

50^e ANNIVERSAIRE DE L'INSTITUT D'AÉRONOMIE SPATIALE DE BELGIQUE:

De la nécessité des observations en surface pour l'étude des changements globaux.

P. C. Simon, M. De Mazière, M. Van Roozendael,
J.-C. Lambert
Institut d'Aéronomie Spatiale de Belgique

Depuis plusieurs décennies, l'un des grands défis des sciences de l'environnement concerne les changements globaux du système Terre, d'origines naturelles et anthropiques. Les émissions des composés halogénés responsables de l'appauvrissement de la couche d'ozone stratosphérique observé depuis la fin des années soixante-dix, l'augmentation des polluants primaires précurseurs de la production de l'ozone troposphérique, l'augmentation des concentrations de gaz à effet de serre tels que le dioxyde de carbone et de méthane depuis le début de l'ère industrielle et les changements du bilan radiatif de la Terre qui en résultent, reflètent l'impact croissant de l'activité humaine sur l'atmosphère terrestre à l'échelle mondiale.

Les observations à long terme sont une condition indispensable pour fournir les bases scientifiques nécessaires à la compréhension des processus atmosphériques et de leurs conséquences sur les changements globaux que nous subissons. Pour assurer la continuité à long terme et une vue synoptique de ces changements globaux, il est nécessaire de coordonner et de combiner des observations complémentaires obtenues à partir de différentes plates-formes (au sol, en ballon et en avion, et depuis l'espace) pour fournir un ensemble de données fiables afin de faire des prédictions crédibles

à court et long terme par la modélisation et les outils d'assimilation des données d'observation. Elles doivent aussi être transformées en informations accessibles à un large éventail d'utilisateurs, y compris les organisations environnementales, le monde industriel et financier, les décideurs politiques et le citoyen, pour vérifier l'efficacité des réglementations définies par les traités et protocoles internationaux.

La nécessité de mesures coordonnées afin d'étudier les phénomènes atmosphériques à l'échelle mondiale fut déjà reconnue en 1953 lors de la préparation de l'Année géophysique internationale (AGI) qui se déroula en 1957 et 1958 avec, comme Secrétaire général, feu le Baron Marcel Nicolet, fondateur de l'Institut d'Aéronomie spatiale de Belgique. Cette initiative concrétisait enfin la vision synoptique nécessaire à l'étude de l'atmosphère. Pour la première fois des scientifiques du monde entier se sont concertés pour effectuer des observations coordonnées. Le premier réseau international pour la mesure et la surveillance de la couche d'ozone fut déployé, comprenant plus de 50 spectrophotomètres Dobson, y compris sur le continent antarctique. Cet instrument conçu en 1924 avait déjà été utilisé entre autres à Arosa (Alpes suisses) depuis 1926, produisant la plus longue

série temporelle de données sur l'ozone. L'Organisation météorologique mondiale (OMM) eut la responsabilité de la surveillance de l'ozone avec la création dans le cadre de l'AGI du Système mondial d'observation de l'ozone (*the Global Ozone Observing System, GO₃OS*).

Simultanément, l'URSS lança le 4 octobre 1957 le premier satellite artificiel autour de la Terre, initiant l'ère spatiale, ouvrant de nouvelles perspectives pour l'observation de l'atmosphère terrestre au cours des décennies suivantes.

Toutefois, la détermination des tendances à long terme fut difficile à réaliser en raison de la faible couverture géographique des instruments au sol. Les observations sont principalement concentrées aux latitudes moyennes de l'hémisphère Nord, la couverture géographique de la zone équatoriale et de l'hémisphère Sud étant très réduite.

La surveillance à partir de l'espace offre par contre une très bonne couverture globale. Les mesures spatiales du contenu atmosphérique total d'ozone ont été entreprises par la NASA au début des années 1970 avec le *Backscattered Ultraviolet (BUV) spectrometer* à bord du satellite Nimbus 4, mesurant le rayonnement solaire rétrodiffusé par l'atmosphère de

la Terre. Le satellite Nimbus 7, avec un instrument similaire, le spectromètre *Solar Backscattered Ultraviolet* (SBUV), et le *Total Ozone Monitoring Spectrometer* (TOMS), a fourni des données en continu à partir de novembre 1978, mais les valeurs quantitatives déduites des observations ont fait l'objet d'une controverse en raison de la dégradation des instruments en orbite, ce qui a conduit à de grandes incertitudes sur ces mesures de l'ozone.

La découverte du trou d'ozone en 1985 grâce à un instrument Dobson installé à Halley Bay par le *British Antarctic Survey* a révélé l'importance des réseaux terrestres. En effet, les données anormalement faibles au-dessus de l'Antarctique produites par TOMS n'ont pas été analysées par décision a priori de la NASA.

Ces circonstances ont mis l'accent sur l'importance de l'étalonnage et de la validation des senseurs en orbite par des mesures indépendantes. De plus, l'émergence d'instruments et de techniques plus sophistiqués pour la mesure de l'ozone et des constituants minoritaires de l'atmosphère tels que le lidar, la spectrométrie par absorption différentielle dans l'UV et le visible, la spectrométrie à haute résolution dans l'infrarouge avec les

interféromètres à transformée de Fourier, les radiomètres à micro-ondes... ont permis d'élaborer un nouveau concept de réseau d'observation en surface. Les premières bases ont été définies en 1986 à Boulder (Colorado, USA) et finalisées à Genève (Suisse) en 1989. Le Réseau pour la détection des changements stratosphériques (*Network for the Detection of Stratospheric Changes*, NDSC) a officiellement débuté le 1^{er} janvier 1991.

Dès le début, la Belgique a joué un rôle important dans le réseau, avec la participation active de l'Université de Liège (ULg) à la station scientifique internationale du Jungfraujoch (Alpes suisses) qui a toujours été une station clé du réseau en raison de sa série historique d'observations atmosphériques dans l'infrarouge effectuées depuis les années 1950. Rodolphe Zander (ULg) a d'ailleurs été le premier co-président du NDSC.

En 2006, le NDSC a changé de nom pour devenir le réseau pour la détection des changements de la composition de l'atmosphère (*Network for the Detection of Atmospheric Composition Change*, NDACC) afin de souligner l'élargissement de ses priorités englobant la détection des changements de la composition atmosphérique

et de leurs impacts à la fois sur la stratosphère et la troposphère, ainsi que la détermination des liens entre les changements de la composition atmosphérique et ceux relatifs aux climats.

Ce réseau a été approuvé par le Programme des Nations Unies pour l'Environnement (PNUE) et la Commission internationale de l'ozone (IO₃C) de l'Association internationale de Météorologie et des Sciences de l'Atmosphère (*International Association of Meteorology and Atmospheric Sciences*, IAMAS) et par l'Organisation météorologique mondiale (OMM) comme un contributeur majeur au programme de « Veille de l'Atmosphère Globale » (*Global Atmospheric Watch*, GAW) de l'OMM.

L'observation de l'atmosphère s'étend de la troposphère « libre » à la mésosphère. Le réseau comprend plus de 70 stations réparties dans les deux régions polaires, aux latitudes moyennes dans les deux hémisphères et sous les tropiques. Ces stations sont gérées par des institutions appartenant à plus de 20 pays. Les observations et les recherches associées sont financées à partir de fonds nationaux et occasionnellement par les programmes-cadres de la Commission européenne. Les principaux objectifs répondent aux priorités suivantes :

- Étudier la variabilité temporelle et spatiale de la composition et de la structure de l'atmosphère afin d'assurer la détection rapide et la surveillance à long terme des changements de la composition de la stratosphère et de la troposphère supérieure, et comprendre les causes de ces changements ;
- Établir des liens entre l'évolution de l'ozone stratosphé-

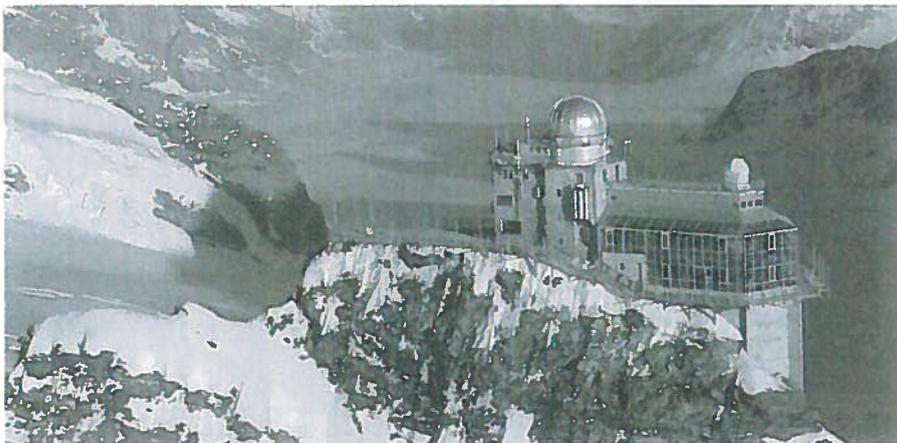


Fig. 1 : La station scientifique internationale du Jungfraujoch (altitude: 3 471 m, latitude: 46,6° N)

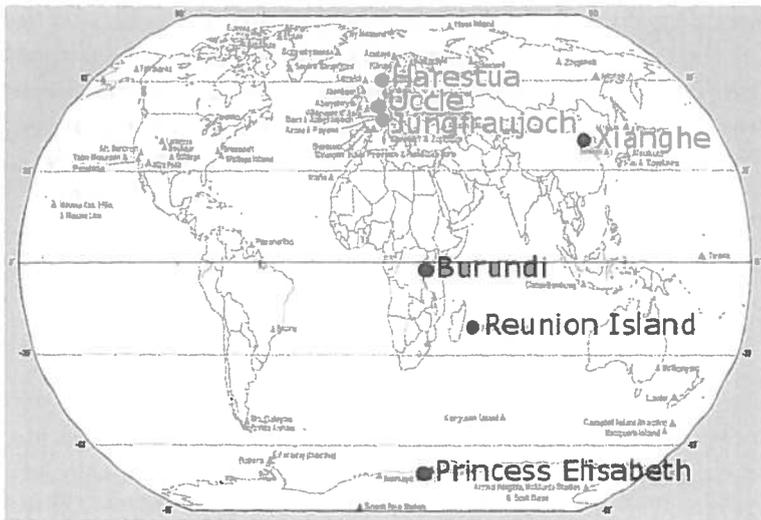


Fig. 2 : Carte des stations du NDACC (2014). Les stations où l'IASB est présent sont en gras.

rique, le rayonnement ultraviolet au sol, la chimie de la troposphère et le climat;

- Assurer les validations des observations par satellites et procéder aux mesures complémentaires ;
- Contribuer aux campagnes d'observation scientifiques axées sur l'étude des processus atmosphériques ;
- Tester et perfectionner les modèles théoriques multidimensionnels de l'atmosphère.

Un effort considérable a été consacré aux campagnes d'intercomparaison des différentes techniques instrumentales utilisées dans le cadre du réseau et à la participation aux validations des données obtenues par satellite, afin d'améliorer la cohérence entre les différentes mesures et d'assurer leur continuité à long terme.

Aujourd'hui, ce réseau, outre le soutien aux recherches relatives au système Terre et de son évolution, contribue également aux évaluations scientifiques sur l'environnement comme, par exemple, l'évaluation scientifique

de l'appauvrissement de l'ozone dans le cadre du Programme des Nations Unies pour l'Environnement et de l'Organisation Météorologique Mondiale (PNUE - OMM), le rapport du Groupe Intergouvernemental d'experts sur l'Évolution du Climat (GIEC), et à l'élaboration des politiques environnementales nationales et internationales.

La Commission Européenne a fourni une aide substantielle aux stations européennes du réseau NDACC/NDACC dans les années 1990 grâce à plusieurs projets coordonnés par l'IASB.

Enfin, les observations à partir de plusieurs sites sont effectuées soit dans le cadre de programmes nationaux ou en réponse à des campagnes spécifiques, comme par exemple celles coordonnées par la Commission Européenne relatives à la diminution de l'ozone stratosphérique pendant les hivers en Arctique, de 1992 à 2001.

Les priorités du NDACC sont basées sur la continuité de la surveillance à partir du sol de l'ozone, des constituants minoritaires et des traceurs dynamiques, et sur la validation indépendante des instruments à bord de satellites. Par

exemple, la validation de l'instrument de l'ESA, le «Global Ozone Monitoring Experiment (GOME) sur le satellite ERS-2 lancé en 1995 repose dans une large mesure sur le réseau NDACC et plus particulièrement sur les mesures spectroscopiques UV-visible. L'instrument SCIAMACHY à bord du satellite ENVISAT de l'ESA, lancé en mars 2002 et opérationnel jusqu'en 2012, a pleinement bénéficié des études corrélatives du NDACC. D'autres instruments comme l'Ozone Monitoring Instrument (OMI, KNMI/NASA) à bord du satellite Aura (NASA) et GOME-2 à bord du satellite MetOp (EUMETSAT) ont été et sont encore validés grâce au réseau NDACC.

La structure opérationnelle du NDACC se compose du Comité directeur et des équipes scientifiques, qui sont structurées en groupes de travail associés à chaque type d'instruments, comme les groupes de travail « infrarouge » et « UV-visible », par thème scientifique, par activité spécifique comme la validation des satellites ou la modélisation, et des groupes ad hoc comme par exemple, le groupe de travail sur les stratégies futures de mesure.

Actuellement, Martine De Mazière, après avoir dirigé le groupe de travail « infrarouge », en est la co-présidente. Michel Van Roozendaal dirige le groupe



Fig. 3 : L'instrument SAOZ à la station internationale du Jungfraujoch

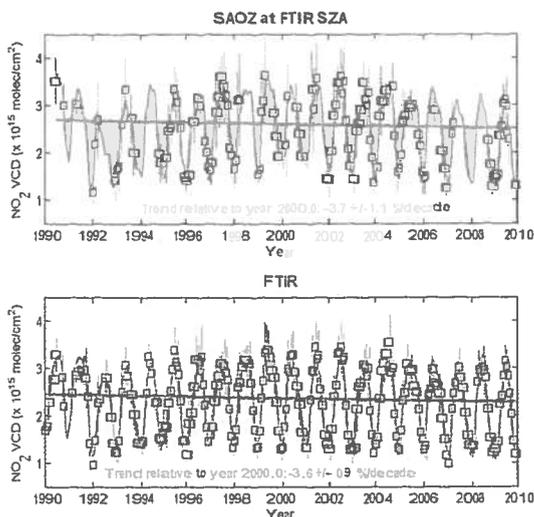


Fig. 4 : Contenu total en NO_2 obtenues par le SAOZ et le spectromètre par Transformée de Fourier (FTIR) de 1990 à 2010 à la station internationale du Jungfraujoch avec les tendances à long terme.



Fig. 6 : L'instrument DOAS de l'IASB à la station de l'OHP (France, latitude: 44°N)

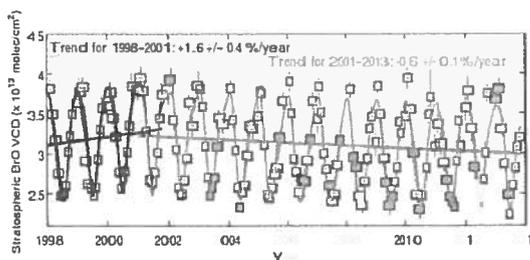


Fig. 7 : Mesure du contenu total stratosphérique en BrO à Harestua (60°N), depuis 1998 montrant la tendance négative depuis 2001.

de travail « UV-visible » et Jean-Christopher Lambert, le groupe de travail sur les satellites. Paul C. Simon est membre ex-officio du Comité directeur en sa qualité d'ancien co-président.

CHOCHO, IO, O_3 , SO_2 et les aérosols.

Les instruments du réseau sont validés et contrôlés selon des protocoles approuvés par la communauté scientifique. En outre, des

L'IASB contribue au NDACC avec des observations systématiques des constituants atmosphériques sur cinq sites utilisant la spectroscopie différentielle d'absorption dans l'UV et le visible (*Differential Optical Absorption Spectroscopy*, DOAS).

Développé dans la fin des années quatre-vingt, la spectroscopie différentielle d'absorption UV-visible utilise la lumière diffusée au zénith par le ciel lors des levés et couchers du Soleil.

Cette technique permet des mesures automatiques et quotidiennes de l'ozone stratosphérique et de constituants minoritaires comme le NO_2 , le BrO et l' OCIO . Plus récemment, cette méthode spectroscopique a été étendue à la surveillance de la composition de la troposphère par le biais d'une géométrie d'observation permettant à l'instrument de pointer suivant différents angles d'élévation entre l'horizon et le zénith. Cette technique, appelée Multi-AXis (MAX-) DOAS, fournit, en plus des constituants stratosphériques déjà cités, la mesure des concentrations d'un certain nombre de constituants troposphériques tels que BrO , NO_2 , HCHO , CHOCHO , IO, O_3 , SO_2 et les aérosols.

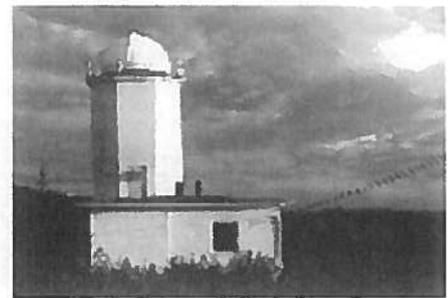


Fig. 5 : La station à Harestua (Norvège, latitude: 60°N .)

campagnes de comparaison sont organisées tous les deux ans pour améliorer les techniques de mesures et le traitement des données scientifiques et permettre à de nouveaux groupes de recherche de participer au réseau.

L'implication de l'IASB aux mesures UV-visible de la stratosphère a débuté en 1990 avec l'installation d'un instrument du type DOAS appelé « Système d'Analyse par Observation Zénithale » (SAOZ), à la station scientifique internationale du Jungfraujoch (Van Roozendaal et al., 1994), grâce à la volonté de Jean-Pierre Pommereau (LATMOS, France), concepteur de cet instrument. Toujours en activité aujourd'hui, ce SAOZ a fourni des séries temporelles d'observations d'ozone et de NO_2 pendant plus de deux décennies, permettant ainsi l'analyse des changements à long terme de ces constituants (Hendrick et al., 2012). Au cours des années quatre-vingt-dix, deux autres sites situés respectivement à Harestua, (Norvège, 60°N) et à l'Observatoire de Haute Provence (OHP, France, 44°N) ont été mis en œuvre. L'accent a été mis sur la surveillance de l'évolution de la quantité de brome stratosphérique. Celle-ci a présenté un maximum en 2001-2002 montrant l'impact positif du Protocole de Montréal régulant l'utilisation des composés bromés particulièrement nuisibles à la couche d'ozone (Hendrick et al, 2008). En 2008, une version améliorée

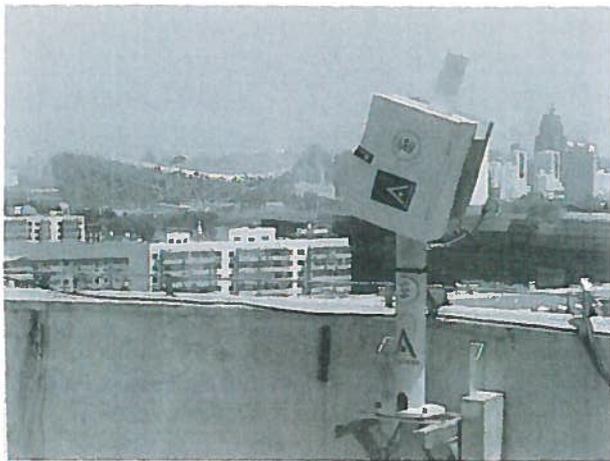


Fig. 8 : L'instrument MAX-DOAS installé sur le toit de l'Institut de Physique de l'Atmosphère à Pékin lors des jeux olympiques de 2008.

de l'instrument MAX-DOAS a été conçue et installée à Pékin (Chine) pour surveiller la qualité de l'air pendant les Jeux olympiques. Cet instrument a ensuite été déplacé vers le site périurbain de Xianghe (Est de Pékin) pour une étude à long terme de la pollution troposphérique en collaboration avec l'Institut de Physique Atmosphérique de l'Académie des Sciences de Chine. Grâce à ce système, la variabilité des aérosols et des principaux polluants, comme le NO_2 , SO_2 , HCHO, et HONO a été caractérisée de 2008 à 2013 (Clémer et al, 2010; Hendrick et al, 2014; Wang et al., 2014). En 2010, un système similaire a été installé à la station scientifique internationale du Jungfraujoch et, en 2013, un MAX-DOAS a été déployé à Bujumbura au Burundi.

Outre les activités de surveillance, l'IASB a également joué un rôle important dans le développe-

ment de méthodes et d'outils d'analyse des données. En particulier l'IASB a conçu le logiciel d'analyse QDOAS (<http://uv-vis.aeronomie.be/software/QDOAS/index.php>) qui constitue de nos jours un outil de référence dans la communauté UV-Visible et qui a été distribué au niveau international dans plus de 100 universités et groupes de recherche.

L'IASB participe également à l'acquisition de données et l'analyse des constituants atmosphériques par spectroscopie d'absorption infrarouge, en étroite collaboration avec l'Université de Liège. La station scientifique internationale du Jungfraujoch a été l'une des premières stations du NDACC équipée d'un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier (FTIR). L'IASB a commencé sa collaboration avec l'ULg en 1990 par l'exploitation des données infrarouges. Dans le même temps, l'IASB a développé ses propres algorithmes de traitement de données et a participé à une campagne de comparaison des algorithmes organisée par le groupe de travail « infrarouge » du NDACC en 1994.

En mai 2001, l'IASB a organisé un atelier international sur les méthodes inverses et les algorithmes d'inversion. Cela a conduit à deux codes standards, un pour la déter-

mination des colonnes totales et l'autre pour la détermination des profils verticaux des constituants minoritaires de la stratosphère, O_3 , HCl, HF, ClONO_2 , HNO_3 , CH_4 , N_2O , CO, C_2H_6 , et HCFC-22, qui constituent les dix constituants obligatoires à déterminer par spectroscopie infrarouge au sein du NDACC.

Vers 2000, l'IASB a acquis un instrument FTIR pour l'installer à l'Île de La Réunion, le seul site subtropical du réseau NDACC dans l'hémisphère sud. Les premières mesures ont été réalisées au cours d'une campagne en 2002, en collaboration avec l'Université Libre de Bruxelles. Depuis, plusieurs campagnes ont été menées (Senten et al, 2008; Vigouroux et al, 2009). Depuis mai 2009, l'instrument est utilisé de façon permanente.

La technique FTIR permet de détecter et de quantifier bien d'autres molécules. Par exemple, à l'île de La Réunion, il a été possible d'accumuler des séries temporelles de nombreux composés organiques volatils, comme le formaldéhyde (HCHO), le méthanol (CH_3OH), l'acétylène (C_2H_2), l'acide formique (HCOOH), ... (Vigouroux et al., 2009; Vigouroux et al., 2012). Ces données ont été utilisées, entre autres, à contribuer à l'évaluation des modèles couplé chimie-transport de la troposphère (Stavrakou et al., 2011; Stavrakou et al., 2012; Paulot et al., 2011) et pour la validation des données satel-



Fig. 9 : La station de Maïdo (Île de La Réunion, 21°S) à 2200 m d'altitude où est installé le FTIR de l'IASB.

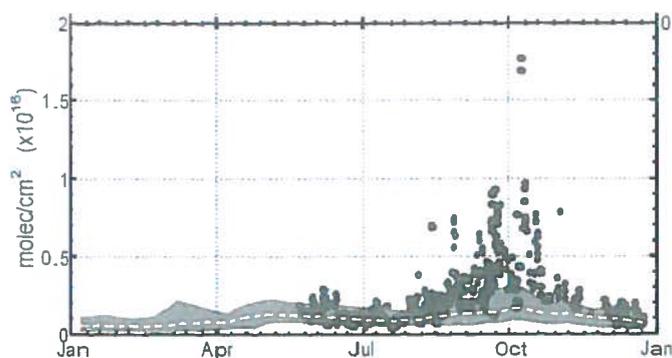


Fig. 10 : Résultats des mesures obtenues à l'Île de la Réunion lors des campagnes de 2004, 2007 et 2009. Comparaison entre les valeurs mesurées (points) et le modèle pour l'acide formique. La plage des valeurs produites par le modèle est représentée par la zone ombrée et sa moyenne par la ligne brisée.

litaires (Duflot et al., 2013). Ils ont également souligné l'importance de l'impact des émissions des feux de biomasse au-dessus de l'Afrique et même de l'Amérique du Sud à l'Île de La Réunion (Duflot et al., 2010; Vigouroux et al., 2012).

Le projet *Time series of Upper Free Troposphere observations from a European ground-based*

de constituants. Cet effort a été poursuivi jusqu'en 2013 pour les dix constituants obligatoires énumérés ci-dessus. Ce travail est essentiel pour harmoniser les résultats d'observations pour l'ensemble des sites du réseau afin de maintenir sa cohérence.

Ces développements au sein du groupe de travail « infrarouge » du NDACC contribuent de ma-

FTIR network (UFTIR) financé par la Commission Européenne de 2003 à 2006, avait pour objectif une meilleure caractérisation et l'harmonisation des algorithmes de détermination des profils verticaux pour un certain nombre

nière significative à l'évaluation des tendances de la distribution verticale de l'ozone. (Vigouroux et al., 2008) dont les résultats sont déjà pris en compte par les évaluations scientifiques sur la destruction de l'ozone de 2010 et 2014 du PNUE - OMM.

L'équipe de l'IASB joue également un rôle important dans le développement de méthodologies et d'outils pour l'évaluation des incertitudes associés aux données du NDACC. En 2014, la dernière version du code standard pour l'analyse des données infrarouges, comprenant des routines développées par l'IASB, a été mis à disposition de la communauté scientifique internationale.

Actuellement, l'IASB coordonne le projet de la Commission Européenne FP7 NORS (*Demonstration Network Of ground-based Remote Sensing Observations in support of the Copernicus Atmospheric Service*). L'objectif principal du projet

Références :

- Clémer, K., M. Van Roozendaal, C. Fayt, F. Hendrick, C. Hermans, G. Pinardi, R. J. D. Spurr, P. Wang, and M. De Mazière (2010), Multiple wavelength retrieval of tropospheric aerosol optical properties from MAXDOAS measurements in Beijing, *Atmos. Meas. Tech.*, 3(4), 863–878.
- Duflot, V., Dils, B., Baray, J.L., De Mazière, M., Attié, J.L., Vanhaelewyn, G., Senten, C., Vigouroux, C., Clain, G., Delmas, R., Analysis of the origin of the distribution of CO in the subtropical southern Indian Ocean, *J. Geophys. Res.*, 115, D22106, doi:10.1029/2010JD013994, 2010.
- Duflot, V., Hurtmans, D., Clarisse, L., R'honi, Y., Vigouroux, C., De Mazière, M., Mahieu, E., Servais, C., Clerbaux, C., and Coheur, P.-F.: Measurements of hydrogen cyanide (HCN) and acetylene (C₂H₂) from the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI), *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 917–925 (doi:10.5194/amt-6-917-2013), 2013.
- Hendrick, F., P. V. Johnston, M. De Mazière, C. Fayt, C. Hermans, K. Kreher, N. Theys, A. Thomas, and M. Van Roozendaal (2008), One-decade trend analysis of stratospheric BrO over Harestua (60°N) and Lauder (45°S) reveals a decline, *Geophys. Res. Lett.*, 35(14), L14801, doi:10.1029/2008GL034154.
- Hendrick, F. et al. (2012), Analysis of stratospheric NO₂ trends above Jungfraujoch using ground-based UV-visible, FTIR, and satellite nadir observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 12(18), 8851–8864, doi:10.5194/acp-12-8851-2012.
- Hendrick, F. et al. (2014), Four years of ground-based MAX-DOAS observations of HONO and NO₂ in the Beijing area, *Atmos. Chem. Phys.*, 14(2), 765–781, doi:10.5194/acp-14-765-2014.
- Paulot, F., D. Wunch, J. D. Crounse, G. C. Toon, D. B. Millet, P. F. DeCarlo, C. Vigouroux, N. M. Deutscher, G. González Abad, J. Notholt, T. Warneke, J. W. Hannigan, C. Warneke, J. A. de Gouw, E. J. Dunlea, M. De Mazière, D. W. T. Griffith, P. Bernath, J. L. Jimenez, and P. O. Wennberg, Importance of secondary sources in the atmospheric budgets of formic and acetic acids, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 1989–2013, 2011.

NORS est d'améliorer la qualité et la validation des produits de modélisation délivrés par le Service atmosphérique Copernicus (CAS, précédemment connu sous l'acronyme de GAS, Service atmosphérique GMES), en utilisant des données de télé-détection indépendantes obtenues par le NDACC. Ce projet qui a débuté en 2011 comprend quatre des principales techniques instrumentales du NDACC, le lidar ozone, la radiométrie micro-ondes, la spectrométrie infrarouge (FTIR) et la spectroscopie UV-visible (DOAS).

Les besoins actuels pour l'observation du système Terre sont en

pleine expansion, et des expériences complexes avec une large gamme d'instruments permettant des observations sur une échelle globale tant spatiale que temporelle sont indispensables. La combinaison des données d'observations au sol, en satellite et en avion ou ballons joue un rôle essentiel dans la mise en place d'une capacité de surveillance à long terme et pour l'étude de processus relatifs aux changements globaux. L'importance d'un réseau d'observation de l'atmosphère comme le NDACC est reconnue par la communauté scientifique internationale : elle permet de produire des données cohérentes et systématiques,

avec une précision et une assurance-qualité clairement documentée, capable de traiter les questions sensibles relatives aux changements globaux. Ce genre de réseau est aussi indispensable pour contraindre les modèles qui permettent de prédire l'avenir de notre planète avec des incertitudes les plus faibles possibles.

Site web du NDACC : <http://www.ndacc.org>

Senten, C., M. De Mazière, B. Dils, C. Hermans, M. Kruglanski, E. Neefs, F. Scolas, A. C. Vandaele, G. Vanhaelewyn, C. Vigouroux, M. Carleer, P. F. Coheur, S. Fally, B. Barret, J. L. Baray, R. Delmas, J. Leveau, J. M. Metzger, E. Mahieu, C. Boone, K. A. Walker, P. F. Bernath, and K. Strong, Technical Note: Ground-based FTIR measurements at Île de La Réunion: Observations, error analysis and comparisons with satellite data, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 3483–3508, 2008.

Stavrakou, T., A. Guenther, A. Razavi, L. Clarisse, C. Clerbaux, P.-F. Coheur, D. Hurtmans, F. Karagulian, M. De Mazière, C. Vigouroux, C. Amelynck, N. Schoon, Q. Laffineur, B. Heinesch, M. Aubinet, C. Rinsland, and J.-F. Müller, First space-based derivation of the global methanol emission fluxes, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 4873–4898, 2011.

Stavrakou, T., J.-F. Müller, J. Peeters, A. Razavi, L. Clarisse, C. Clerbaux, P.-F. Coheur, D. Hurtmans, M. De Mazière, C. Vigouroux, N. Deutscher, D. Griffith, N. Jones, C. Paton-Walsh, Satellite Evidence for a Large Source of Formic Acid From Boreal and Tropical Forests, *Nature Geosciences*, doi:10.1038/ngeo1354, 5, 26–30, 2012.

Van Roozendael, M., M. De Mazière, and P. C. Simon (1994), Ground-based visible measurements at the Jungfraujoch station since 1990, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, 52(3–4), 231–240, doi:[http://dx.doi.org/10.1016/0022-4073\(94\)90153-8](http://dx.doi.org/10.1016/0022-4073(94)90153-8).

Vigouroux, C., M. De Mazière, P. Demoulin, C. Servais, F. Hase, T. Blumenstock, I. Kramer, M. Schneider, J. Mellqvist, A. Strandberg, V. Velazco, J. Notholt, R. Sussmann, W. Stremme, A. Rockmann, T. Gardiner, M. Coleman, and P. Woods, Evaluation of tropospheric and stratospheric ozone trends over Western Europe from ground-based FTIR network observations, *Atmos. Chem. Phys.*, Special Issue 'Results from the European project UFTIR, Time series of Upper Free Troposphere observations from a European ground-based FTIR network', 8, 6865–6886, 2008.

Vigouroux, C., F. Hendrick, T. Stavrakou, B. Dils, I. De Smedt, C. Hermans, A. Merlaud, F. Scolas, C. Senten, G. Vanhaelewyn, S. Fally, M. Carleer, J.-M. Metzger, J.-F. Müller, M. Van Roozendael, and M. De Mazière, Ground-based FTIR and MAX-DOAS observations of formaldehyde at Réunion Island and comparisons with satellite and model data, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 9523–9544, 2009.

Vigouroux, C., T. Stavrakou, C. Whaley, B. Dils, V. Duflo, C. Hermans, N. Kumps, J.-M. Metzger, F. Scolas, G. Vanhaelewyn, J.-F. Müller, D. B. A. Jones, Q. Li, and M. De Mazière, Time-series of biomass burning products (HCN, C₂H₆, C₂H₂, CH₃OH, HCOOH and HCHO) from ground-based FTIR measurements at Reunion Island (21°S, 55°E) and comparisons with model simulations, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 10367–10385, 2012.

Wang, T., F. Hendrick, P. Wang, G. Tang, K. Clémer, H. Yu, C. Fayt, C. Hermans, C. Gielen, G. Pinardi, N. Theys, H. Brenot, and M. Van Roozendael, Evaluation of tropospheric SO₂ retrieved from MAX-DOAS measurements in Xianghe, China, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 14, 6501–6536, 2014.