALE de molécules effectuées pour la première fois au cours de ce vol (HNO_3 , HOCl et H_2O_2 en particulier). A partir de trajectoires de dix jours calculées dans le passé et vers le futur depuis les profils mesurés par SPIRALE, des recherches de coïncidences avec le satellites SAGE 2 ont été effectuées. La pertinence des coïncidences trouvées avec les trajectoires a été vérifiée par comparaison des histoires thermiques et de la vorticité potentielle des mesures satellites et des trajectoires calculées. Les mesures SPIRALE de O_3 , NO_2 , HNO_3 , HOCl , H_2O_2 et les mesures de O_3 et NO_2 de SAGE II ont été assimilées. Le résultat de l'assimilation montre un bon accord entre les mesures de O_3 et de NO_2 par SAGE et SPIRALE. La comparaison entre les autres mesures de SPIRALE (HNO_3 , HOCl , H_2O_2) et les résultats de simulations montrent également un bon accord. Les nouvelles mesures de SPIRALE semblent donc consistantes avec les résultats de simulations. Cette étude sera reprise quand les mesures d'ODIN seront disponibles.

Parallèlement à ces études utilisant le code d'assimilation développé au NCAR, deux modules d'assimilation de données chimiques couplés au modèle lagrangien MiPLaSMO ont été développées. Ces modules permettent l'assimilation des mesures chimiques le long des trajectoires par analyse variationnelle ou analyse séquentielle (Fig. 3).

L'analyse variationnelle permet de minimiser l'écart entre les mesures chimiques et les résultats du modèle et de s'affranchir des problèmes liés à l'initialisation chimique du modèle. Par itération l'écart mesure/modèle est réduit à l'aide d'une procédure de minimisation qui recalcule à chaque itération les concentrations initiales nécessaires afin d'obtenir le meilleur accord entre les mesures et les résultats du modèle. Cette méthode est utilisée pour assimiler des données chimiques éparses le long de la trajectoire. L'analyse séquentielle permet de même de minimiser l'écart entre les mesures chimiques et les résultats du modèle. Cependant elle n'opère pas sur la correction des concentrations chimiques initiales. C'est une méthode

numérique de type prédicteur-correcteur. Chaque fois qu'une mesure existe le long de la trajectoire les concentrations calculées aux pas de temps précédent sont corrigées. Cette méthode est utilisée pour assimiler des données chimiques nombreuses le long de la trajectoire. Ces deux techniques d'assimilation sont schématisées ci-dessous.

Des travaux ont débuté sur l'assimilation séquentielle des données SMR sur ODIN dans le modèle 3D de chimie-transport ROSE/MSDOL en choisissant la campagne de validation ballon d'août 2001 à Kiruna. Les champs obtenus ont été comparés avec les mesures de GOME et de POAM III. L'accord obtenu est satisfaisant compte tenu des barres d'erreur des mesures SMR. Nous avons mis au point le schéma d'assimilation de profils d'ozone dans le modèle d'advection isentrope à haute résolution horizontale MIMOSA. Ce schéma a été validé en assimilant des données d'ozone MLS sur UARS (Fierli et al.2002). Les données MLS ont été assimilées entre 30 et 90°N sur le niveau 550 K en février 1996.

La concentration d'ozone initialement élevée dans le vortex, converge rapidement vers une valeur faible. Après une période d'initialisation du modèle, l'erreur de prédiction décroît régulièrement pendant la période pendant laquelle on assimile des données.

L'année 2003 sera consacrée à la validation des données des instruments de mesures d'espèces chimiques stratosphériques des satellites ENVISAT (GOMOS, SCHIAMACHY, MIPAS) et ODIN. Cette validation sera effectuée à l'aide :

- des mesures des instruments sous ballon SPIRALE, AMON et SALOMON et si possible des autres instruments sous ballon utilisés pour la validation: LPMA, SAOZ, SDLA, TRIPLE et MIPAS. Les mesures ballons ont été effectuées depuis Gap en juin 2001, Aire sur l'Adour en septembre 2002 et depuis Kiruna en Août 2002. D'autres le seront en janvier et février 2003 depuis Kiruna.
- du modèle lagrangien MiPLASMO avec ses codes d'assimilation séquentielle et variationnelle.

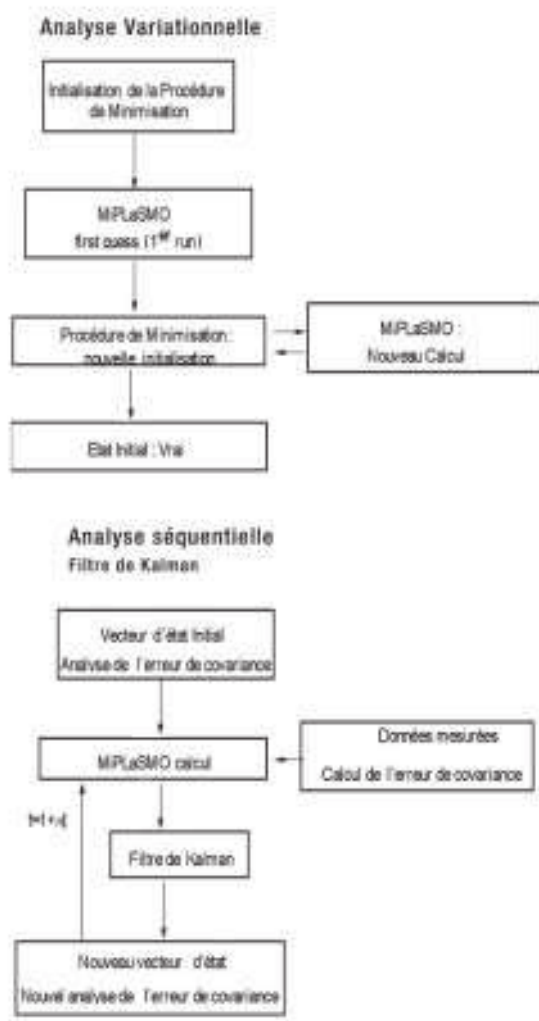


Fig. n° 3 : Schéma de principe des 2 types d'assimilation variationnelle et séquentielle dans le modèle lagrangien MIPLASMO

Ce travail est en fait un complément aux études de validation directe de ces instruments. Cette validation directe est obtenue quand les mesures sous-ballon et satellitaire sont effectuées en coïncidence spatiale et temporelle. C'est évidemment la meilleure méthode de validation quand elle est possible. Les coïncidences ne sont cependant pas toujours parfaites et même parfois complètement inexistantes. C'est le cas en particulier du vol de SPIRALE de septembre 2002 dont l'objectif était principalement la validation des mesures de MIPAS. Les conditions de rendez-vous étaient excellentes mais MIPAS a dû être arrêté. Cet arrêt a été décidé avant que les mesures de SPIRALE n'aient pu avoir lieu mais l'information de cet arrêt n'a été connue qu'après son lancement. Seules des mesures de MIPAS, au plus tôt, 2 jours avant le lancement de SPIRALE sont disponibles à proximité d'Aire sur l'Adour. L'étude que l'on propose doit contribuer à la validation des mesures satellitaires mais est dépend du modèle. Elle consiste à rechercher le plus de mesures possibles d'espèces chimiques depuis des ballons ou des satellites, en différents lieux géographiques, jours et heures locales, mais dans une même masse d'air. Des trajectoires ou des faisceaux de trajectoires de masses d'air seront calculées vers l'avant ou vers l'arrière depuis, principalement, les lieux et dates de mesures des instruments SPIRALE, SALOMON et AMON en septembre 2002 et en janvier 2003. L'assimilation de ces données sera effectuée séquentiellement ou de façon variationnelle sur ces trajectoires à l'aide du modèle lagrangien. L'objectif de ce travail est de vérifier la consistance des mesures et des modèles. En cas d'accord on peut admettre que modèles et mesures sont validées. En cas de désaccord, il faut poursuivre l'étude pour rechercher si ce sont les modèles (calculs de trajectoires ou chimie) ou les mesures (en général ou celles d'un instrument en particulier) qui sont défectueuses.

D'autre part, le projet OZVAL sera poursuivi en 2003 autour de 2 axes :

- 1) Un axe semi-opérationnel dans lequel sera poursuivi de l'assimilation séquentielle des données SMR sur ODIN et début de l'assimilation des données GOMOS et MIPAS sur ENVISAT dans le modèle 3D de chimie-transport ROSE/MSDOL. Les champs 3D seront produits sur les périodes des campagnes de validation ballon des instruments et mis à la disposition des scientifiques sur la base de données ETHER ;
- 2) Un axe recherche dans lequel sera entrepris l'assimilation séquentielle des données SMR sur ODIN et GOMOS et MIPAS sur ENVISAT dans le modèle d'advection isentrope à haute résolution horizontale MIMOSA pour les mêmes périodes de validation ;
 - l'optimisation des paramètres du schéma d'assimilation (distance de corrélation, taux de croissance de l'erreur modèle, erreur de représentativité des mesures) par comparaison entre l'erreur des prévisions du modèle et la différence observations moins prévisions ;
 - l'assimilation de produits de niveau 1B (nombre de molécules le long de la ligne de visée pour GOMOS et température de brillance pour SMR) dans le modèle ROSE/MSDOL ;
 - l'assimilation variationnelle des données de SMR, GOMOS et MIPAS dans un modèle de chimie le long d'une trajectoire pour l'étude de la photochimie rapide (oxydes d'azote, ClO, ...).

ASPECTS METHODOLOGIQUES POUR L'ASSIMILATION DE DONNEES VARIATIONNELLES

Les travaux à caractère plus méthodologique ont porté sur l'application des méthodes variationnelles à l'assimilation de données pour les CTMs. Les principaux axes de travail ont porté sur :

- L'utilisation des approches 4D var pour l'assimilation de données chimiques.
La génération de l'adjoint de POLAIR a été effectuée avec le différentiateur automatique ODYSSEE de l'INRIA. POLAIR avait été développé afin de permettre une automatisation maximale dans un contexte le plus modulaire (multi-mécanismes chimiques via un préprocesseur). Ceci permet en pratique de pouvoir disposer du modèle adjoint pour n'importe quel mécanisme chimique. Le résultat est un modèle adjoint validé par des tests classiques (ex : tests du gradient), qui présente de bonnes performances en terme de mémoire et de CPU (un ratio de 5 à 8 avec le direct). Des pré-runs académiques (expériences synthétiques 1D) ont été réalisés avec cet outil couplé avec un algorithme de minimisation classique (BFGS) : modélisation inverse d'émission dans un CTM, assimilation de colonnes. Ce modèle adjoint peut être mis à la disposition d'autres équipes.
- La sensibilité des résultats de l'assimilation aux paramètres du système et réseau optimal de mesures.
Les travaux ont porté sur la sensibilité des résultats aux

divers paramètres du système d'assimilations (ex : observations, position des capteurs, paramètres physiques supposés connus). Ceci met en œuvre, dans un contexte variationnel, les techniques dites du "second ordre". L'adjoint du second ordre de POLAIR est également généré automatiquement et permet de mener de telles études de sensibilité qui sont en cours sur des cas académiques. Ces approches sont notamment comparées aux approches de type SVD (Singular Value Decomposition).

Une réflexion a été menée sur l'impact du caractère multi-échelle des échelles de temps de la chimie atmosphérique sur le système d'assimilation, en distinguant notamment le comportement des espèces lentes des espèces rapides. L'aspect variationnel sera prochainement appliqué au cas multiphasique (aérosols). Dans un premier temps, le modèle utilisé sera un modèle de type modal qui représente la distribution granulométrique sous forme d'une combinaison linéaire de fonctions log-normales en un paramètre de taille (exemple : le diamètre). Des tests synthétiques seront effectués dans le contexte multiphasique. Sur un plan purement numérique, le différentiateur automatique sera ODYSSEE ou TAPENADE (nouveau projet INRIA).

D'autre part des études seront effectuées sur les aspects suivants :

- Réduction de modèles et assimilation de données.
Les modèles de chimie atmosphérique mettent en œuvre un grand nombre de degrés de liberté. Dans le prolongement de la réflexion menée sur l'impact des échelles de temps, le couplage de méthodes de réduction avec le 4D var va être effectué : on citera notamment les méthodes de type HDMR (look-up table par troncature d'expansion multivariée) et de type EOF (réduction de l'espace de contrôle). Ce point est essentiel pour la suite des applications.
- Analyse du second ordre.
Les recherches sur les analyses de second ordre vont être appliquées, les outils et la méthodologie étant en place, à un cas académique d'optimisation d'un réseau d'observation pour une application à la qualité de l'air.
- Assimilation directe de radiance.
Ce travail a été initié sur un exemple synthétique dans le spectre visible. L'objectif sera de comparer une approche découplée et une approche directe (calcul d'une colonne par inversion d'un modèle radiatif puis assimilation d'une colonne dans un CTM versus assimilation directe des données radiatives dans un modèle couplé CTM/radiatif).

Dans l'état actuel des réflexions, le choix entre une approche séquentielle et une approche variationnelle n'est pas encore complètement effectué. En effet, l'approche séquentielle a le mérite d'être plus simple à mettre en œuvre mais elle nécessite pour que la comparaison soit pertinente que la définition des covariances d'erreur soit faite de manière cohérente entre les deux approches.

L'approche variationnelle est de ce point de vue plus aisée mais elle nécessite de disposer d'un modèle adjoint pour le code radiatif, ce que nous n'avons pas au jour d'aujourd'hui. Si l'approche variationnelle était finalement préférée, un modèle radiatif simplifié (ne simulant par exemple que les pics d'absorption de l'application effectivement visée, à savoir typiquement pour l'ozone troposphérique) serait d'abord adjointisé avant dans un second temps d'aller vers un modèle plus complexe.

REFERENCES

- Brasseur G. P., D. A. Hauglustaine, S. Walters, P. J. Rasch, J.-F. Müller, C. Granier, and X. X. Tie, MOZART: A global chemical transport model for ozone and related chemical tracers, Part 1, Model description, *J. Geophys. Res.*, 103, D21, 28,265-28,289, 1998.
- Clerbaux C., J. Hadji-Lazaro, D. Hauglustaine, G. Mégie, B. Khattatov and J.-F. Lamarque, Assimilation of CO satellite measurements using a three-dimensional chemistry-transport model, *J. Geophys. Res.*, 106, (D14), 15,385, 2001.
- Drummond, J.R., Measurements of the pollution in the troposphere (MOPITT), The use of EOS for studies of Atmospheric Physics, edited by J.C. Gille and G. Visconti, pp 77-101, Noth-Holland, New York, 1992.
- Edwards D. P., J.-F. Lamarque, J.-L. Attié, L. K. Emmons, A. Richter, J.-P. Cammas, L. V. Lyjak, G. L. Francis, J. C. Gille, J. R. Drummond and the NCAR MOPITT Team, Tropospheric ozone over the tropical atlantic: the satellite perspective., *J. Geophys. Res.*, in press, 2003.
- Fierli, F., A. Hauchecorne, S. Bekki, B. Theodore and O. Fanton d'Andon, Data assimilation of stratospheric ozone using a high-resolution transport model, *Geophys. Res. Lett.*, 29(10), 10.1029/2001GL014272, 2002.
- Hadji-Lazaro J., C. Clerbaux, S. Turquety, D. Hauglustaine, B. Khattatov, Trace gases concentrations retrieval from measurements provided by a nadir looking Fourier transform spectrometer, in *Optical Spectroscopic Techniques, Remote Sensing and Instrumentation for Atmospheric and Space Research IV*, A. M. Larar, M. G. Mlynczak Editors, *Proceedings of SPIE Vol.4485*, 1-8, 2002.
- Hao, W. M., and M.-H. Liu, Spatial and temporal distribution of tropical biomass burning. *Global Biogeochem. J.*, 8, 495-503, 1994.
- Hauglustaine D., G. P. Brasseur, S. Walters, P. J. Rasch, J.-F. Müller, L. K. Emmons, and M. A. Carroll, MOZART : A global chemical transport model for ozone and related chemical tracers, Part 2, Model results and evaluation, *J. Geophys. Res.*, 103, D21, 28,291-28,335, 1998.
- Hourdin, F. and J.-P. Issartel, Sub-surface nuclear test monitoring through the CTBT xenon network, *Geophys. Res. Letters*, 27, 15, 2245-2248, August 1, 2000.
- Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC), *Climate Change 2001: The Scientific Basis*, Cambridge Univ. Press, 2001.
- Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC), *Climate Change 2001: The Scientific Basis*, Cambridge Univ. Press, 2001.
- Khattatov, B. V., J.-F. Lamarque, L. V. Lyjak, R. Menard, P. Levelt, X. Tie, G. P. Brasseur, J. C. Gille, Assimilation of satellite observations of chemical species in global chemistry-transport model, *J. Geophys. Res.*, 105, 29,135-29,144, 2000.
- Lafore, J. P., J. Stein, N. Asencio, P. Bougeault, V. Ducrocq, J. Duron, C. Fischer, P. Hereil, P. Mascart, J. P. Pinty, J. L. Redelsperger, E. Richard, and J. Vila-Guerau de Arellano, The Meso-NH Atmospheric Simulation System. Part I: Adiabatic formulation and control simulations. *Annales Geophysicae*, 16, 90-10, 1998.
- Lamarque, J.-F., B. V. Khattatov, J. C. Gille, and G. P. Brasseur, Assimilation of Measurement of Air Pollution from Space (MAPS) CO in a three-dimensional model, *J. Geophys. Res.*, 104 (D21), 26,209-26,218, 1999.
- Muller, J.-F., and G. Brasseur, IMAGES: A three-dimensional chemical transport model of the global troposphere, *J. Geophys. Res.*, 100, 16,445-16,490, 1995.
- Pétron G., C. Granier, B. Khattatov B., J.F. Lamarque, V. Yudin, J.F. Müller, and J. Gille, Inverse modeling of carbon monoxide surface emissions using NOAA-CMDL network observations, *J. Geophys. Res.*, sous presse, 2002.
- Suhre K., V. Crassier, C. Mari, R. Rosset, D.W. Johnson, S. Osborne, R. Wood, M.O. Andreae, B. Bandy, T.S. Bates, S. Businger, C. Gerbig, F. Raes, J. Rudolph.: Chemistry and aerosols in the marine boundary layer: 1-D modelling of the three ACE-2 Lagrangian experiments, *Atmos. Env.*, 34, 5079-5094, 2000.
- Taupin F.G., M. Pirre, S. Bekki, B. Khattatov and B. Knudsen, On the use of variational assimilation on trajectories for validation of Envisat atmospheric short-lived species measurements, *ESTEC pre-Launch Workshop on the Atmospheric Chemistry Validation of Envisat (ACVE)*, 2001.
- Turquety, S., J. Hadji-Lazaro, and C. Clerbaux, First satellite ozone distributions retrieved from nadir high-resolution, infrared spectra, *Geophys. Res. Letters*, soumis, 2002.
- Velders, G. J. M., C. Granier, R. W. Portmann, K. Pfeilsticker, M. Wenig, T. Wagner, U. Platt, A. Richter, and J. P. Burrows, Global NO₂ columns: comparing model calculations with GOME measurements, *J. Geophys. Res.*, 106, 12643-12660, 2001.
- World Meteorological Organization (WMO), *Global Ozone Research and Monitoring Project, Scientific assessment of ozone depletion: 1998*, Rep.44, Geneva, 1999