

Paul C. SIMON

Institut d'Aéronomie Spatiale de Belgique, Bruxelles

1. INTRODUCTION

L'atmosphère de la terre est le siège de nombreux processus aéronomiques qui déterminent sa composition chimique, son bilan énergétique et son comportement dynamique. Ces processus dépendent directement du rayonnement solaire et de son absorption dans l'atmosphère. Toute la photochimie atmosphérique est initiée par les processus de photodissociation provoqués par le rayonnement ultraviolet du Soleil. La composition chimique de l'atmosphère dépend également d'une manière critique de la nature des molécules qui, émises à la surface du globe, soit par des processus géo- et biochimiques naturels soit par les activités humaines, sont transportées aux altitudes supérieures par les composantes dynamiques de l'atmosphère.

L'étude scientifique de notre environnement atmosphérique terrestre en général et de l'atmosphère moyenne en particulier requiert de ce fait des données fondamentales telles que la distribution spectrale de l'énergie émise par le Soleil dans l'ultraviolet et les sections efficaces d'absorption des molécules atmosphériques. Ces données permettent de quantifier la pénétration du rayonnement solaire dans l'atmosphère et les processus de photodissociation.

II. LES PROCESSUS DE PHOTODISSOCIATION

La réaction de photodissociation d'une molécule AB peut être symbolisée de la manière suivante :



où $h\nu$ représente une quantité d'énergie radiative. La vitesse de photodissociation de la molécule AB est donnée par :

$$\frac{d[AB]}{dt} = - J_{AB}[AB] \quad (2)$$

où [AB] est la concentration exprimée en molécules par cm^3 . La fréquence de photodissociation J_{AB} est exprimée en sec^{-1} . La valeur inverse de J_{AB} représente le temps de vie de la molécule AB par rapport à sa destruction par photodissociation. Le taux de photodissociation, dans le cas de l'atmosphère, dépend du nombre total de photons solaires $q(\lambda, z, \chi)$ pour une longueur d'onde λ , une altitude z et un angle zénithal χ , de la section efficace d'absorption $\sigma_i(\lambda)$ du constituant i et du rendement quantique de photodissociation $\epsilon_i(\lambda)$ pour le constituant i . Il est donné par la relation suivante :

$$J_i(z, \chi) = \int_{\lambda} \epsilon_i(\lambda) \sigma_i(\lambda) q(\lambda, z, \chi) d\lambda \quad (3)$$

La quantité de photons à une altitude donnée dépend de l'éclairement énergétique du soleil (flux solaire) au confin de l'atmosphère, q_{∞} , et de son absorption dans l'atmosphère qui obéit à la loi de Bouguer-Beer-Lambert :

$$q(\lambda, z, \chi) = q_{\infty} e^{-\tau(\lambda, z, \chi)} \quad (4)$$

où $\tau(\lambda, z, \chi)$ est l'épaisseur optique totale de l'atmosphère, qui est définie de la manière suivante :

$$\tau(\lambda) = \Sigma \tau_i(\lambda) = \Sigma \sigma_i(\lambda) N_i(z) \text{Ch}(\chi) \quad (5)$$

où $\tau_i(\lambda)$ est l'épaisseur optique due au constituant i , $N_i(z)$ est la concentration intégrée du constituant i au-dessus de l'altitude z et $\text{Ch}(\chi)$ la fonction de Chapman pour l'angle zénithal χ (voir plus loin).

L'étude des processus de photodissociation dans l'atmosphère requiert donc la connaissance du flux solaire extraterrestre, des sections efficaces d'absorption des constituants atmosphériques, de leurs concentrations en fonction de l'altitude et du rendement quantique des réactions de photodissociation.

III. LE RAYONNEMENT SOLAIRE

Le soleil peut être considéré comme une source lumineuse sphérique de $1,4 \times 10^6$ km de diamètre, située à $1,5 \times 10^8$ km de la Terre. Il a un angle apparent de 32 min d'arc. L'éclairement énergétique exprimé en W/m^2 est en première approximation équivalent à celui d'un corps noir à 6000 K. Dans le domaine infrarouge et radioélectrique, le spectre solaire est essentiellement un continuum avec des raies d'émission dans le domaine centimétrique des longueurs d'ondes. Les structures d'absorption (raies de Fraunhofer) dues aux constituants de l'atmosphère solaire apparaissent aux longueurs d'ondes inférieures à 1000 nm pour disparaître à nouveau en-dessous de 180 nm environ. Les raies d'émission d'origine chromosphérique et coronale caractérisent alors le spectre solaire. Dans l'ultraviolet, le continuum du spectre solaire ne peut plus être représenté par un corps noir de 6000 K qui surestime largement

l'éclairement énergétique du soleil. De fait, vers 160 nm, le continuum solaire est équivalent à un corps noir de 4400 K.

Le Soleil constitue la principale source d'énergie pour le système Terre-atmosphère dans son ensemble et son rayonnement qui s'étend des rayons X aux ondes centimétriques possède son maximum d'énergie dans le domaine visible de son spectre. La quantité totale d'énergie reçue au sommet de l'atmosphère terrestre est de 1370 W.m^{-2} . Compte tenu de la géométrie de la terre, le flux moyen incident est réduit au quart de cette valeur. Trente pourcent environ sont réfléchis vers l'espace, ce qui laisse 230 W.m^{-2} du rayonnement solaire absorbé par le système Terre-atmosphère dans son ensemble. Seuls les domaines spectraux correspondant à l'ultraviolet et à l'infrarouge sont fortement absorbés par les constituants atmosphériques.

L'observation du Soleil remonte à plusieurs siècles mais les rayonnements ultraviolet et infrarouge furent seulement mis en évidence au XIXe siècle respectivement par Ritter et Herschel. La première observation spectrale à haute résolution entre 298 et 733 nm date de 1885. Toutefois, il a fallu attendre 1946 pour observer le premier spectre ultraviolet du soleil jusqu'à 210 nm grâce aux fusées V-2 capturées aux Allemands à l'issue de la 2e guerre mondiale. Ce lancement a également mis en évidence l'extension de la couche d'ozone jusqu'à une altitude de l'ordre de 55 km. Depuis lors, les observations se sont multipliées, permettant d'étendre notre connaissance du spectre solaire jusqu'à l'ultraviolet extrême et les rayons X. La raie Lyman α de l'hydrogène a notamment été observée dès 1952. Les fusées sondes et les satellites artificiels ont été abondamment utilisés mais aussi les ballons stratosphériques et, dans une moindre mesure, les avions. Des observations dans le domaine visible ont aussi été réalisées à partir d'observatoires de haute altitude.

Durant le dernier cycle solaire 21 (1975-1986) plusieurs mesures de l'éclairement ultraviolet du soleil ont été réalisées à partir de ballons stratosphériques, de fusées sondes, de satellites et de la navette spatiale. A l'exception des observations en ballons stratosphériques qui sont limitées, pour une altitude de 40 km à la fenêtre optique autour de 200-210 nm et aux longueurs supérieures à 270 nm, les autres observations se placent en dehors de l'atmosphère moyenne et, de ce fait, permettent une mesure directe du rayonnement solaire, depuis Lyman α (121.6 nm) jusque 400 nm, sans correction pour son absorption résiduelle par l'atmosphère.

Les observations spatiales n'ont pas encore apporté de réponse univoque sur la distribution spectrale de l'énergie solaire et sur ses variations temporelles, principalement dans l'ultraviolet. Des désaccords de l'ordre de 30 pourcent subsistent entre 135 et 185 nm pour les valeurs du flux solaire correspondant à une activité modérée, proche du minimum, du Soleil. Les variations au cours

du cycle de 11 ans peuvent atteindre un facteur 1.6 pour la raie d'émission Lyman α de l'hydrogène (121.6 nm). Dans le domaine spectral compris entre 175 et 240 nm, les variations temporelles sont quantitativement beaucoup moins élevées (< 10%) et sont de ce fait difficiles à mesurer vu les problèmes de stabilité radiométrique à long terme des instruments en orbite. Aux longueurs d'ondes supérieures à 200 nm la précision absolue actuellement atteinte est de l'ordre de ± 3.5 à $\pm 5\%$. Les variations temporelles au-delà de 240 nm sont inférieures à 3% et sont, de ce fait, encore plus difficiles à mesurer. Dans le visible, les meilleures observations effectuées à partir d'un observatoire de haute altitude par Neckel et Labs (1984) ont une précision absolue de $\pm 1\%$.

La figure 1 représente la distribution spectrale de l'énergie solaire dans l'ultraviolet intégrée sur une bande passante de 1 nm, depuis Lyman α jusque 400 nm. Les différentes données d'observations obtenues depuis le début du cycle 21 sont analysées ci-après.

La raie d'émission Lyman α de l'hydrogène (121,6 nm)

Cette raie d'émission d'origine chromosphérique qui est la plus intense dans le spectre ultraviolet du Soleil contribue aux processus de photodissociation de l'oxygène moléculaire et de la vapeur d'eau dans la mésosphère qui contrôlent à ces altitudes le bilan de l'ozone par la production des radicaux hydroxyles, et aux processus de photoionisation du monoxyde d'azote, à l'origine de la région D de l'ionosphère.

En général, une valeur de $3 \times 10^{11} \text{ h}\nu \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$ a été adoptée pour la modélisation de la mésosphère, pour des conditions de faible activité solaire. Les observations les plus récentes ont été obtenues par le spectromètre ultraviolet solaire à bord du satellite "Solar Mesosphere Explorer" (SME) qui a donné, à ce jour, la plus longue série temporelle de mesures depuis octobre 1981 jusqu'en avril 1989 (7 1/2 ans), correspondant à la phase descendante du cycle d'activité solaire 21 et au début de la phase ascendante du cycle 22 (Barth et al., 1990). Quelques mesures ponctuelles par fusées sondes et lors de la mission Spacelab 2 de la navette spatiale ont également été réalisées au cours du dernier cycle solaire (voir tableau 1). Ce tableau illustre les désaccords importants qui subsistent entre les mesures les plus récentes malgré l'amélioration importante de la précision absolue obtenue pour la plupart des dernières observations du fait de l'utilisation du rayonnement synchrotron comme étalon radiométrique. Les observations du satellite SME donnent une valeur minimum de $2,6 \times 10^{11} \text{ h}\nu \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$ avec une variation à long terme d'un facteur 1,6. La corrélation avec les mesures faites au sol de la raie K du CaII à 393.4 nm publiée par White et al. (1990) donne au valeur moyenne maximum de $4 \times 10^{11} \text{ h}\nu \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$ pour le maximum du cycle solaire 21 et pour 1989, ce qui confirme la variation de 1,6 entre le minimum d'activité solaire et les deux derniers maxima (cycles 21 et 22). Cette variation à long terme pourrait dépendre du cycle considéré suivant son "niveau" d'activité.

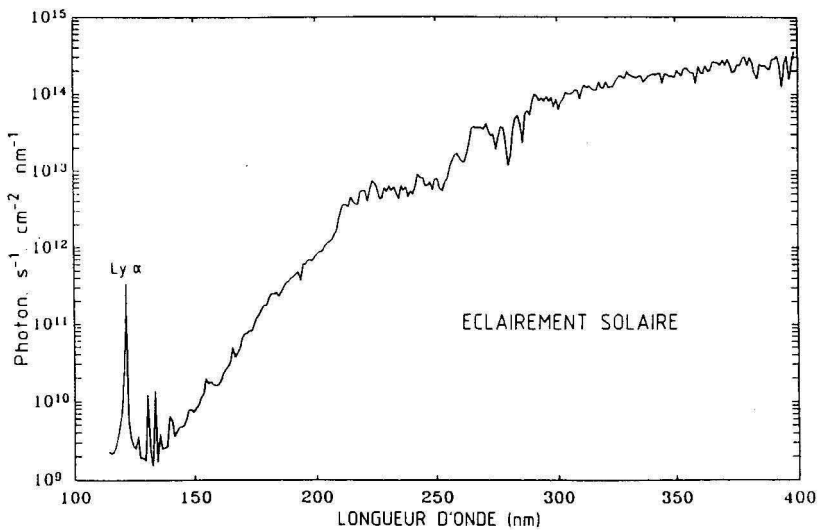


Fig. 1 Spectre solaire de 120 à 400 nm, intégré sur des intervalles de 1 nm.

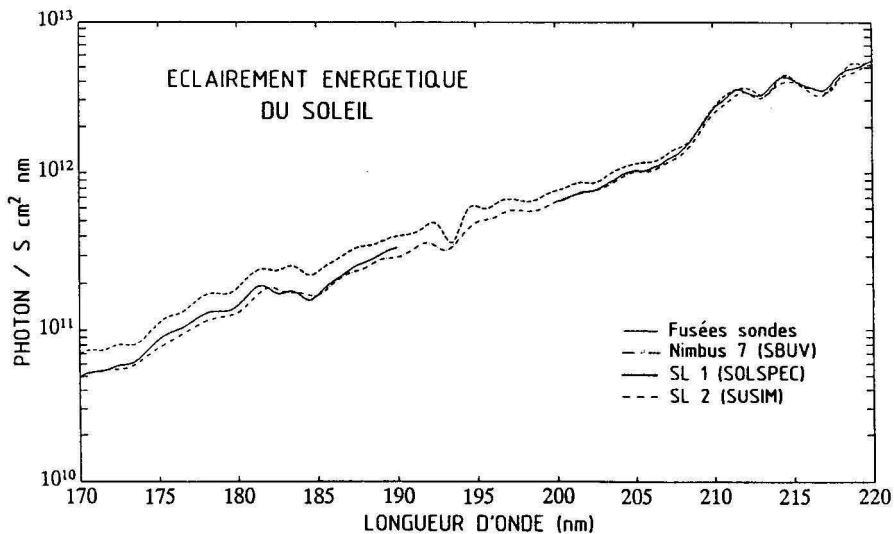


Fig. 2 Comparaison des éclairements énergétiques du soleil observés entre 170 et 220 nm.

Une discussion plus détaillée de l'émission Lyman α de Soleil est actuellement en cours de publication (Simon et Tobiska, 1991).

L'intervalle de longueur d'onde 135-175 nm

Ce domaine de longueur d'onde est responsable de la photodissociation de l'oxygène moléculaire dans la thermosphère inférieure. De ce fait, il détermine le bilan thermique ainsi que la production de l'oxygène atomique qui est transporté vers la mésosphère. Il fixe donc les conditions aéronomiques à la limite supérieure de l'atmosphère moyenne.

Le tableau 2 reprend les observations ponctuelles effectuées durant le cycle solaire 21 avec les valeurs d'éclairement intégrées entre 135 et 175 nm et les erreurs associées.

Des désaccords importants subsistent malgré les améliorations des procédures d'étalonnage. Les valeurs maxima obtenues en 1979 et 1980 sont actuellement controversées car elles sont en contradiction avec les variations à long terme observées par SME dans ce même domaine de longueur d'onde. D'autre part, les observations faites lors de la mission Spacelab 2, proches du minimum d'activité solaire entre les cycles 21 et 22, donnent une valeur intégrée 35

TABLEAU 1. Observations de la raie d'émission solaire de l'hydrogène

Date	Eclairement à 1 UA (10^{11} hv/s. cm ²)	Flux radioélectrique à 10,7 cm, à 1 UA 10^{-22} W/m ² . Hz	Précision absolue
28/07/75 ^x	2.20	76	\pm 20%
18/02/76 ^x	3.70	70	\pm 20%
09/03/77 ^x	4.28	80	\pm 20%
05/06/79 ⁺	4.98	230	\pm 12%
15/07/80 ⁺	5.50	218	\pm 8%
15/05/82 ⁺	3.24	142	\pm 8%
12/01/83 ⁺	3.01	135	\pm 25%
25/07/83 ⁺	2.69	137	\pm 8%
03/08/85 [*]	3.79	79	\pm 3.5%

Références :

x Rottman (1981), fusées sondes

+ Mount et Rottman (1985), fusées sondes

* Van Hoosier et al. (1988), SUSIM, Spacelab 2

TABLEAU 2. Eclairage énergétique du Soleil intégré entre 135 et 175 nm observé pendant le cycle 21

Date	Flux à 10,7 cm à 1UA	Eclairage $10^{11} \text{ h}\nu/\text{s}\cdot\text{cm}^2$	Précision absolu pourcent	Reference
28/07/75	76	8.2	\pm 24	Rottman (1981)
18/02/76	70	10.0	\pm 24	Rottman (1981)
09/03/77	80	10.0	\pm 24	Rottman (1981)
16/11/78	129	(8.0)*	\pm 8	Mentall et al. (1985)
05/06/79	230	15.0	\pm 12	Mount et al. (1980)
22/05/80	277	(8.4)*	\pm 13	Mentall et al. (1985)
15/07/80	218	14.0	\pm 13	Mount et Rottman (1983)
16/10/81	303	(6.7)*	\pm 5	Mentall et al. (1985)
17/05/82	142	8.0	\pm 8	Mount et Rottman (1983)
25/07/83	137	7.2	\pm 8	Mount et Rottman (1985)
03/08/85	79	12.5	\pm 3.5	Van Hoosier et al. (1988)

* d'après Nicolet et Kennes (1988).

De fait, les valeurs pour les longueurs d'onde inférieures à 150 nm n'ont pas été publiées par Mentall et al. (1985).

+ unité : $10^{-22} \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{Hz}^{-1}$.

pourcent plus élevée que la moyenne entre les observations effectuées en fusée sonde en mai 1982 et juillet 1983, malgré leur précision absolue de \pm 3,5 pourcent.

Il en résulte que la valeur absolue de l'éclairage énergétique du soleil entre 135 et 175 nm reste actuellement mal connue et que de nouvelles mesures sont indispensables.

L'intervalle de longueur d'onde 175-200 nm

Ce domaine de longueur d'onde correspond au domaine d'absorption des bandes de Schumann-Runge de l'oxygène moléculaire et contribue à sa photodissociation dans la mésosphère supérieure.

Les observations faites pendant le cycle solaire 21 sont reprises dans le tableau 3 et illustrées par la figure 2 qui montrent les désaccords importants qui subsistent, spécialement entre 175 et 180 nm où la déviation standard atteint 13 pourcent. Ceci peut s'expliquer par le fait que cet intervalle requiert des types différents de détecteurs dont la réponse spectrale varie rapidement avec la longueur d'onde, ce qui rend l'étalonnage radiométrique plus critique.

Il est donc indispensable de prévoir des instruments permettant de résoudre les incertitudes de ce domaine de longueur d'onde.

L'intervalle de longueur d'onde 200-320 nm

Ce domaine de longueur d'onde concerne très spécifiquement le bilan de l'ozone stratosphérique qui est produit à partir de la photodissociation de l'oxygène moléculaire et qui est détruit par photodissociation. Il concerne aussi la photodissociation des halocarbures qui produit les atomes de chlore responsables de la destruction catalytique de l'ozone. Le domaine de 290 à 320 nm est aussi fondamental pour la stratosphère inférieure et pour la troposphère où de la photodissociation de l'ozone est la seule source des atomes d'oxygène excités $O(^1D)$, principal oxydant dans la stratosphère.

Les observations faites entre 200 et 320 nm ont été discutées en détail par Labs et al. (1987) en les comparant aux résultats de l'expérience "Spectre solaire" obtenus lors de la mission Spacelab 1. Ceux-ci ont été depuis lors confirmés par les résultats de la mission Spacelab 2 (VanHoosier et al., 1988). Pour la première, deux mesures indépendantes de l'éclairement ultraviolet du soleil sont en accord à quelques pourcent près pour le flux intégré dans le domaine 220-320 nm.

Les variations temporelles du rayonnement ultraviolet solaire

Le Soleil est une étoile variable qui présente un cycle d'activité de 11 ans bien connu et des variations séculaires dont les périodes sont controversées. De plus, sa période de rotation de 27 jours induit une modulation à court terme du rayonnement ultraviolet. Ces deux types de variations, 11 ans et 27 jours, qui ont des effets quantifiables sur la photochimie de l'atmosphère moyenne, ont été étudiés par les observations satellitaires. Les variations à long terme, de l'ordre de 6 pourcent à 205 nm, sont suffisamment importantes pour induire des variations dans le bilan de l'ozone aux environs de 40 km d'altitude. Elles sont encore quantitativement mal connues vu la difficulté de maintenir au niveau du pourcent la précision radiométrique, même relative, des instruments en orbite. De ce fait, les variations associées à la rotation de 27 jours du Soleil qui sont déterminées avec une meilleure précision, ont été utilisées pour valider les processus photochimiques de l'atmosphère moyenne même si leur impact est négligeable à long terme.

D'autre part, il faut tenir compte de la variation saisonnière du rayonnement solaire due à l'excentricité de l'orbite de la Terre autour du Soleil qui produit une variation de $\pm 3,3$ pourcent du rayonnement solaire dans tout le spectre, de janvier (maximum) à juillet (minimum).

TABLEAU 3. Eclairage énergétique du rayonnement solaire mesuré entre 175 et 200 nm.

	Eclairage énergétique (précision totale)		
	$10^{11} \text{ h}\nu \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$ (pourcent)		
	175-180 nm	180-190 nm	190-200 nm
07/11/78 (SBUV)	5.23 ($\pm 10\%$)	20.4 ($\pm 10\%$)	46.0 ($\pm 10\%$)
15/07/80 (LASP)	7.17 ($\pm 16\%$)	22.8 ($\pm 16\%$)	49.2 ($\pm 16\%$)
16/10/81 (GSFC)	5.62 ($\pm 5\%$)	23.1 ($\pm 18\%$)	44.4 ($\pm 18\%$)
17/05/82 (LASP)	6.37 ($\pm 8\%$)	20.9 ($\pm 8\%$)	50.7 ($\pm 8\%$)
25/07/83 (LASP)	5.73 ($\pm 8\%$)	20.3 ($\pm 15\%$)	50.4 ($\pm 8\%$)
07/12/83 (GSFC)	5.73 ($\pm 8\%$)	22.5 ($\pm 9\%$)	51.4 ($\pm 8\%$)
10/12/84 (GSFC)	5.44 ($\pm 4\%$)	21.8 ($\pm 9\%$)	51.8 ($\pm 8\%$)
03/08/85 (NRL)	7.69 ($\pm 3.5\%$)	28.2 ($\pm 3.5\%$)	57.1 ($\pm 3.5\%$)

Les variations à 27 jours

Les variations associées à la rotation du Soleil de 27 jours ont été étudiées par le "Solar Backscatter Ultraviolet (SBUV) Spectrometer" à bord du Satellite Nimbus 7 depuis novembre 1978 jusqu'au minimum d'activité entre les cycles 21 et 22 et par le spectrometer UV à bord de SME de 1982 à 1989.

La technique de filtrage par transformée de Fourier a été utilisée pour isoler des séries temporelles disponibles, la modulation de 27 jours en fonction de la longueur d'onde. Les résultats sont illustrés par les figures 3 et 4. La modulation la plus importante du cycle 21 se situe en aout 1982 avec une variation de 28 pourcent pour Lyman α et de 5 pourcent à 205 nm. Il faut cependant tenir compte que les variations de 27 jours sont habituellement plus faibles et différentes en amplitude d'une rotation à une autre. De ce fait les valeurs moyennes des variations à 27 jours sont relativement moins élevées que celles observées en aout 1982.

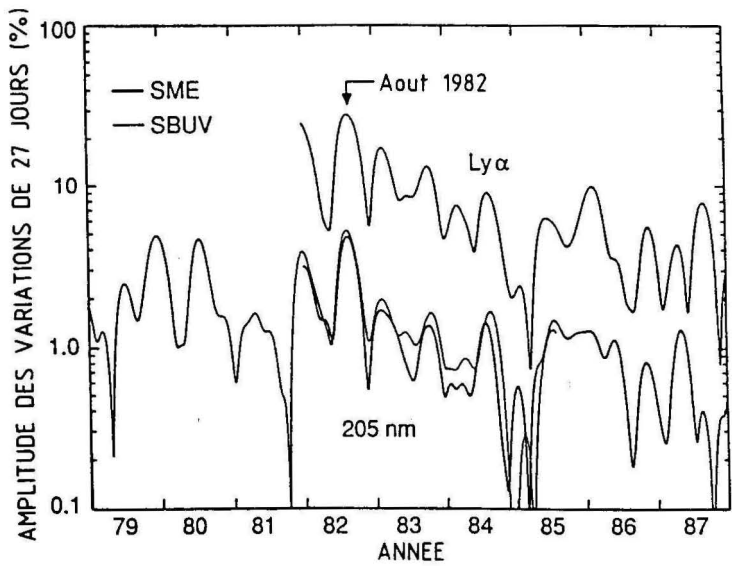


Fig. 3 Amplitudes des variations de 27 jours pour Lyman α et à 205 nm de 1979 à 1987 inclus à partir des observations de SME et SBUV.

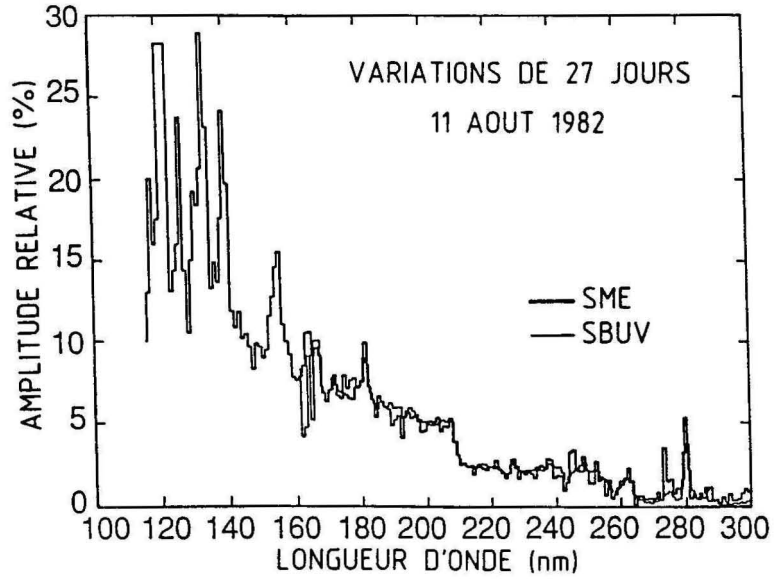


Fig. 4 Distribution spectrale des variations de 27 jours de 120 à 300 nm observées en aout 1986 par SME et SBUV.

Les variations associées du cycle d'activité de 11 ans

Les variations à long terme du rayonnement ultraviolet solaire sont quantitativement mal connues sauf pour Lyman α avec les observations du satellite SME et les corrélations avec des indices comme la raie K du CaII déjà mentionnée. Le problème essentiel est la dégradation des caractéristiques radiométriques des instruments solaires en orbite sur des périodes dépassant une année (ou même quelques mois).

Le spectromètre SBUV a montré une dégradation importante (plusieurs dizaines de pourcent en-dessous de 300 nm sur 6 ans). Afin de palier à cette difficulté, un indice basé sur le rapport des éclairissements mesurés dans la raie d'émission de Mg II à 280 nm et dans les ailes de longueurs d'onde très proches permet de s'affranchir de la dégradation instrumentale et de déduire de manière empirique des variations aux autres longueurs d'onde (Donnelly, 1991). Par contre, le satellite SME dont la dégradation pendant son temps de vie a pu être corrigée, a donné des séries temporelles qui sont, à ce jour, les plus fiables avec toutefois des incertitudes relativement élevées lorsque cette variation à long terme devient inférieure à 10 pourcent. La figure 5 illustre les résultats obtenus à partir des observations de SME pendant la phase descendante du cycle solaire 21 (1982-1986 inclus).

IV. L'ABSORPTION DU RAYONNEMENT SOLAIRE DANS L'ATMOSPHERE

La pénétration du rayonnement ultraviolet solaire obéit à la loi Bouguer-Beer-Lambert décrite plus haut, où l'épaisseur optique dépend du trajet optique dans l'atmosphère calculé par la fonction de Chapman et des sections efficaces d'absorption des constituants absorbants.

Le trajet optique dans l'atmosphère

Le trajet optique dans l'atmosphère dépend de plusieurs variables : temps solaire local, latitude, saison. Il est le plus long au lever et au coucher du soleil. L'atmosphère moyenne reste ensoleillée lorsque le soleil descend jusque 10° environ sous l'horizon, l'altitude d'ensoleillement augmentant avec l'angle zénithal, c'est-à-dire avec le temps écoulé avant ou après le lever ou le coucher du soleil.

Le trajet optique dans l'atmosphère peut être calculé géométriquement dans le cas de l'hypothèse d'une Terre "plate" comme l'illustre la figure 6.

Dans ce cas, le trajet optique L est relié à l'altitude z par la relation :

$$L = z \cdot \sec \chi \quad (6)$$

Le trajet optique est souvent exprimé en terme de masse d'air relative m^* ou facteur de masse d'air, défini par la relation :

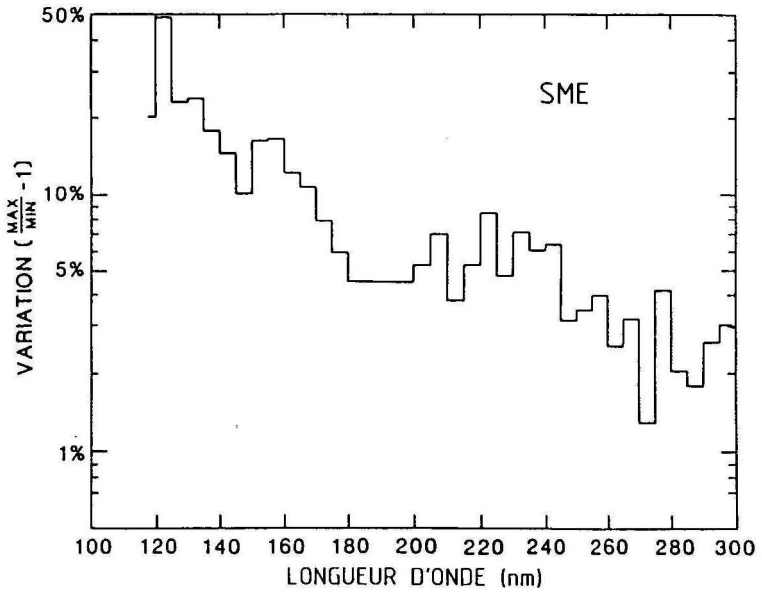


Fig. 5. Estimation des variations à long terme observées par SME de 1982 à 1986, en fonction de la longueur d'onde, intégrées sur 5 nm (d'après Rottman, 1988).

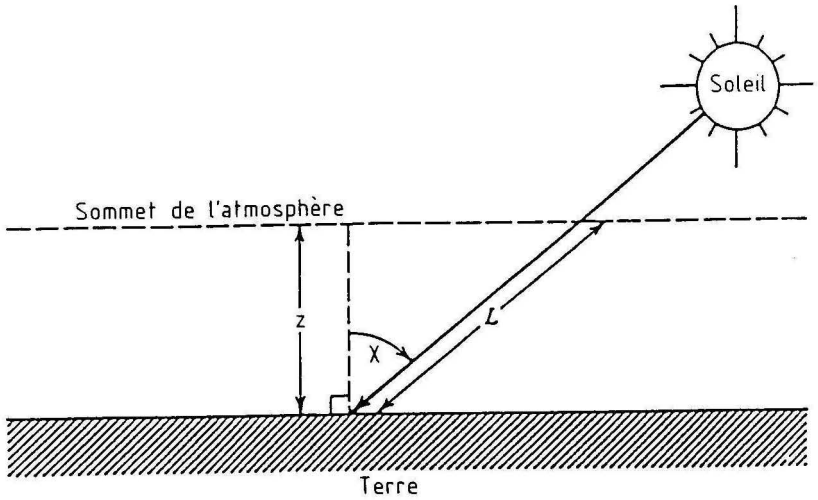


Fig. 6. Géométrie du trajet optique dans l'atmosphère pour une Terre "plate".

$$m^* = L/z = \sec \chi$$

(7)

L'approximation d'une Terre "plate" n'est valable que pour des angles zénithaux égaux ou inférieurs à 70°. De plus, il faut tenir compte dans la stratosphère inférieure de la courbure du trajet optique due à la réfraction de l'air. Le trajet optique dans une atmosphère "sphérique" est exprimé par la fonction de Chapman $Ch(\chi)$ qui dépend de l'angle zénithal et de l'altitude où l'absorption du rayonnement solaire se produit. Cette fonction représente le rapport entre la quantité totale du constituant absorbant le long du trajet optique oblique faisant un angle χ par rapport à la verticale et la quantité totale du constituant suivant la verticale. Des expressions basées sur l'hypothèse d'une atmosphère isotherme permettent de calculer cette fonction qui est de l'ordre de 40 dans l'atmosphère moyenne pour $\chi = 90^\circ$.

Les sections efficaces d'absorption et d'extinction

La pénétration du rayonnement ultraviolet solaire dans l'atmosphère moyenne est principalement contrôlée par son absorption par l'oxygène moléculaire, l'ozone et, dans une mesure beaucoup plus faible, par la diffusion moléculaire de lumière (diffusion "Rayleigh"). Il faut distinguer plusieurs domaines spectraux suivant les molécules considérées et leur distribution verticale dans l'atmosphère. L'ultraviolet lointain, de longueurs d'onde inférieures à 100 nm ne pénètre que jusque dans la thermosphère. La pénétration du rayonnement solaire de longueurs d'onde supérieures à 100 nm est contrôlée par l'oxygène moléculaire et l'ozone jusque 242 nm et par l'ozone seul de 242 à 350 nm. La diffusion moléculaire de la lumière (diffusion "Rayleigh") joue un rôle non négligeable dans la stratosphère et la troposphère, surtout aux longueurs d'onde supérieures à 300 nm. Il faut toutefois également en tenir compte aux environs de 200 nm étant donné les sections efficaces d'absorption relativement plus faibles de l'oxygène moléculaire dans le continuum de Herzberg et le minimum d'absorption de l'ozone dans ce domaine spectral. Le tableau 4 résume les différents domaines spectraux en fonction de leur rôle dans les processus de photodissociation aux altitudes inférieures à 120 km.

Pour calculer l'éclairement énergétique solaire en fonction de l'altitude il faut donc connaître en fonction de la longueur d'onde les sections efficaces d'absorption de l'oxygène moléculaire, de l'ozone et les sections efficaces d'extinction dues à la diffusion de la lumière. La section efficace d'absorption et d'extinction exprimée en cm^2 dépend de la nature du constituant et de la longueur d'onde. Elle représente la probabilité d'absorption d'un photon qui entre en collision avec un constituant atmosphérique. La figure 7 représente les spectres d'absorption de l'oxygène moléculaire et de l'ozone entre 130 et 900 nm et la figure 8 l'altitude pour laquelle l'épaisseur optique est unitaire, c'est-à-dire pour laquelle le rayonnement solaire est atténué d'un facteur $1/e$. Avec le calcul de l'épaisseur de l'optique il est possible de déterminer l'éclairement énergétique dans l'ultraviolet pour chaque altitude (figure 9).

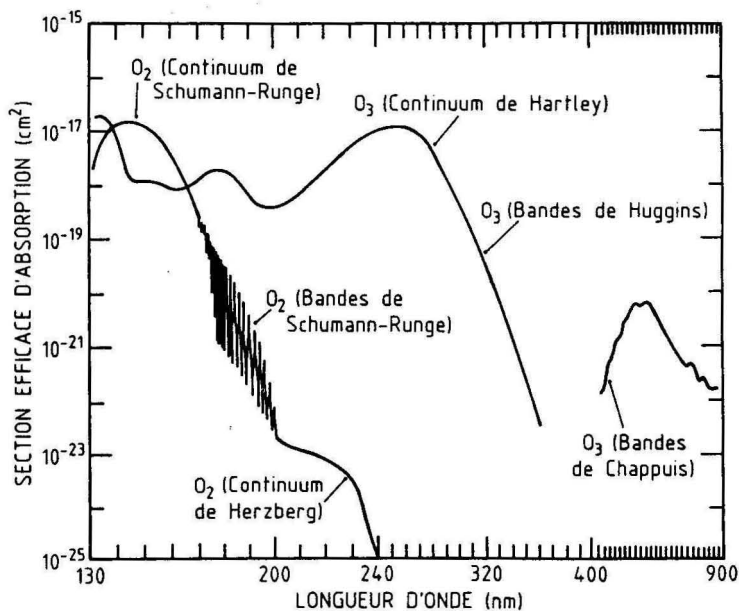


Fig. 7. Sections efficaces d'absorption de l'oxygène moléculaire et de l'ozone dans l'ultraviolet et le visible.

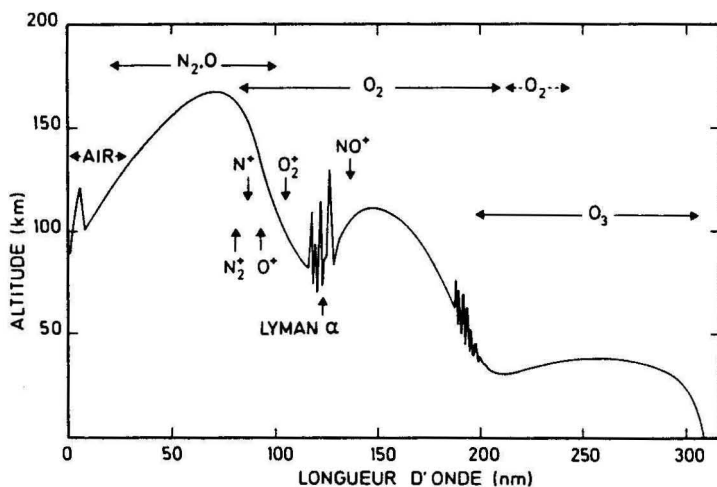


Fig. 8. Variations de l'altitude correspondant à une épaisseur optique unitaire de l'atmosphère terrestre dans l'ultraviolet. Les limites de photoionisations et les domaines de photodissociation pour les principaux constituants de l'atmosphère sont également indiqués.

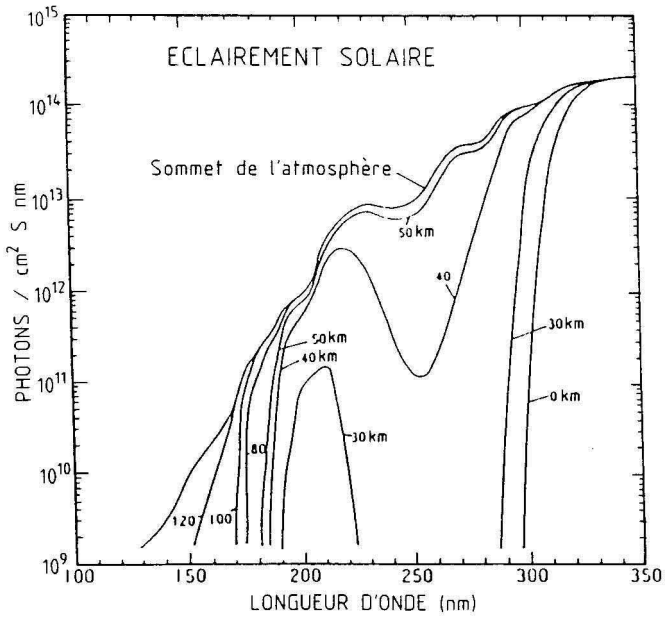


Fig. 9. Eclairage énergétique de soleil en fonction de la longueur d'onde, pour certaines altitudes comprises entre 0 et 120 km.

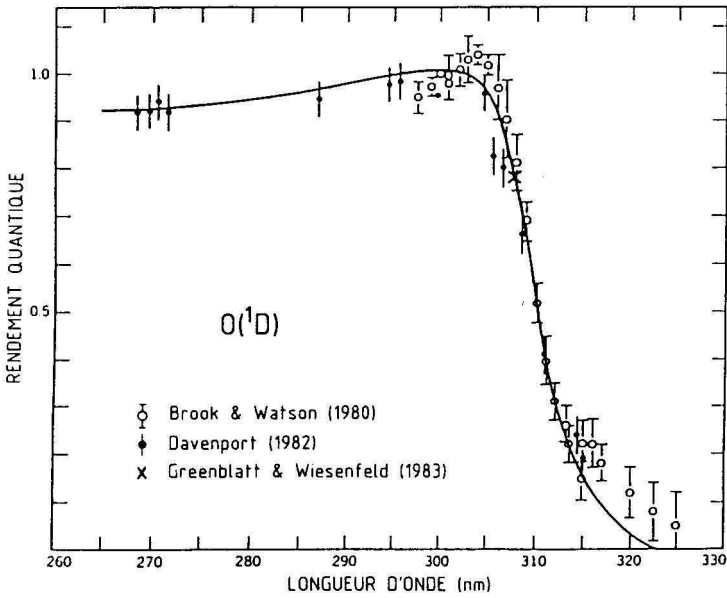


Fig. 10. Rendement quantique de photodissociation de l'ozone, produisant l'atome d'oxygène excité O(¹D), de 260 à 330 nm.

TABLEAU 4.

Longueur d'onde	Absorbants atmosphériques
121,6 nm	Raie Lyman α du Soleil. Absorption par O_2 dans la mésosphère; effet négligeable de O_3
135 - 175 nm	Continuum de Schumann-Runge de O_2 . Absorption par O_2 dans la thermosphère. Domaine à négliger pour l'étude de la photochimie dans la mésosphère et la stratosphère.
175 - 200 nm	Bandes de Schumann-Runge de O_2 . Absorption par O_2 dans la mésosphère et dans la stratosphère supérieure. L'effet de O_3 peut être négligé dans la mésosphère mais est important dans la stratosphère.
200 - 242 nm	Continuum de Herzberg de O_2 . Absorption par O_2 dans la stratosphère et faiblement dans la mésosphère. L'absorption par O_3 due à la bande de Hartley joue un rôle important. Nécessité de considérer les deux effets simultanément.
242 - 320 nm	Bande de Hartley de O_3 . Absorption par O_3 dans la stratosphère conduisant à la formation de l'atome $O(^1D)$.
320 - 350 nm	Bandes de Huggins de O_3 . Absorption par O_3 dans la stratosphère et la troposphère conduisant à la formation de l'atome $O(^3P)$.
450 - 900 nm	Bandes de Chappuis de O_3 . Absorption par O_3 dans la troposphère conduisant à la photodissociation de O_3 jusqu'au niveau du sol.

L'atténuation du rayonnement solaire due aux processus de diffusion de la lumière par l'ensemble des constituants atmosphériques peut être décrite par l'épaisseur optique de diffusion :

$$\tau_s(\lambda, z, \chi) = \left[\sigma_R \int_z^\infty n_R(z) dz + \sigma_M \int_z^\infty n_M(z) dz \right] \text{Ch}(\chi) \quad (8)$$

où σ et n sont respectivement les sections efficaces et les concentrations pour la diffusion moléculaire (R pour "Rayleigh") et pour les aérosols (M pour "Mie").

La diffusion de la lumière contribue également au champ de radiation qui s'ajoute au rayonnement solaire direct. Le terme $q(\lambda, z, \chi)$ doit en fait s'écrire :

$$q(\lambda, z, \chi) = q_{\infty} e^{-\tau(\lambda, z, \chi)} + \int_{\Omega} I(\lambda, z, \Omega) d\Omega \quad (9)$$

où $I(\lambda, z, \Omega)$ est l'intensité de la lumière qui est diffusée dans un angle solide $d\Omega$.

La section efficace d'extinction pour la diffusion moléculaire, intégrée sur 4π sr, s'écrit :

$$\sigma_R(\lambda) = \frac{8\pi^3}{3\lambda^4} \frac{(\mu_{\lambda}^2 - 1)^2}{N^2} f(\delta_{\lambda}) \quad (10)$$

où μ_{λ} est l'indice de refraction de l'air qui dépend de la longueur d'onde λ , de la pression, de la température et de l'humidité relative et δ_{λ} le facteur de dépolarisation qui tient compte de l'anisotropie des molécules atmosphériques. La section efficace de diffusion peut être exprimée par une relation empirique (Bates, 1984; Nicolet, 1984)

$$\sigma_R = \frac{4.02 \times 10^{-16}}{[\lambda(\text{nm})]^{4+x}} \text{ cm}^2 \quad (11)$$

ou $x = 3,89 \times 10^{-4} \lambda + \frac{94,26}{\lambda} - 0,3228$; λ étant exprimé en nm.

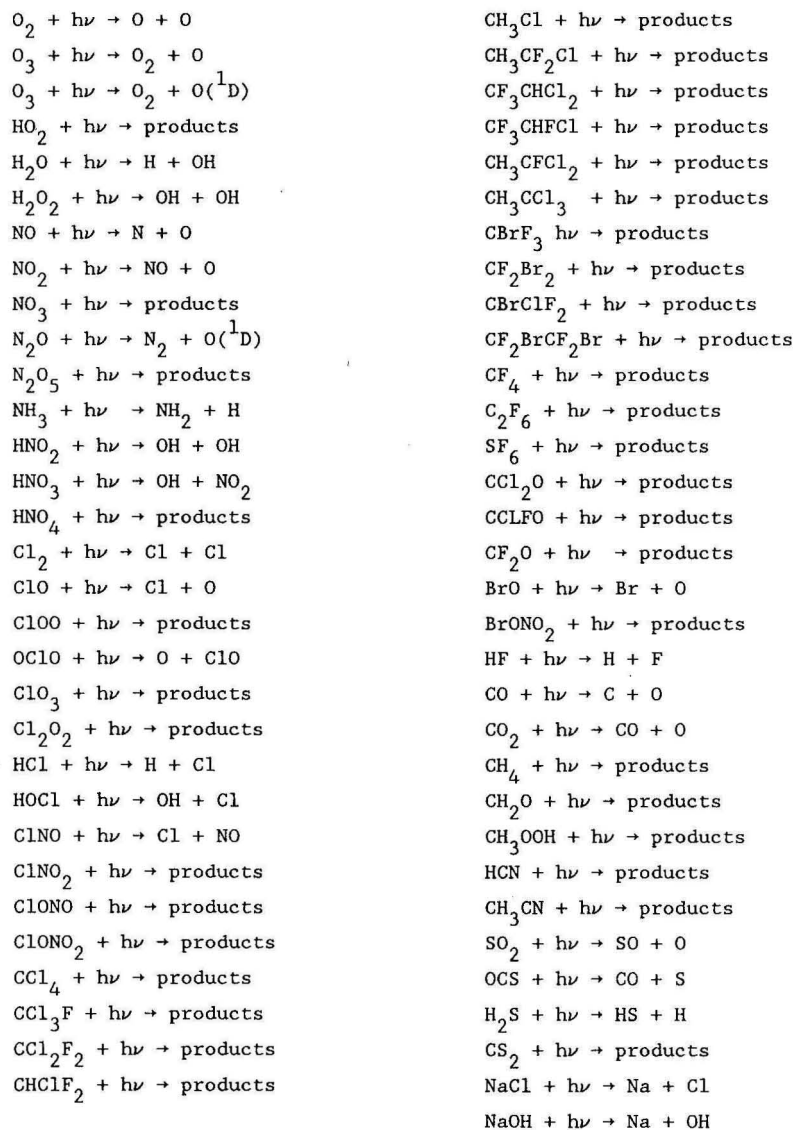
V. LE CALCUL DES TAUX DE PHOTODISSOCIATION

Le calcul des taux de photodissociation se base sur l'équation (3) décrite plus haut dans laquelle interviennent l'éclairement énergétique du Soleil à une altitude z et pour un angle zénithal χ , la section efficace d'absorption du constituant i et le rendement quantique de photodissociation. Outre les absorptions de l'oxygène moléculaire et de l'ozone qui contrôlent la pénétration du rayonnement solaire dans l'atmosphère et qui ont été discutées précédemment, l'étude aéronomique de l'atmosphère moyenne implique plusieurs dizaines de réactions de photodissociation pour lesquelles la distribution spectrale des sections efficaces d'absorption et les rendements quantiques de photodissociation doivent être déterminés au laboratoire. Ces deux paramètres dépendent souvent de la température. Il faut donc tenir compte, dans le cas de l'atmosphère, de leurs variations avec la température en fonction de l'altitude où le processus de photodissociation se produit.

Le tableau 5 reprend les principales réactions de photodissociations dont il est généralement tenu compte pour la modélisation de la stratosphère. Cette liste n'est pas limitative et illustre la quantité de données spectroscopiques indispensables pour l'étude de l'atmosphère moyenne.

Le rendement quantique de photodissociation est généralement unitaire. Toutefois, dans certains cas, sa variation en fonction de la longueur d'onde est très critique. A titre d'exemple et vu son importance pour la production

TABLEAU 5. Réactions photochimiques d'intérêt stratosphérique



de l'oxygène atomique excité $O(^1D)$ qui résulte de la photodissociation de l'ozone dans la stratosphère et la troposphère, le rendement quantique de la photolyse de l'ozone entre 260 et 330 nm est illustré par la figure 10. Il est évident que, vu l'absorption importante du rayonnement solaire par l'ozone au-dessous de 300 nm, la détermination précise de ce rendement quantique et de sa variation avec la température est fondamentale pour calculer la production de $O(^1D)$ dans la stratosphère où cet atome joue un rôle majeur dans les réactions d'oxydation de gaz sources comme la vapeur d'eau, l'hémioxyde d'azote et le méthane.

Dans la plupart des cas, les sections efficaces d'absorption varient lentement avec la longueur d'onde et le calcul des coefficients de photodissociation se fait par simple sommation sur des intervalles de longueur d'onde de 1 à 2 nm. Toutefois, dans certains cas comme pour les sections efficaces d'absorption de l'oxygène moléculaire qui, dans les bandes de Schumann-Runge, varient de 5 décades entre 175 et 204 nm, le calcul des taux de photodissociation requiert alors des méthodes très sophistiquées où la variation de la température avec l'altitude de la couche absorbante joue un rôle important (Simon et Brasseur, 1983).

REFERENCES

- BARTH, C.A., W.K. TOBISKA, G.J. ROTTMAN et O.R. WHITE, *Geophys. Res. Lett.*, 17, 571-574, 1990.
- BATES, D.R., *Planet. Space Sci.*, 32, 785-790, 1984.
- DONNELLY, R.F., *J. Geom. Geoelec.*, in press, 1991.
- LABS, D., H. NECKEL, P.C. SIMON et G. THUILLIER, *Solar Phys.*, 107, 203-219, 1987.
- MENTALL, J.E., B. GUENTHER et D. WILLIAMS, *J. Geophys. Res.*, 90, 2265-2271, 1985.
- MOUNT, G.H. et G.J. ROTTMAN, *J. Geophys. Res.*, 88, 5403-5410, 1983.
- MOUNT, G.H. et G.J. ROTTMAN, *J. Geophys. Res.*, 90, 13031-13063, 1985.
- MOUNT, G.H., G.J. ROTTMAN et J.G. TIMOTHY, *J. Geophys. Res.*, 85, 4271-4274, 1980.
- NECKEL, H. et D. LABS, *Solar Phys.*, 90, 205-258, 1984.
- NICOLET, M., *Planet. Space Sci.*, 32, 1467-1468, 1984.
- NICOLET, M. et R. KENNES, *Planet. Space Sci.*, 1059-1068, 1988.
- ROTTMAN, G.J., *J. Geophys. Res.*, 86, 6697-6705, 1981.
- ROTTMAN, G.J., *Ad. Space Res.*, 8, 53-66, 1988.
- SIMON, P.C. et G. BRASSEUR, *Planet. Space Sci.*, 31, 987-999, 1983.
- SIMON, P.C. et W.K. TOBISKA, *J. Geom. Geoelec.*, in press, 1991.
- VANHOOSIER, M.E., J.-D.F. BARTOE, G.E. BRUECKNER et D.K. PRINZ, *Astr. Lett. and Commun.*, 27, 163-168, 1988.
- WHITE, O.R., G.J. ROTTMAN et W.C. LIVINGSTON, *Geophys. Res. Lett.*, 17, 575-578, 1990.