

INSTITUT D'AERONOMIE SPATIALE DE BELGIQUE

Avenue Circulaire 3, 1180 BRUXELLES

## AERONOMICA ACTA

A - N° 66 - 1969

**Mesure de l'absorption stratosphérique du rayonnement solaire  
de 3,05 à 3,70 microns**

**par M. ACKERMAN et D. FRIMOUT**

BELGISCH INSTITUUT VOOR RUIMTE-AERONOMIE

Ringlaan 3, 1180 BRUSSEL

## AVANT-PROPOS

Ce travail sera présenté par M. Nicolet à l'Académie Royale des Sciences le 8 novembre 1969 et sera publié dans les Bulletins de l'Académie Royale des Sciences.

## VOORWOORD

Dit werk zal op 8 november 1969 door M. Nicolet voorgedragen worden aan de Koninklijke Akademie voor Wetenschappen en zal verschijnen in de mededelingen van de Koninklijke Akademie voor Wetenschappen.

## FOREWORD

This work will be presented by M. Nicolet at the Royal Academy of Science on November 8, 1969 and will be published in the Bulletins de l'Académie Royale des Sciences.

## VORWORT

Am 8. November 1969 wird diese Arbeit durch Prof. M. Nicolet zur Königlichen Akademie der Wissenschaften vorgestellt und sie wird in die "Bulletins de l'Académie Royale des Sciences" herausgegeben werden.

MESURE DE L'ABSORPTION STRATOSPHERIQUE DU RAYONNEMENT SOLAIRE DE

---

3,05 à 3,70 MICRONS

---

par

M. ACKERMAN et D. FRIMOUT

---

Résumé

Les spectres du soleil enregistré de 3,05 à 3,70 $\mu$ m au moyen d'un monochromateur emporté par ballon à 35 km d'altitude et pour des distances zénithales allant de 75° à 95° sont présentés et discutés dans ce travail. Ils permettent d'identifier des absorptions de CH<sub>4</sub> et H<sub>2</sub>O. Des absorptions dues à O<sub>3</sub> y sont mises en évidence pour la première fois dans l'atmosphère.

Des limites supérieures des rapports de mélange de NO<sub>2</sub> et de HCHO dans la stratosphère sont déduites des mesures.

Samenvatting

De zonnenspectra van 3,05 tot 3,70 $\mu$ m, opgenomen met behulp van een monochromator die door een stratosferische ballon tot op een hoogte van 35 km werd gebracht, en voor zenithale afstanden gaande van 75° tot 95° worden voorgesteld en besproken in dit werk. Zij laten toe de absorpties van CH<sub>4</sub> en H<sub>2</sub>O te identificeren. De absorptie te wijten aan O<sub>3</sub> wordt voor het eerst in de atmosfeer waargenomen.

Uit de metingen worden de bovenste grenzen van de mengverhoudingen in de stratosfeer van NO<sub>2</sub> en van HCHO afgeleid.

## Abstract

Solar spectra have been recorded from 3,05 to 3,70 $\mu$ m by means of a balloon borne monochromator at an altitude of 35 km and for solar zenith distances from 75° to 95°. Absorptions due to CH<sub>4</sub> and H<sub>2</sub>O are identified as well as O<sub>3</sub> bands observed for the first time in the atmosphere.

Upper limits for the stratospheric mixing ratios of NO<sub>2</sub> and HCHO are deduced.

## Zusammenfassung

Sonnespektrum zwischen 3,05 und 3,70 $\mu$ m werden für Zenitdistanzen zwischen 75° und 95° mit Hilfe einem Monochromator, der auf 35 km Höhe mit einem Ballon aufgehoben wurde, vorgestellt und diskutiert. Sie erlauben die Identifizierung der CH<sub>4</sub> und H<sub>2</sub>O Absorptionen. Absorptionen durch O<sub>3</sub> sind zum ersten Mal in der Atmosphäre identifiziert.

Obere Grenzen für die Mischungsverhältnisse von NO<sub>2</sub> und HCHO in der Stratosphäre werden aus dem Messungen festgestellt.

## 1.- INTRODUCTION

La mesure de l'absorption du rayonnement infrarouge solaire peut être considérée comme un des moyens adéquats d'analyse des constituants minoritaires de l'atmosphère<sup>(1)</sup>. Elle est évidemment limitée au niveau du sol par l'absorption presque complète dans certains domaines de longueur d'onde et par l'impossibilité de l'appliquer aux très grandes distances zénithales du soleil par suite de la pollution des couches basses de l'atmosphère. Les observations effectuées à l'aide d'instruments automatiques emportés par ballon permettent d'avoir accès à des domaines de longueurs d'onde beaucoup plus étendus et à des épaisseurs optiques maximales. Dans ces conditions, il est possible de mettre en évidence des constituants atmosphériques très peu abondants ou présentant une absorption relativement faible<sup>(2)</sup>.

Nous décrivons dans cette note les résultats obtenus par l'enregistrement entre 3,05 et 3,70 microns du spectre du soleil couchant à des distances zénithales comprises entre 75° et 95°, au moyen d'un monochromateur pointé automatiquement vers le soleil à partir d'une nacelle stratosphérique qui a plafonné à 35 km d'altitude.

## 2.- TECHNIQUE EXPERIMENTALE

L'instrument qui sera décrit en détail ailleurs<sup>(3)</sup> consiste en un monochromateur Fastie-Ebert de 40 cm de distance focale équipé d'un réseau Bausch and Lomb, de 64 x 64 mm de surface gravée de 300 traits par mm, renforcé à 3 microns et utilisé dans le premier ordre. Le détecteur au sulfure de sélénium est connecté à un préamplificateur suivi de trois amplificateurs dont les gains sont adaptés au système de télémessure. L'image du soleil, d'un diamètre de 0,9 mm est envoyée au moyen d'une lentille en  $As_2S_3$  sur la fente d'entrée horizontale d'une largeur de 0,3 mm qui délimite un angle de 10 minutes d'arc. Le faisceau lumineux est modulé à 400 herz au moyen d'un diapason entretenu par un oscillateur.

La pivotation du réseau est engendrée par une came au moyen d'un moteur électrique. Ce dernier entraîne simultanément un disque ajouré qui, pendant le retour de la came, fait intercepter le faisceau lumineux par un filtre transparent de 0,4 à 2,9 $\mu\text{m}$  afin de définir le zéro optique.

Le monochromateur est solidaire d'une plateforme stabilisée fabriquée par la Compagnie des Compteurs à Montrouge. La précision du pointage au cours de cette expérience était meilleure que 30 secondes d'arc. Le poids total de la nacelle était de 180 kgs. Le lancement a été effectué au Centre National d'Etudes Spatiales français à Aire sur l'Adour (Landes), le 24 avril 1969. Une vingtaine de spectres ont été enregistrés au sol pendant deux heures à l'altitude de 35 km.

### 3.- RESULTATS

Les spectres obtenus à des distances zénithales,  $\chi$ , comprises entre 75° et 85° sont tous identiques au bruit de fond près. Des absorptions à la longueur d'onde de 3,3 $\mu\text{m}$  apparaissent distinctement à la distance zénithale  $\chi = 88^\circ$ . Les figures 1, 2 et 3 représentent le dernier spectre complet obtenu avant l'occultation, le monochromateur enregistrant la longueur d'onde 3,3 $\mu\text{m}$  à  $\chi = 94^\circ 10'$ . Dans ces conditions, les rayons solaires atteignant le récepteur infrarouge passent par une altitude minimum  $h_{\text{min}} = 16$  km à une distance horizontale de la nacelle de 470 km. A une telle distance, la résolution spatiale liée à l'optique utilisée est de l'ordre du kilomètre. Dans les figures 1, 2 et 3, le signal produit par le détecteur est porté en ordonnée en unités arbitraires. Les valeurs de  $\chi$  en degré et de  $h_{\text{min}}$  en kilomètre indiquées à la partie supérieure des figures ont été déduites de l'altitude du ballon et des données reprises des tables de Lugeon<sup>(4)</sup>. Le spectre obtenu à  $\chi = 85^\circ$ , le monochromateur enregistrant la longueur d'onde à 3,3 $\mu\text{m}$  est représenté en pointillé. Les diminutions d'intensité par rapport à ce spectre peuvent être considérées comme des absorptions atmosphériques à l'exclusion de tout effet de pollution liée au dégazage du ballon ou d'instrumentation.

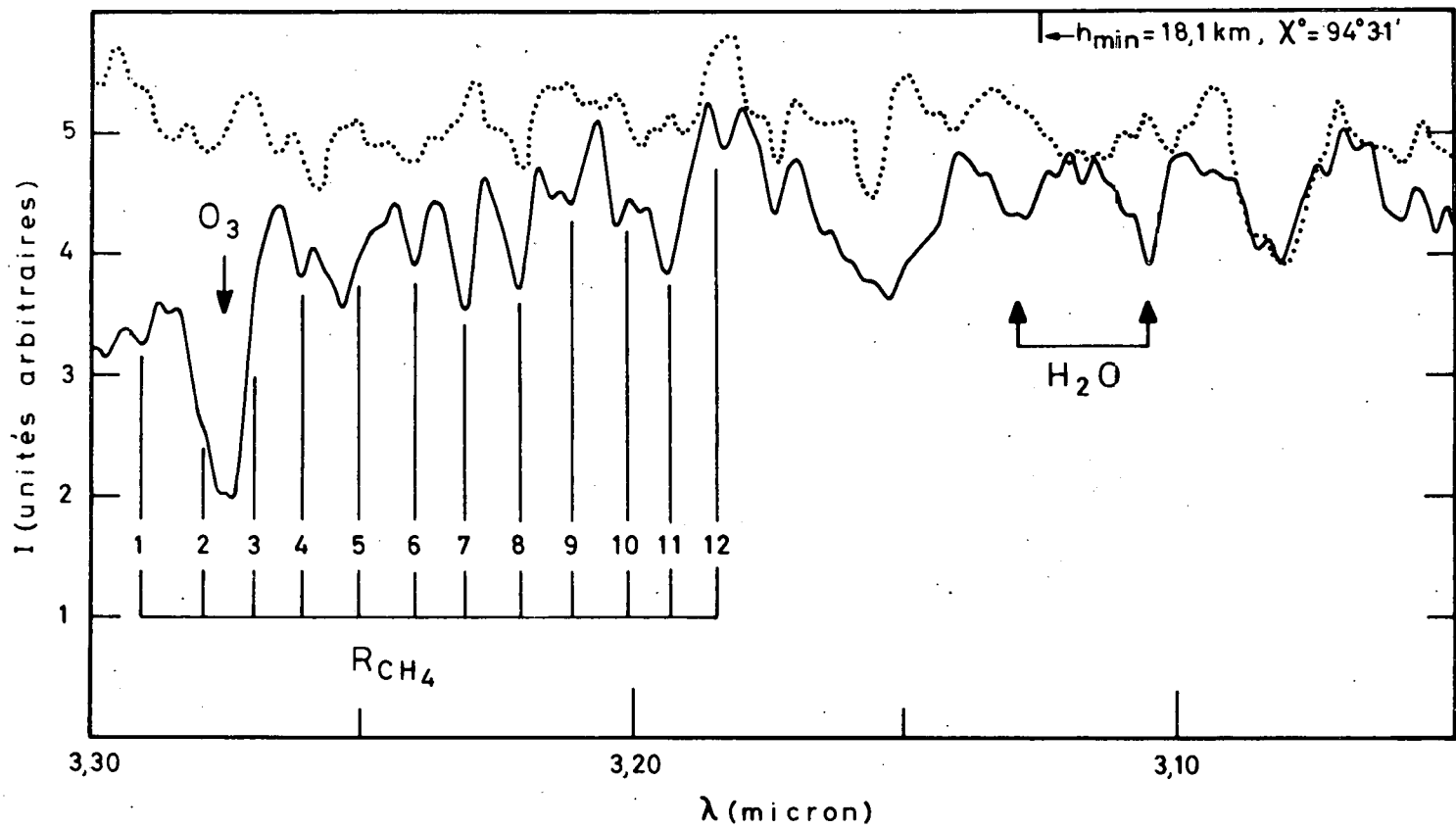


Fig. 1.-

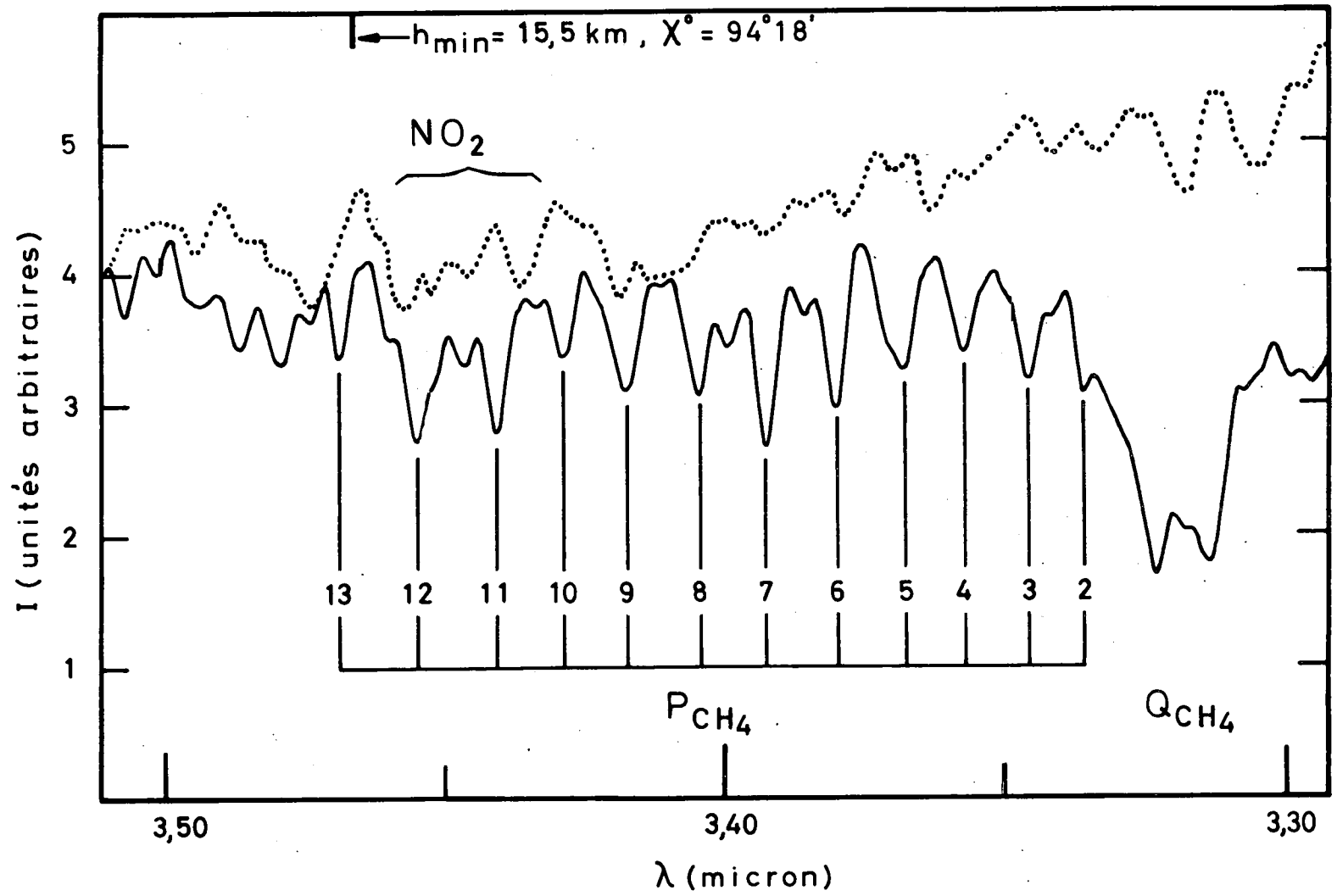


Fig. 2.-



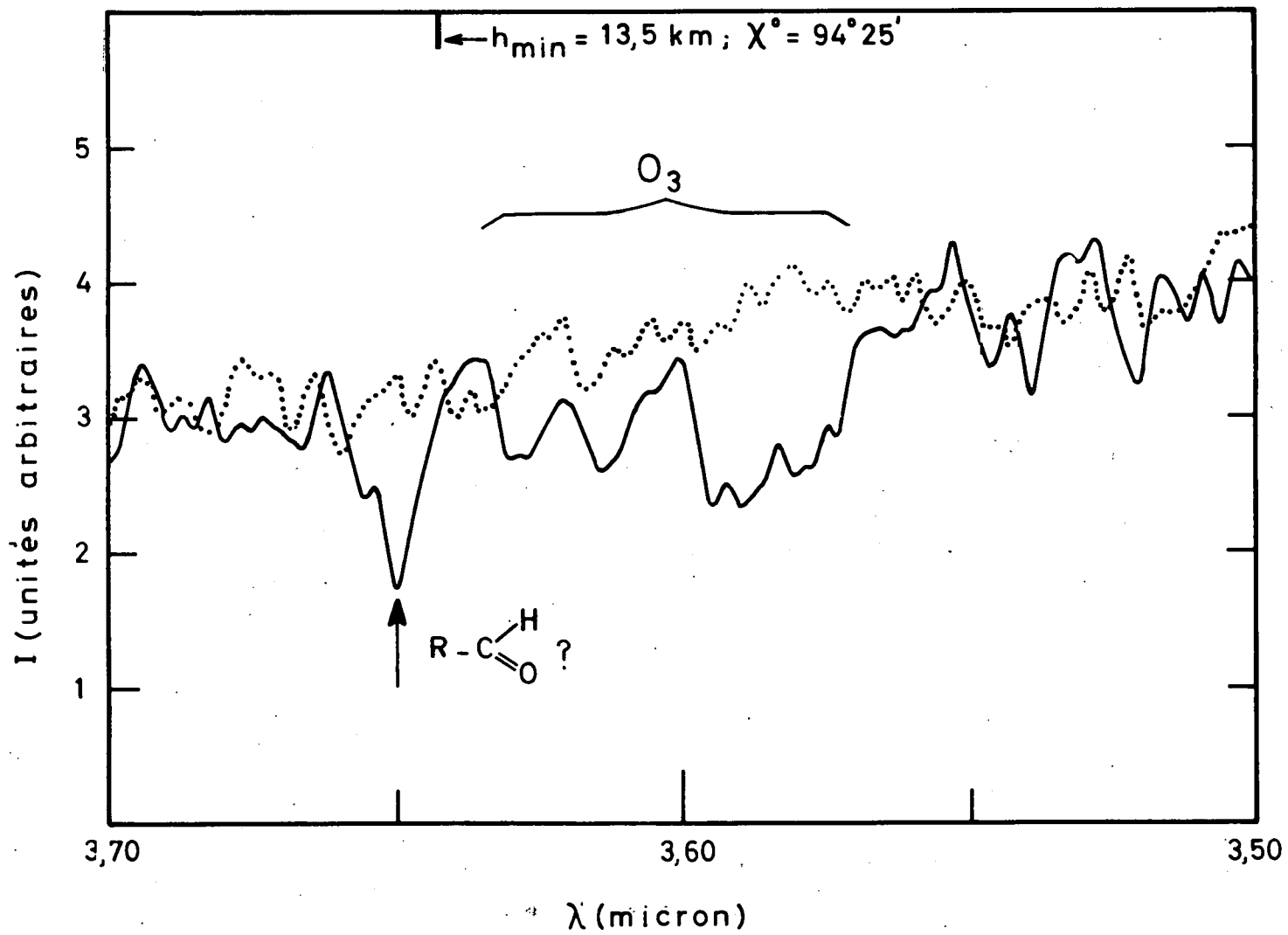


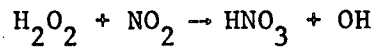
Fig. 3.-

#### 4.- DISCUSSION

La région spectrale s'étendant de 3,05 à 3,30 $\mu\text{m}$  (Fig. 1) est caractérisée par des absorptions dues à la vapeur d'eau, au méthane et à l'ozone. La bande de  $\text{O}_3$  à 3,042  $\text{cm}^{-1}$ , qui est détectée ici pour la première fois dans l'atmosphère, a été observée depuis longtemps au laboratoire<sup>(5)</sup>. Son maximum d'absorption apparaît à 3,274 $\mu\text{m}$  et on doit s'attendre à ce que cette absorption s'étende avec une faible intensité de 3,4 à 3,15 $\mu\text{m}$  avant de rejoindre la bande à 3181  $\text{cm}^{-1}$ . Une absorption sous-jacente intensifie donc l'absorption de la branche R de la bande de 3020  $\text{cm}^{-1}$  de  $\text{CH}_4$  dont de nombreux éléments sont identifiables à la figure 1. On s'attend à ce qu'une faible absorption due à la vapeur d'eau se manifeste également dans ce domaine spectral car on reconnaît aisément à 3,106 et à 3,130 $\mu\text{m}$  deux maxima d'absorption de la bande  $2 \nu_2$  de  $\text{H}_2\text{O}$  centrée à 3,17 $\mu\text{m}$  pour lesquels on peut admettre des intensités non modifiées par l'absorption d'un autre constituant.

De 3,30 à 3,50 $\mu\text{m}$  les branches Q et P de la bande de 3020  $\text{cm}^{-1}$  de  $\text{CH}_4$  apparaissent sans ambiguïté à la figure 2. On note que l'intensité des composantes 11 et 12 de la branche P est anormalement grande ; ainsi on est conduit à admettre la présence à cet endroit du spectre d'une absorption très localisée due à un autre constituant. Ce caractère particulier en même temps que les longueurs d'onde correspondent aux branches P et R de la bande 1 - 0 - 1 de  $\text{NO}_2$  qui devraient apparaître très étroites aux basses températures stratosphériques comme on peut le vérifier à l'aide des données de Olman et Hause<sup>(6)</sup>. La seule étude quantitative de l'absorption de  $\text{NO}_2$  au laboratoire est celle de Pierson, Fletcher et St Clair Gantz<sup>(7)</sup>. Bien que celle-ci ait été effectuée à haute pression et à température normale, elle permet toutefois de fixer une limite supérieure à la quantité totale de  $\text{NO}_2$  sur le trajet optique. Celle-ci impliquerait pour  $\text{NO}_2$  un rapport de mélange compris entre 1 et 3  $\times 10^{-8}$  au moment et à l'endroit des mesures. La formation de  $\text{NO}_2$  dans la stratosphère est due à la réaction de l'oxyde azotique avec

l'ozone <sup>(8)</sup> ; NO<sub>2</sub> à son tour peut réagir avec l'eau oxygénée suivant le processus <sup>(9)</sup> .



pour former l'acide nitrique qui a d'ailleurs été observé récemment dans la stratosphère <sup>(10)</sup> .

Une absorption due à O<sub>3</sub> et non encore mise en évidence dans l'atmosphère apparaît à la figure 3. Elle est due à la bande de 2779 cm<sup>-1</sup> de O<sub>3</sub> connue au laboratoire <sup>(5)</sup> . L'absorption intégrée mesurée sur ce spectre comparée à des données expérimentales de laboratoire <sup>(11)</sup> conduit à une quantité totale de O<sub>3</sub> sur le trajet optique égale à 4,5 x 10<sup>20</sup> cm<sup>-2</sup> . Celle-ci peut être ramenée à la quantité correspondant à une distance zénithale nulle de 4,5 x 10<sup>18</sup> cm<sup>-2</sup> en utilisant pour une hauteur d'échelle de 4 km les valeurs d'épaisseurs optiques données par Swider <sup>(12)</sup> . Etant donné que la hauteur d'échelle de O<sub>3</sub> au dessus de l'altitude h<sub>min</sub> considérée dans ce cas est essentiellement variable la valeur obtenue peut être considérée comme étant en bon accord avec les valeurs couramment mesurées par d'autres méthodes.

Enfin, l'absorption centrée sur 3,65μm n'a pu être identifiée. La longueur d'onde correspond à la bande classiquement liée à la vibration de "stretching" du groupe H - C = O des aldéhydes. En envisageant la formaldéhyde, dont la présence a déjà été observée dans la pluie <sup>(13)</sup> , des données de Pierson et coll. permettent dans ce cas également d'évaluer une limite supérieure de la concentration de ce composé lié à la chimie de l'oxydation du méthane. Elle serait de l'ordre de 5 à 10 x 10<sup>-10</sup> au moment et à l'endroit des mesures.

## 5.- CONCLUSION

Si la réalisation de cette expérience a indiqué l'intérêt que présente l'étude par ballon de l'absorption atmosphérique du rayonnement

solaire à de grandes distances zénithales, elle a surtout permis de mettre en évidence la présence de bandes d'absorption qui n'étaient pas encore connues dans les spectres atmosphériques. De plus, ce travail montre également la nécessité d'effectuer au laboratoire des mesures d'absorption aux pressions et températures adéquates pour un grand nombre de composés auxquels on peut attribuer éventuellement un rôle aéronomique.

Nous remercions le Professeur Nicolet pour l'intérêt qu'il a manifesté à ce travail et pour l'aide qu'il nous a apportée.

REFERENCES

1. J.N. HOWARD and J.S. GARING, *Infr. Phys.*, 2, 155 (1962).
2. M. ACKERMAN, *Aeronomica Acta B n° 1*, Bruxelles (1963).
3. M. ACKERMAN et D. FRIMOUT, à paraître.
4. J. LUGEON, *Tables Crépusculaires*. Académie polonaise des Sciences, 2e éd., Varsovie (1957).
5. G. HETTNER, R. POHLMAN et H.J. SCHUMACKER, *Z. Physik*, 91, 372 (1934).
6. M.D. OLMAN et C.D. HAUSE, *J. Mol. Spectry.*, 26, 241 (1968).
7. R.H. PIERSON, A.N. FLETCHER et E. St CLAIR GANTZ, *Analyt. Chem.*, 28, 1218 (1956).
8. M. NICOLET, *J. Atm. Terr. Phys.*, 7, 297 (1955).
9. M. NICOLET, *Ann. Géophys.*, 25 (1970)
10. D.G. MURCRAY, T.G. KYLE, F.M. MURCRAY et W.J. WILLIAMS, *Nature*, 218, 78 (1968).
11. D.J. McCAA et J.H. SHAW, *Scientific Report No 2*, Contract N° AF 19(628) - 3806, A.F.C.R.L. Bedford-Mass. USA (1967).
12. W. SWIDER, *Planet. Space Sci.*, 12, 761 (1964).
13. N.R. DHAR et A. RAM, *J. Indian Chem. Soc.*, 10, 287 (1939).