

SURVEILLANCE DE L'ATMOSPHÈRE TERRESTRE DEPUIS LA STATION DU JUNGFRAUJOCH : UNE ÉPOPÉE LIÉGEOISE ENTAMÉE VOICI PLUS DE 65 ANS !

Emmanuel MAHIEU, Whitney BADER, Benoît BOVY, Philippe DEMOULIN, Olivier FLOCK, Bruno FRANCO, Bernard LEJEUNE, Maxime PRIGNON, Ginette ROLAND, Christian SERVAIS

Résumé

C'est au début des années 1950 que des chercheurs de l'Université de Liège ont entrepris de caractériser l'atmosphère terrestre depuis la station scientifique du Jungfraujoch, dans les Alpes suisses, à une époque où les inquiétudes liées à l'évolution de la composition atmosphérique étaient inexistantes. Depuis, une spectrothèque infrarouge unique au monde a été soigneusement constituée. L'exploitation de ces observations a permis de déterminer des séries temporelles multi-décennales indispensables à la caractérisation des changements subis par l'atmosphère et à l'identification de leurs causes. Après un bref historique rappelant les étapes qui ont jalonné la mise en place du programme observationnel liégeois et les découvertes qui ont justifié sa poursuite, nous passons en revue quelques résultats-clefs récemment acquis, en lien avec les Protocoles de Montréal et de Kyoto ou la surveillance de la qualité de l'air.

Mots-clés

composition et changements atmosphériques, spectrométrie infrarouge, surveillance par télémesures, troposphère et stratosphère terrestres, Jungfraujoch

Abstract

It is in the early 1950s that researchers from the University of Liège started to investigate the Earth's atmosphere from the Jungfraujoch scientific station, in the Swiss Alps, at a time when concerns related to atmospheric composition changes were nonexistent. Since then, a worldwide unique infrared observational data base has been carefully collected. The exploitation of these observations has allowed constituting multi-decadal time series crucial for the characterization of the changes that affected our atmosphere and for the identification of their causes. In this paper, we first remind about the successive steps which led to establishing the observational program of the Liège team at the Jungfraujoch and we evoke important findings which justified its continuation. Then we present some recent results relevant to the Montreal and Kyoto Protocols, or related to the monitoring of air quality.

Keywords

atmospheric composition and trends, infrared spectrometry, remote-sensing monitoring, Earth's troposphere and stratosphere, Jungfraujoch

I. INTRODUCTION

« Il serait très intéressant d'enregistrer systématiquement les bandes telluriques du méthane (CH₄), de l'oxyde nitreux (N₂O) et du monoxyde de carbone (CO) en vue d'étudier ou de déceler des variations d'intensité au cours du temps ». Voici ce qu'écrivait Marcel Migeotte, professeur à l'Université de Liège (ULg), dans von Mural (1951). Un propos assurément visionnaire au milieu du siècle dernier, à une époque où l'on pensait que la composition de l'atmosphère était stable, essentiellement invariable au niveau global et donc peu sujette à des perturbations d'origine anthropique.

Après avoir détecté la présence du CH₄ et du CO atmosphériques dans des spectres solaires infra-

rouges (IR) enregistrés à Columbus dans l'Ohio (Migeotte et Neven, 1950), le Pr Migeotte et ses collaborateurs installent un spectromètre à réseau (Migeotte *et al.*, 1956) à l'observatoire du Sphinx de la station scientifique du Jungfraujoch, dans les Alpes bernoises, ancrée sur le col reliant les sommets du Mönch (4107 m) et de la Jungfrau (4158 m). Leur premier objectif est de confirmer la présence de ces deux composés dans l'atmosphère non polluée de ce site de haute altitude (3580 m), voisin du plus grand glacier d'Europe, le glacier d'Aletsch. Outre l'absence de pollution locale, le choix de ce site est motivé par un autre avantage décisif, l'extrême sécheresse de son atmosphère qui limite drastiquement une source d'interférence majeure, l'absorption intense par la vapeur d'eau dans le domaine spectral infrarouge. Enfin, l'accès des

chercheurs à la station et l'acheminement de matériel sont possibles toute l'année par voies ferrées, ce qui est exceptionnel pour un site aussi isolé.

Au cours des années 1950-51, l'équipe va procéder à l'enregistrement systématique de spectres solaires couvrant l'infrarouge moyen, avec une résolution spectrale et un rapport signal sur bruit se situant dans les gammes 0.12-0.4 cm^{-1} et 40-80, respectivement, en fonction des conditions d'observation influencées par la saison, l'humidité et le moment de la journée. Ces observations pionnières sont toujours disponibles aujourd'hui sous la forme de plus de 80 rouleaux papier. Un sous-ensemble a été utilisé pour la production d'un atlas couvrant le domaine spectral entre 2.8 et 23.7 μm (Migeotte *et al.*, 1956). L'identification méthodique par Migeotte *et al.* (1957) des raies d'absorption ainsi collectées va permettre de démontrer la présence au-dessus du Jungfraujoch de gaz telluriques tels que CH_4 , N_2O , le dioxyde de carbone (CO_2), CO et l'ozone (O_3).

Dans le contexte de l'Année géophysique internationale (1957-1958), le Pr Migeotte a obtenu des crédits lui permettant de construire et d'installer, au Jungfraujoch, un spectromètre de plus de 7.5 m de distance focale et pouvant travailler sous vide. Cet instrument a permis l'enregistrement d'un atlas dans le proche infrarouge (Delbouille et Roland, 1963), lui aussi complété par une publication identifiant les raies d'absorption solaires et atmosphériques ainsi enregistrées (Swensson *et al.*, 1970). L'optique de cet instrument a ensuite été modifiée de façon à permettre un « double passage » sur le réseau de diffraction avec fente intermédiaire. Ceci a conduit à doubler la résolution spectrale tout en permettant une meilleure définition du profil instrumental du spectromètre. Autre amélioration, un ordinateur digital prend le contrôle des enregistrements dès 1966 : les spectres sont maintenant sous forme numérique ! L'enregistrement d'un atlas couvrant tout le domaine visible est entrepris, permettant essentiellement l'étude de la composition chimique de la photosphère solaire (Delbouille *et al.*, 1973-1988).

C'est alors que Molina et Rowland (1974) et Stolarski et Cicerone (1974) émettent quasi simultanément l'hypothèse que la photodissociation par le rayonnement ultraviolet (UV ; $\lambda < 250 \text{ nm}$) des CFC (chlorofluorocarbones, aussi connus sous la marque commerciale Fréons), composés de synthèse utilisés dans de très nombreuses applications

industrielles et domestiques depuis les années 50, permet la libération, dans la stratosphère (couche atmosphérique supérieure située entre ~ 10 et 50 km d'altitude), d'atomes de fluor (F) et de chlore (Cl), stabilisés ensuite sous forme de HF (acide fluorhydrique) et de HCl (acide chlorhydrique). Ces auteurs suggèrent en outre que le chlore est susceptible de contribuer au cycle « ClO_x » qui conduit à la destruction catalytique de l'ozone stratosphérique, bouclier protégeant la biosphère des rayons UV nocifs. L'importante découverte de la présence de HF dans la stratosphère supérieure par R. Zander (1975), alors chef de travaux à l'ULg, grâce à des spectres infrarouges enregistrés en 1974 par la nacelle ballon liégeoise au-dessus du Texas, démontre que les CFC migrent vers la stratosphère et y sont photodissociés. Ce contexte préoccupant motive les chercheurs liégeois à se recentrer sur l'observation de l'atmosphère terrestre afin de surveiller l'évolution de sa composition. Ils équipent le spectromètre à double-passage d'un détecteur refroidi à l'azote liquide et confirment la détection de HF depuis le Jungfraujoch (Zander *et al.*, 1977). Ils entreprennent d'enregistrer systématiquement des domaines spectraux étroits ciblant principalement des raies de HCl, HF, CH_4 , N_2O et CO, avec une résolution de l'ordre de 0.01 cm^{-1} et un rapport signal sur bruit approchant 250.

Depuis, ce programme de surveillance atmosphérique n'a jamais cessé et a progressivement impliqué des nouveaux instruments, toujours plus modernes et plus performants. C'est ainsi qu'un spectromètre par transformée de Fourier (FTIR) construit à l'Université de Liège est installé en 1974 au foyer coudé du télescope du Jungfraujoch. De type Connes et opérant dans un premier temps en mode pas à pas, cet instrument est ensuite profondément modernisé de façon à le rendre plus efficace et rapide (Delbouille et Roland, 1995). Il entame un programme d'observations régulières en 1984, permettant d'enregistrer près de 10000 spectres en près de 800 jours jusqu'à sa mise hors service en 2008 (par exemple Demoulin *et al.*, 1991). Au début de l'année 1990, un instrument de la société Bruker Optics (IFS 120HR), modifié de manière importante par les chercheurs du laboratoire, a complété les capacités observationnelles au Jungfraujoch. Toujours en fonctionnement aujourd'hui, il a permis d'enregistrer plus de 45000 spectres en plus de 2700 jours. Depuis 2008, ce dernier spectromètre et l'équipement qui l'entoure sont contrôlables à

distance (Servais *et al.*, 2007) afin de maximiser les opportunités d'observations qui nécessitent un ciel clair, sans nuage. Il est important de noter que la base de données observationnelles infrarouges ainsi constituée par les chercheurs liégeois au Jungfraujoch est sans équivalent dans le monde, que ce soit en termes de qualité, de fréquence de mesure ou de couverture temporelle, avec plus de 35 ans de données sans interruption notable.

Le dispositif instrumental des spectromètres FTIR comprend notamment deux détecteurs refroidis à l'azote liquide (un « MCT », ou Mercure-Cadmium-Tellure et un « INSB », ou Indium-Antimoine) ainsi qu'une roue à filtres optiques. Ils permettent ensemble de couvrir séquentiellement tout le domaine de l'infrarouge entre approximativement 2 et 14 μm . La Figure 1 montre les cinq domaines enregistrés de manière régulière dans le cas du spectromètre Bruker. Les résolutions spectrales peuvent atteindre 0.003 cm^{-1} alors que des valeurs supérieures à 1000 pour le rapport signal sur bruit sont monnaie courante.

Des centaines de milliers de raies d'absorption sont ainsi enregistrées dans ces spectres à large bande passante, certaines associées à des gaz encore à découvrir. Elles renseignent sur les molécules de l'atmosphère terrestre qui ont absorbé le rayonnement IR solaire, essentiellement entre le sol et 50 km d'altitude. La surface des raies est proportionnelle au nombre de molécules absorbantes alors que l'analyse du profil de la raie, qui subit un élargissement par la pression atmosphérique, permet d'évaluer la répartition de ces molécules avec l'altitude. À titre d'illustration, nous reproduisons à la partie inférieure de la Figure 1 quelques-unes des micro-fenêtres spectrales utilisées pour la détermination de l'abondance de plusieurs molécules accessibles à la technique FTIR. Les signatures spectrales du CFC-12, de l'oxysulfure de carbone (OCS), de CH_4 , de l'éthane (C_2H_6) et de HF sont identifiées par des flèches aux cadres B à F, respectivement. Ces absorptions présentent des formes et intensités contrastées, notamment influencées par l'abondance atmosphérique totale, la distribution

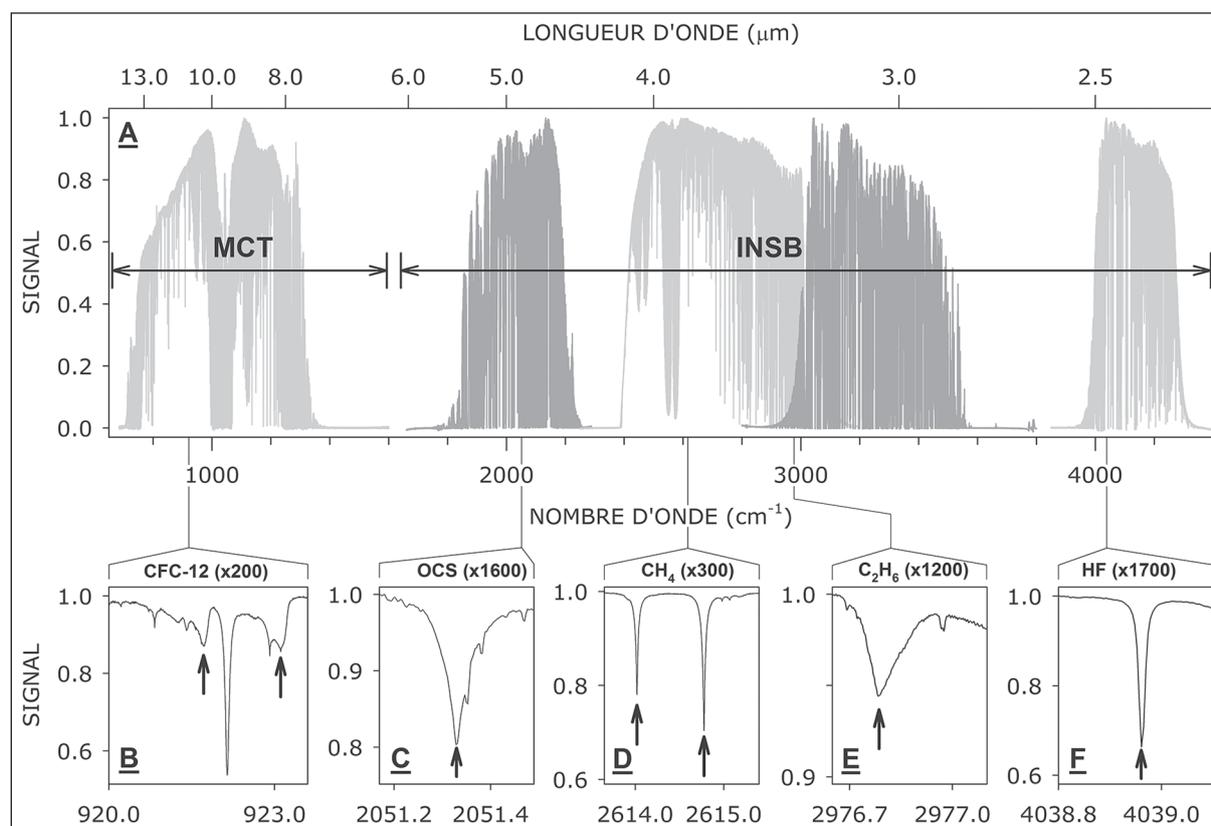


Figure 1. Les domaines spectraux couverts par les différents filtres optiques et les détecteurs MCT ou INSB utilisés à la station du Jungfraujoch pour le spectromètre Bruker 120HR sont reproduits au cadre A. Ces bandes passantes sont en outre influencées par l'absorption des principaux gaz à effet de serre, permettant de définir des « fenêtres atmosphériques ». Les cadres B à F montrent, après un grossissement de l'échelle horizontale de 200 à 1700, une sélection de micro-fenêtres spectrales incluant des absorptions de quelques molécules cibles. Notez les échelles verticales adaptées aux différents cadres.

verticale, la masse et la structure moléculaire de ces espèces.

Depuis le début des années 90, cet effort se poursuit dans le cadre du réseau mondial de surveillance de l'atmosphère terrestre NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change; <http://www.ndacc.org>). Inspirés par l'exemple du Jungfraujoch, des groupes de recherche ont progressivement installé des instruments FTIR ailleurs dans le monde. Aujourd'hui, des instruments sont en fonctionnement régulier à une vingtaine de stations, couvrant une large gamme de latitudes (de l'Arctique à l'Antarctique), de milieux régionaux (de continental à océanique), et de conditions environnementales (de désertiques à urbaines).

Dans cette contribution, nous proposons d'inventorier les gaz cibles actuellement surveillés au Jungfraujoch et de passer en revue quelques résultats-clés du groupe liégeois.

II. CONSTITUANTS ATMOSPHÉRIQUES SURVEILLÉS DEPUIS LE JUNGFRAUJOCH

Au cours des années, le nombre de constituants atmosphériques systématiquement surveillés n'a cessé de croître, ajoutant aux cibles traditionnelles accessibles aux premiers dispositifs instrumentaux de plus en plus de molécules présentant des absorptions faibles, parfois même inférieures au pourcent. Ceci a été rendu possible grâce aux efforts des chercheurs, aux progrès technologiques, mais aussi grâce à l'amélioration constante des paramètres spectroscopiques, qu'ils soient ou non distribués dans des compilations comme HITRAN (Rothman *et al.*, 2013), qu'ils concernent des raies résolues par les instruments actuels ou des signatures spectrales larges associées à des molécules lourdes, disponibles sous forme de sections efficaces ou de pseudo-raies.

Le Tableau 1 liste les quelques trente composés actuellement sous surveillance au Jungfraujoch. On y dénombre des constituants atmosphériques majoritaire (N_2) et minoritaires (CO_2 , CH_4 ...) ainsi que des gaz en trace. Ils y sont classés selon les problématiques environnementales qui justifient par priorité leur surveillance : les gaz à effet de serre (GES) en support au Protocole de Kyoto sur le réchauffement climatique, les gaz halogénés en support au Protocole de Montréal (1987) sur les substances appauvrissant la couche d'ozone, et enfin les composés pertinents pour

le programme Copernicus de l'Union Européenne (Copernicus Atmosphere Monitoring Service; CAMS) qui surveille la qualité de l'air de manière globale en exploitant de façon conjointe des simulations atmosphériques et des mesures obtenues en temps quasi réel.

L'exploitation à l'aide d'algorithmes dédiés des observations accumulées au Jungfraujoch permet de produire des séries temporelles qui, dans la plupart des cas, couvrent aujourd'hui plusieurs décennies. Ces séries temporelles constituent des outils extrêmement précieux pour caractériser l'évolution récente de l'atmosphère terrestre sous l'impact de phénomènes naturels, comme par exemple l'éruption volcanique majeure du Mont Pinatubo aux Philippines en septembre 1991. Il est aussi possible de mesurer l'influence des activités de l'homme sur son environnement direct, par exemple en terme de pollution de la troposphère, ou encore les changements dans la composition ou la circulation de la stratosphère. Nous pouvons en déduire les tendances à long terme, les variations saisonnières et inter-annuelles pour toutes ces familles de composés, l'interprétation des résultats étant facilitée par l'utilisation de modèles numériques performants.

Avant d'évoquer quelques exemples dans les sections suivantes, il est important de noter que la représentativité spatiale des séries temporelles déduites des observations IR réalisées au Jungfraujoch est très variable, s'étendant selon le gaz cible de l'échelle régionale à l'échelle continentale, hémisphérique, voire même globale. Cette représentativité est influencée en outre par la durée de vie atmosphérique de l'espèce en question, par le nombre, l'intensité et la dispersion géographique des sources d'émissions, la multiplicité des processus de destruction ou puits (réactions d'oxydation et de photolyse, absorption par les sols, capture végétative...). Il n'est dès lors pas possible de traiter de cet aspect dans le cadre du présent article, mais nous invitons les lecteurs intéressés à consulter les études multi-sites publiées par les chercheurs du réseau NDACC (p. ex., récemment, Bader *et al.*, 2017; Dammers *et al.*, 2015; Franco *et al.*, 2016a; Kohlhepp *et al.*, 2012; Kremser *et al.*, 2015; Mahieu *et al.*, 2014a; Té *et al.*, 2016; Vigoux *et al.*, 2015; Wang *et al.*, 2016).

A. Gaz à effet de serre (GES)

Historiquement, le méthane a été une des toutes premières espèces ciblées par le Pr Migeotte. Cependant,

Tableau 1. Inventaire des composés actuellement surveillés depuis la station du Jungfraujoch par la technique FTIR, classés par problématiques environnementales.

Gaz à effet de serre	H_2O , CO_2 , CH_4 , N_2O , CF_4 , SF_6	Support direct au Protocole de Kyoto
Liés à l'ozone atmosphérique	O_3 , NO , NO_2 , HNO_3 , $ClONO_2$, HCl , HF , COF_2 , $CFC-11$ (CCl_3F), $CFC-12$ (CCl_2F_2), $HCFC-22$ ($CHClF_2$), $HCFC-142b$ (CH_3CClF_2), CCl_4 , CH_3Cl	Support direct au Protocole de Montréal
Qualité de l'air	CO , CH_3OH , C_2H_6 , C_2H_2 , C_2H_4 , HCN , $HCHO$, $HCOOH$, NH_3	Support direct à Copernicus - CAMS
Autres	OCS , N_2 , dérivés isotopiques (HDO , $H_2^{18}O$)	Applications variées

le programme d'enregistrement systématique de spectres atmosphériques dans le domaine 2.8-23.7 μm a permis de sauvegarder des raies associées à bien d'autres molécules, dont celles des principaux gaz à effet de serre. C'est ainsi qu'outre l'abondance moyenne du CH_4 , celles de CO_2 et de N_2O ont également pu être extraites des spectres pionniers de 1950-51. Ces valeurs sont consignées en bas et à gauche des cadres correspondants de la Figure 2. Nous y reproduisons aussi les séries temporelles des colonnes mensuelles moyennes déduites des observations FTIR des trente dernières années pour

CO_2 , CH_4 et N_2O . Nous y incluons également la série temporelle de l'hexafluorure de soufre (SF_6), un composé synthétisé par l'industrie chimique, utilisé principalement comme fluide isolant dans des transformateurs à haute tension, et visé par le Protocole de Kyoto en raison de son très haut pouvoir de réchauffement global estimé à 23500 (IPCC, 2013), lui aussi surveillé depuis longtemps par les chercheurs liégeois (Zander *et al.*, 1991).

Il apparaît dès le premier regard que tous ces GES ont vu leur abondance augmenter de manière très im-

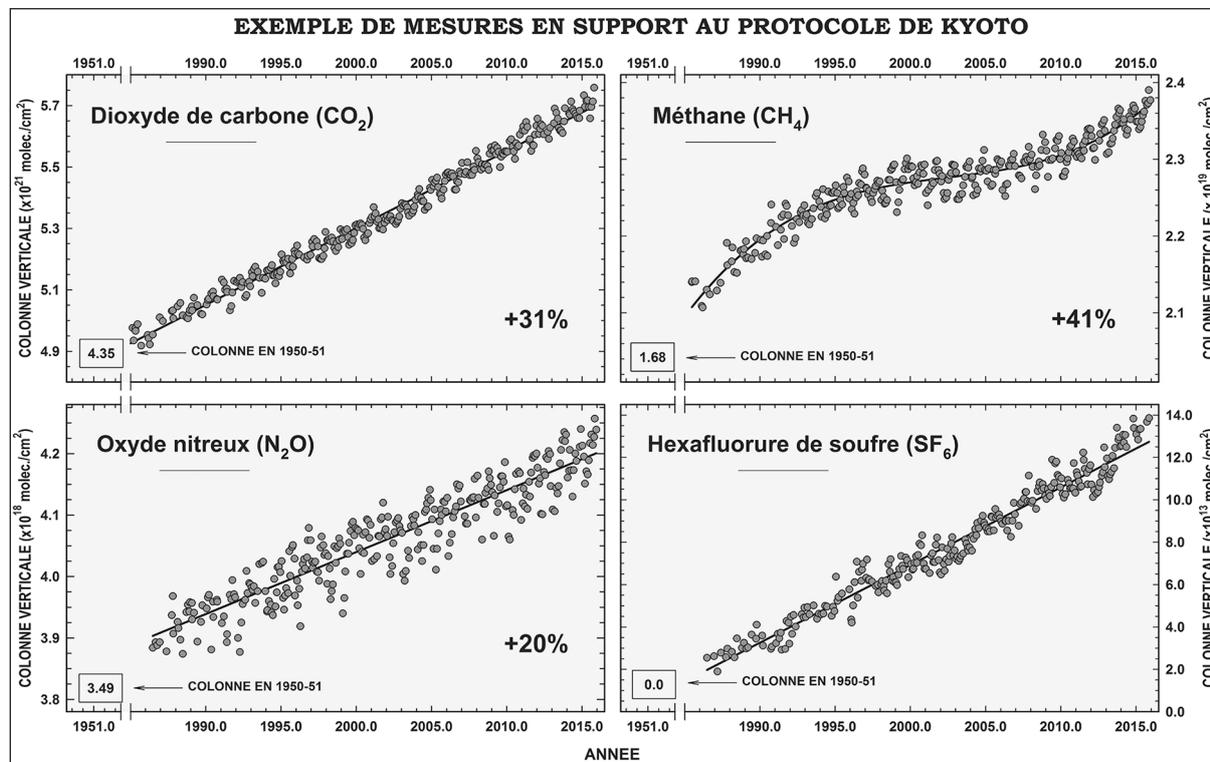


Figure 2. Abondances moyennes mensuelles déduites d'observations FTIR au Jungfraujoch pour quatre gaz à effet de serre visés par le Protocole de Kyoto : CO_2 , CH_4 , N_2O et SF_6 . Les colonnes moyennes déduites d'observations pionnières en 1950-51 sont fournies en bas à gauche de chaque cadre. Lorsque c'est pertinent, les augmentations cumulées relatives entre 1950-51 et la fin 2015 sont fournies sous forme de pourcentage; on obtient ainsi une augmentation des colonnes verticales totales de 31 % pour CO_2 , 41 % pour CH_4 et 20 % pour N_2O (mise à jour de Zander *et al.*, 2008).

portante et régulière au cours des dernières décennies. On ne note une variation significative des taux de croissance que pour le méthane, second GES anthropique après le CO_2 , pour lequel on observe notamment un plateau s'étendant de 2000 à 2005. Auparavant, les taux de croissance annuels ont été variables, culminant à 1 % dans les années 1980 (Zander *et al.*, 1989). Ces dix dernières années, la croissance cumulée du méthane a été voisine de 3 %, résultant notamment d'émissions associées à l'extraction du charbon ainsi qu'à la production de gaz naturel et de pétrole (Bader *et al.*, 2017). Considérant les moyennes mensuelles FTIR reproduites à la Figure 2, les taux de croissance pour CO_2 , N_2O et SF_6 déduits à l'aide de la méthode de ré-échantillonnage de Gardiner *et al.* (2008) s'élèvent respectivement à $(0.51 \pm 0.01) \%$ /an, $(0.26 \pm 0.01) \%$ /an et $(18.5 \pm 0.5) \%$ /an (intervalles de confiance de $2\text{-}\sigma$), en utilisant comme références les colonnes calculées pour 1984 ou 1986, selon la première année pour laquelle des données FTIR sont disponibles.

Comme l'indique le Tableau 1, un cinquième GES visé par le Protocole de Kyoto est également surveillé depuis le Jungfraujoch, le tétrafluorure de carbone (CF_4). Ce gaz possède une durée de vie estimée à plus de 50000 ans ! Principalement émis par l'industrie de l'aluminium, il a vu ses émissions réduites à 11 Gg/an depuis 1998, au lieu des 16 Gg/an auparavant (Mahieu *et al.*, 2014b), grâce à un meilleur contrôle de son processus de production par les industriels. Des efforts supplémentaires significatifs sont donc encore nécessaires pour stabiliser son contenu dans l'atmosphère terrestre.

B. Composés halogénés

Évaluer le succès du Protocole de Montréal sur les substances appauvrissant la couche d'ozone est une des priorités du réseau NDACC depuis sa création en 1990, et depuis plus longtemps encore au centre des travaux de recherche du groupe liégeois. Le domaine infrarouge est particulièrement adapté à la surveillance des espèces halogénées. Il contient en effet des signatures spectrales exploitables de nombre d'entre elles. Sont aujourd'hui systématiquement surveillés des gaz sources chlorés comme CCl_3F (CFC-11), CCl_2F_2 (CFC-12), CHClF_2 (HCFC-22) et CCl_4 . Le HCFC-142b (CH_3CClF_2 ; Mahieu *et al.*, 2016) vient de s'ajouter récemment à cette liste et des efforts sont en cours pour encore accroître l'éventail des gaz ciblés. Les

deux principaux réservoirs stratosphériques chlorés résultant de la photodissociation de ces sources sont eux aussi accessibles à la technique FTIR, à savoir HCl (Zander *et al.*, 1987) et ClONO_2 (nitrate de chlore; Zander et Demoulin, 1988), permettant de suivre l'évolution de la charge en chlore dans la stratosphère.

La Figure 3 reproduit la série complète de HCl, le principal composé chloré dans la stratosphère. Cette série, qui a permis de documenter l'évolution de HCl aux latitudes moyennes, est une référence mondiale, comme en témoigne son insertion récurrente dans les rapports sur la destruction de l'ozone stratosphérique de l'Organisation Météorologique Mondiale (par exemple WMO, 2014). L'impact des émissions massives de CFC qui ont eu lieu jusqu'à la fin des années 1980 est manifeste, avec une croissance de l'abondance de HCl de l'ordre de 4 %/an. Grâce au succès du Protocole de Montréal qui a réussi à réduire puis supprimer la production et l'utilisation des CFC, la colonne de HCl a atteint un maximum en 1996, avant de montrer une décroissance proche de 1 %/an. Quant à l'anomalie observée après 2007, caractérisée par une ré-augmentation de HCl jusqu'en 2011, elle a été expliquée par un ralentissement temporaire de la circulation atmosphérique dans l'hémisphère nord, ralentissement qui a conduit à une exposition plus longue des CFC au rayonnement UV, et donc à une conversion plus importante des CFC en HCl (Mahieu *et al.*, 2014a).

C. Polluants

La technique FTIR permet aussi la surveillance d'un nombre croissant de polluants organiques et précurseurs d'ozone troposphérique. Objet de toute notre attention, l'éthane est un composé qui permet de traquer les émissions associées à la production et au transport de pétrole ou de gaz naturel. La Figure 4 reproduit la série temporelle des colonnes totales moyennes journalières de l'éthane au-dessus du Jungfraujoch. Cette série, qui couvre la période 1985-2015, montre trois régimes distincts, caractérisés par une décroissance de -4.4 puis de -0.9×10^{14} molec./ cm^2 , respectivement pour 1985-1991 et 1992-2008, suivie depuis 2009 par une forte augmentation de 4.3×10^{14} molec./ cm^2 . Rapportées à la colonne moyenne d'éthane de 9.9×10^{15} molec./ cm^2 calculée pour 1985-2015, ces valeurs correspondent à des variations relatives de l'abondance

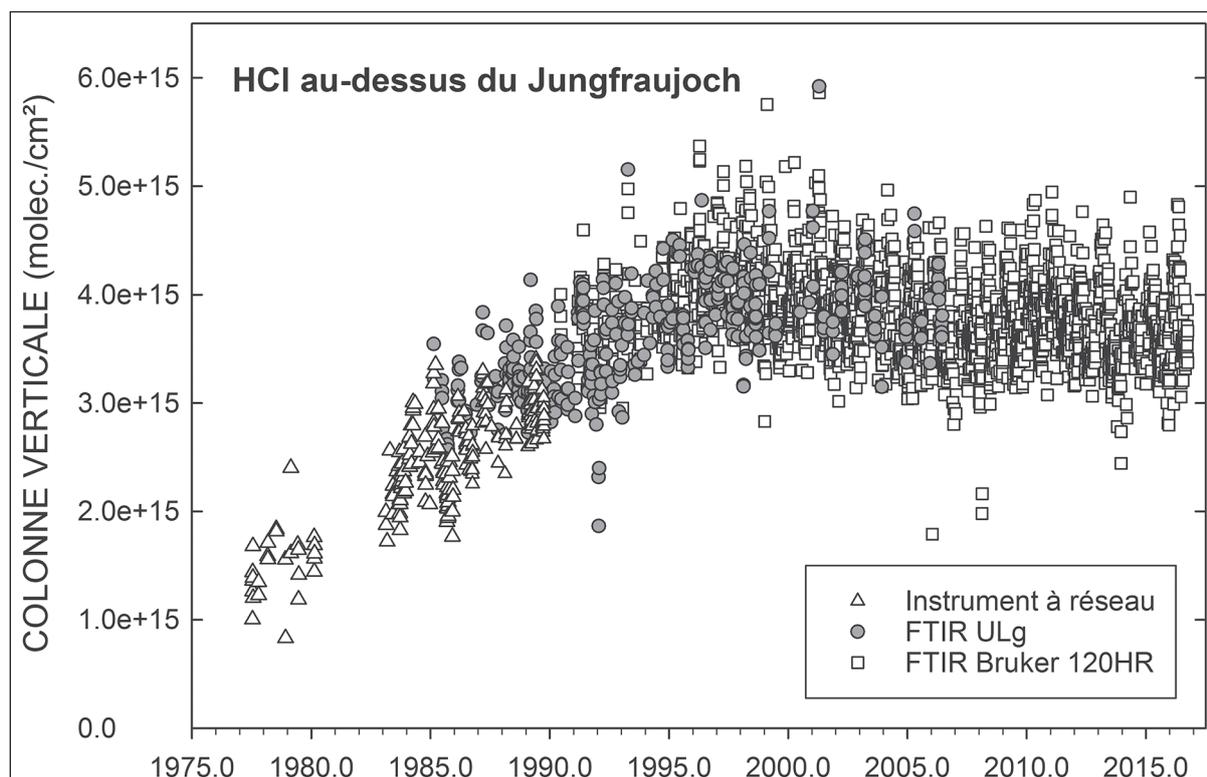


Figure 3. Série temporelle multi-décennale des colonnes journalières moyennes de HCl déduites des observations infrarouges réalisées à la station scientifique du Jungfraujoch. On note un recouvrement important entre les périodes de fonctionnement des instruments, permettant une inter-calibration précise et fiable des mesures.

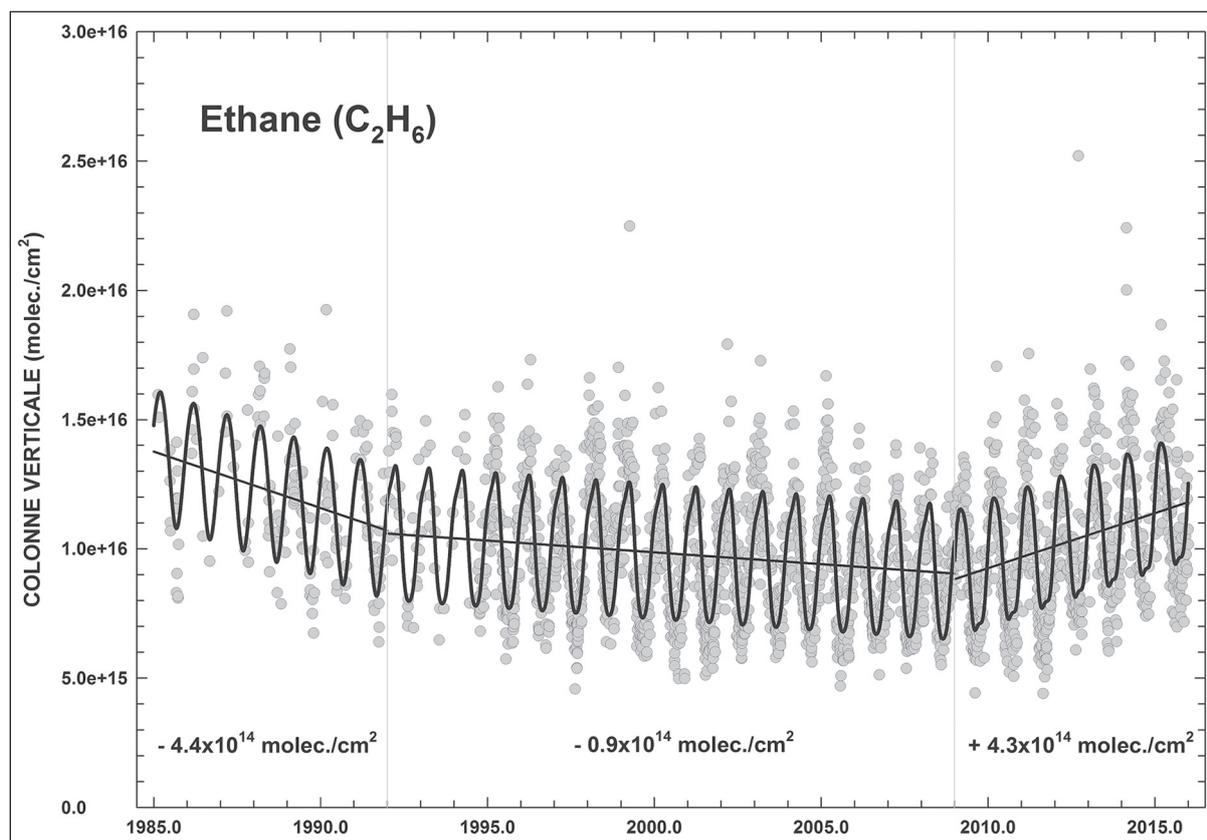


Figure 4. Série temporelle multi-décennale des colonnes journalières moyennes d'éthane déduites des observations FTIR réalisées à la station scientifique du Jungfraujoch (mise à jour de Franco *et al.*, 2015).

de l'éthane de $- (4.4 \pm 1.5) \%/an$, $- (0.9 \pm 0.2) \%/an$ et $+ (4.3 \pm 0.6) \%/an$ ($2-\sigma$). L'augmentation récente de C_2H_6 identifiée par Franco *et al.* (2015) est donc confirmée après l'ajout des données de 2015, alors que son amplitude reste statistiquement inchangée. Rappelons que Franco *et al.* (2015) avaient pointé l'exploitation massive des gaz de schiste (ou gaz de shale) aux États-Unis comme responsable de cette pollution, hypothèse confirmée par Franco *et al.* (2016a) sur base de mesures FTIR et de simulations relatives au continent américain.

D'autres études récentes menées par les chercheurs liégeois se sont attachées à caractériser les tendances à long terme de constituants affectant la capacité oxydante de la troposphère. Bader *et al.* (2014) ont étudié le méthanol (CH_3OH), mettant notamment en évidence une forte variation saisonnière influencée par l'activité de la végétation. Le formaldéhyde (HCHO) a fait l'objet d'une publication de Franco *et al.* (2016b). Cette étude a mis en évidence que l'évolution non monotone de l'abondance de HCHO et sa saisonnalité dans l'atmosphère libre étaient dominées par l'oxydation du méthane.

D. Oxysulfure de carbone (OCS)

Les raisons de surveiller l'abondance atmosphérique de l'oxysulfure de carbone sont nombreuses. En tant que composé soufré le plus présent dans la troposphère libre, il est considéré comme le principal vecteur de soufre vers la stratosphère, contributeur prédominant à la couche d'aérosols de Junge en l'absence d'éruptions volcaniques majeures, influençant ainsi le bilan radiatif de la terre. Dans la troposphère, OCS est, de même que CO_2 , capturé par la végétation, mais sans toutefois être libéré par la respiration végétale. Il offre ainsi des perspectives très prometteuses en tant qu'indicateur de la productivité primaire brute végétale. Malgré cela, beaucoup d'incertitudes subsistent quant à son bilan atmosphérique, à l'importance relative de ses puits et sources, et à la contribution des émissions anthropiques aux tendances observées tant dans la troposphère que dans la stratosphère.

Lejeune *et al.* (2016) ont amélioré la stratégie d'inversion d'OCS, permettant de produire une série temporelle de meilleure qualité. En minimisant notamment l'impact d'interférences comme la vapeur d'eau et le CO_2 sur les colonnes déduites, il

a été possible de restituer une variation saisonnière plus représentative. La Figure 5 montre la série des colonnes verticales totales déduites de toutes les observations FTIR disponibles entre 1984 et la mi-2015. Si l'abondance d'OCS est stable depuis 2009, il n'en a pas été de même auparavant, avec une décroissance observée entre 1984 et 2002, suivie d'une ré-augmentation jusqu'en 2008. Lejeune *et al.* (2016) ont montré que c'est la colonne troposphérique qui pilote les changements ainsi mis en évidence, OCS restant essentiellement stable dans la stratosphère. Les causes des tendances observées restent à ce jour l'objet de discussions, même si des liens ont été établis avec, notamment, les émissions anthropiques de soufre liées à l'utilisation du charbon.

III. CONCLUSION

Les quelques exemples rassemblés ici montrent sans ambiguïté que l'atmosphère terrestre est décidément loin d'être immuable. L'étude attentive des paramètres géophysiques déduits de la base de données IR soigneusement constituée au Jungfraujoch nous permet de souligner avec netteté l'impact de l'homme sur son environnement, de dissocier les effets des causes naturelles sur les changements observés, de manière à bien identifier et délimiter les responsabilités. Il nous revient ensuite de publier nos résultats dans la littérature scientifique, de participer à leur vulgarisation auprès d'un public aussi large que possible et de garantir leur prise en compte par les décideurs, par exemple en contribuant régulièrement à des rapports de synthèse.

La technique FTIR mise en œuvre sur le long terme est clairement un outil parfaitement adapté à cette mission de surveillance et de vigilance définie voici plus de 65 ans par le Prof. Migeotte. Le nombre de molécules ciblées n'a depuis cessé d'augmenter pour atteindre à ce jour le nombre de trente, et cette technique est encore loin d'avoir délivré tout son potentiel. Mais la poursuite de cet effort implique de toujours disposer d'instruments à la pointe du progrès, de personnel qualifié ainsi que d'un contexte propice à la recherche à long terme, offrant notamment des perspectives aux jeunes chercheurs appelés à nous remplacer.

Alors que les diverses menaces qui pèsent sur l'atmosphère terrestre sont loin de régresser, nous traversons des temps budgétairement difficiles, caractérisés par le démantèlement d'outils de fi-

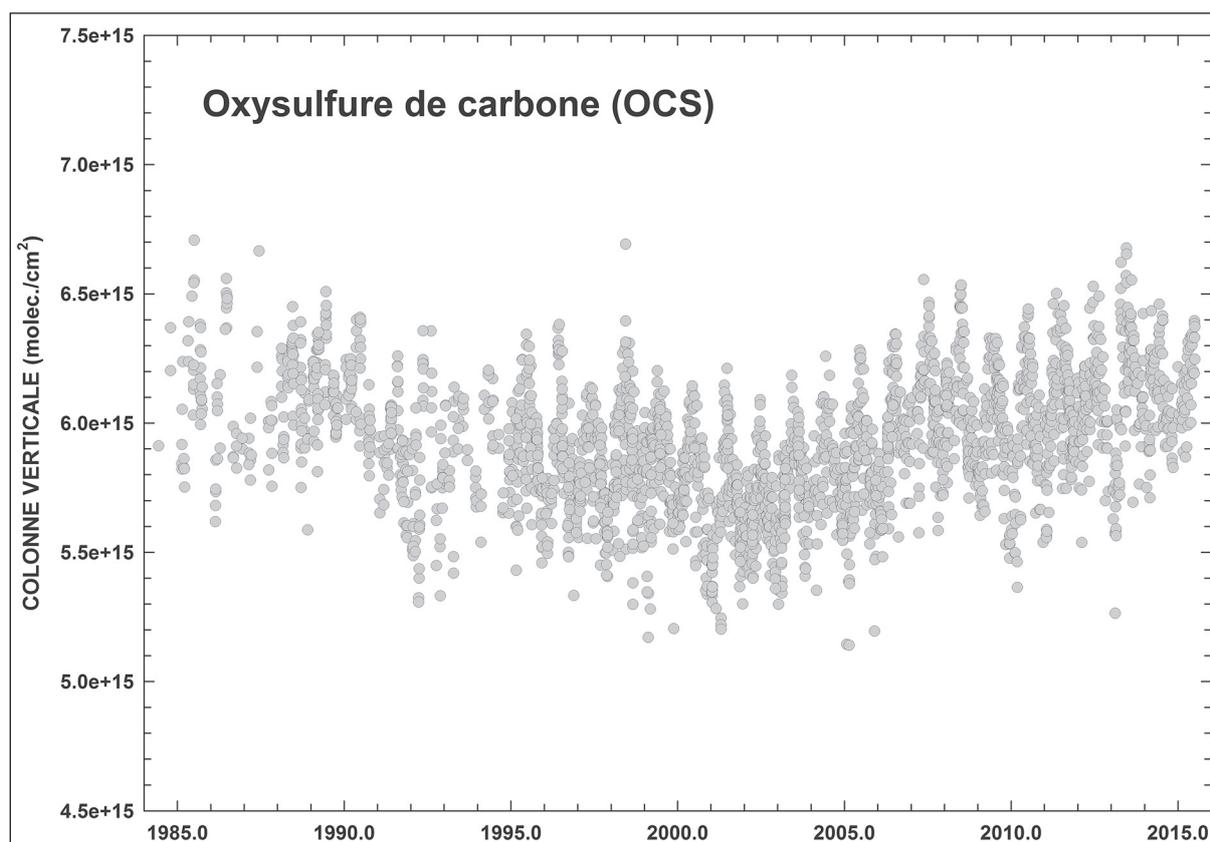


Figure 5. Évolution à long terme de l'abondance de l'oxysulfure de carbone au-dessus de la station du Jungfraujoch (mise à jour de Lejeune *et al.*, 2016).

nancement de la recherche comme BELSPO, ou encore par le sous-financement chronique du Fonds de la Recherche Scientifique – FNRS. Au moment de conclure, il nous faut donc malheureusement constater que nos activités sont aujourd'hui en réel danger du fait d'un sévère désinvestissement des pouvoirs publics. Les prochaines années s'annoncent décisives.

REMERCIEMENTS

Les travaux présentés ici ont reçu le soutien de BELSPO (programmes PRODEX et Science pour un Développement Durable), du F.R.S. – FNRS, de la Fédération Wallonie-Bruxelles, de l'Université de Liège, de la Commission Européenne (programmes-cadres successifs) ainsi que du programme GAW-CH de MétéoSuisse. Nous remercions la Fondation « High Altitude Research Stations Jungfraujoch & Gornergrat (HFSJG) » qui maintient l'infrastructure nécessaire à la poursuite des mesures au Jungfraujoch. Nous sommes reconnaissants envers les nombreux collègues qui ont participé à la collecte des observations IR à ce site.

Whitney Bader bénéficie d'une bourse Marie Skłodowska-Curie octroyée par le programme de recherche et d'innovation Horizon 2020 de la Commission Européenne (convention n° 704951). Bruno Franco est supporté par une bourse BeIPD-COFUND de l'Université de Liège et de la Commission Européenne (convention FP7-PEOPLE n°600405). Emmanuel Mahieu est chercheur qualifié F.R.S. – FNRS.

BIBLIOGRAPHIE

- Bader, W., Stavrou, T., Muller, J.-F., Reimann, S., Boone, C.D., Harrison, J. J., Flock, O., Bovy, B., Franco, B., Lejeune, B., Servais, C. & Mahieu, E. (2014). Long-term evolution and seasonal modulation of methanol above Jungfraujoch (46.5° N, 8.0° E): optimisation of the retrieval strategy, comparison with model simulations and independent observations. *Atmospheric Measurement Techniques*, 7(11), 3861-3872. <https://doi.org/10.5194/amt-7-3861-2014>
- Bader, W., Bovy, B., Conway, S., Strong, K., Smale, D., Turner, A. J., Blumenstock, T., Boone, C., Collaud Coen, M., Coulon, A., Garcia, O., Griffith, D.W.T.,

- Hase, F., Hausmann, P., Jones, N., Krummel, P., Murata, I., Morino, I., Nakajima, H., O'Doherty, S., Paton-Walsh, C., Robinson, J., Sandrin, R., Schneider, M., Servais, C., Sussman, R. & Mahieu, E. (2017). The recent increase of atmospheric methane from 10 years of ground-based NDACC FTIR observations since 2005. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(3), 2255-2277. <https://doi.org/10.5194/acp-17-2255-2017>
- Dammers, E., Vigouroux, C., Palm, M., Mahieu, E., Warneke, T., Smale, D., Langerock, B., Franco, B., Van Damme, M., Schaap, M., Notholt, J. & Erisman, J. W. (2015). Retrieval of ammonia from ground-based FTIR solar spectra. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(22), 12789-12803. <https://doi.org/10.5194/acp-15-12789-2015>
- Delbouille, L., & Roland, G. (1963). Photometric atlas of the solar spectrum from λ 7498 to λ 12016. *Mém. Soc. Roy. Sci. Liège*, Spécial vol 4.
- Delbouille, L., Roland, G., & Neven, L. (1973-1988). Photometric Atlas of the Solar Spectrum from λ 3000 to λ 10000. *Mém. Soc. Roy. Sci. Liège*, Special Vol., 1973-1988.
- Delbouille, L., & Roland, G. (1995). High-resolution solar and atmospheric spectroscopy from the Jungfraujoch high-altitude station. *Optical Engineering*, 34(9), 2736. <https://doi.org/10.1117/12.205676>
- Demoulin, P., Farmer, C.B., Rinsland, C.P., & Zander, R. (1991). Determination of absolute strengths of N₂ quadrupole lines from high-resolution ground-based IR solar observations. *Journal of Geophysical Research*, 96(D7), 13003-13008. <https://doi.org/10.1029/91JD01029>
- Franco, B., Bader, W., Toon, G.C., Bray, C., Perrin, A., Fischer, E. V., Sudo, K., Boone, C.D., Bovy, B., Lejeune, B., Servais, C. & Mahieu, E. (2015). Retrieval of ethane from ground-based FTIR solar spectra using improved spectroscopy: Recent burden increase above Jungfraujoch. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 160, 36-49. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2015.03.017>
- Franco, B., Mahieu, E., Emmons, L.K., Tzompa-Sosa, Z.A., Fischer, E.V., Sudo, K., Bovy, B., Conway, S., Griffin, D., Hannigan, J.W., Strong, K., & Walker, K.A. (2016a). Evaluating ethane and methane emissions associated with the development of oil and natural gas extraction in North America. *Environmental Research Letters*, 11(4), 44010. <https://doi.org/10.1088/1748-9326/11/4/044010>
- Franco, B., Marais, E. A., Bovy, B., Bader, W., Lejeune, B., Roland, G., Servais, C., & Mahieu, E. (2016b). Diurnal cycle and multi-decadal trend of formaldehyde in the remote atmosphere near 46° N. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(6), 4171-4189. <https://doi.org/10.5194/acp-16-4171-2016>
- Gardiner, T., Forbes, A., de Mazière, M., Vigouroux, C., Mahieu, E., Demoulin, P., Velasco, V., Notholt, J., Blumenstock, T., Hase, F., Kramer, I., Sussmann, R., Stremme, W., Mellqvist, J., Strandberg, A., Ellingsen, K. & Gauss, M. (2008). Trend analysis of greenhouse gases over Europe measured by a network of ground-based remote FTIR instruments. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(22), 6719-6727. <https://doi.org/10.5194/acp-8-6719-2008>
- IPCC, (2013) Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 1535 pp.
- Kohlhepp, R., Ruhnke, R., Chipperfield, M.P., De Mazière, M., Notholt, J., Barthlott, S., Batchelor, R.L., Blatherwick, R.D., Blumenstock, Th., Coffey, M.T., Demoulin, P., Fast, H., Feng, W., Goldman, A., Griffith, D.W.T., Hamann, K., Hannigan, J.W., Hase, F., Jones, N.B., Kagawa, A., Kaiser, I., Kasai, Y., Kirner, O., Kouker, W., Lindenmaier, R., Mahieu, E., Mittermeier, R.L., Monge-Sanz, B., Morino, I., Murata, I., Nakajima, H., Palm, M., Paton-Walsh, C., Raffalski, U., Reddmann, Th., Rettinger, M., Rinsland, C.P., Rozanov, E., Schneider, M., Senten, C., Servais, C., Sinnhuber, B.-M., Smale, D., Strong, K., Sussmann, R., Taylor, J.R., Vanhaelewyn, G., Warneke, T., Whaley, C., Wiehle, M., & Wood, S. W. (2012). Observed and simulated time evolution of HCl, ClONO₂ and HF total column abundances. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(7), 3527-3556. <https://doi.org/10.5194/acp-12-3527-2012>
- Kremser, S., Jones, N.B., Palm, M., Lejeune, B., Wang, Y., Smale, D., & Deutscher, N.M. (2015). Positive trends in Southern Hemisphere carbonyl sulfide. *Geophysical Research Letters*, 42. <https://doi.org/10.1002/2015GL065879>
- Lejeune, B., Mahieu, E., Vollmer, M.K., Reimann, S., Bernath, P.F., Boone, C.D., Walker, K.A., & Servais, C. (2016). Optimized approach to retrieve information on atmospheric carbonyl sulfide (OCS) above the Jungfraujoch station and change in its abundance since 1995. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 186, 81-95. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2016.06.001>
- Mahieu, E., Chipperfield, M.P., Notholt, J., Reddmann, T., Anderson, J., Bernath, P.F., Blumenstock, T., Coffey, M.T., Dhomse, S.S., Feng, W., Franco, B., Froidevaux, L., Griffith, D.W.T., Hannigan, J.W., Hase, F., Hossaini, R., Jones, N.B., Morino, I., Murata, I., Nakajima, H., Palm, M., Paton-Walsh, C., Russell III, J.M., Scheider, M., Servais, C., Smale, D., & Walker, K. A. (2014a). Recent Northern Hemisphere stratospheric HCl increase due to atmospheric circulation changes. *Nature*, 515(7525), 104-107. <https://doi.org/10.1038/nature13857>
- Mahieu, E., Zander, R., Toon, G.C., Vollmer, M.K., Reimann, S., Mühle, J., Bader, W., Bovy, B., Lejeune, B.,

- Servais, C., Demoulin, P., Roland, G., Bernath, P.F., Boone, C.D., Walker, K.A., & Duchatelet, P. (2014b). Spectrometric monitoring of atmospheric carbon tetrafluoride (CF_4) above the Jungfraujoch station since 1989: evidence of continued increase but at a slowing rate. *Atmospheric Measurement Techniques*, 7(1), 333-344. <https://doi.org/10.5194/amt-7-333-2014>
- Mahieu, E., Lejeune, B., Bovy, B., Servais, C., Toon, G.C., Bernath, P. F., Boone, C.D., Walker, K.A., Reimann, S., Vollmer, M.K., & O'Doherty, S. (2016). Retrieval of HCFC-142b (CH_2CClF_2) from ground-based high-resolution infrared solar spectra: Atmospheric increase since 1989 and comparison with surface and satellite measurements. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 186, 96-105. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2016.03.017>
- Migeotte, M., & Neven, L. (1950). Détection du monoxyde de carbone dans l'atmosphère terrestre, à 3580 mètres d'altitude. *Physica*, 16(4), 423-424. [https://doi.org/10.1016/0031-8914\(50\)90089-9](https://doi.org/10.1016/0031-8914(50)90089-9)
- Migeotte, M., Neven, L., & Swensson, J. (1956). The solar spectrum from 2.8 to 23.7 microns, part I: Photometric atlas. *Mém. Soc. Roy. Sci. Liège*, Spécial vol 1.
- Migeotte, M., Neven, L., Swensson, J., & Benedict, W. S. (1957). The solar spectrum from 2.8 to 23.7 microns — part II: Measures and identifications. *Mém. Soc. Roy. Sci. Liège*, Spécial vol 2.
- Molina, M.J., & Rowland, F.S. (1974). Stratospheric sink for chlorofluoromethanes: chlorine atom-catalysed destruction of ozone. *Nature*, 249(5460), 810-812. <https://doi.org/10.1038/249810a0>
- Rothman, L.S., Gordon, I.E., Babikov, Y., Barbe, A., Chris Benner, D., Bernath, P.F., Birk, M., Bizzocchi, L., Boudon, V., Brown, L.R., Campargue, A., Chance, K.V., Cohen, E.A., Coudert, L., Devi, V.M., Drouin, B.J., Fayt, A., Flaud, J.-M., Gamache, R.R., Harrison, J., Hartmann, J.-M., Hill, C., Hodges, J.T., Jacquemart, D., Jolly, A., Lamouroux, J., Le Roy, R.J., Li, G., Long, D.A., Lyulin, O.M., Mackie, C.J., Massie, S.T., Mikhailenko, S., Müller, H.S.P., Naumenko, O.V., Nikitin, A.V., Orphal, J., Perevalov, V., Perrin, A., Polovtseva, E.R., Richard, C., Smith, M.A.H., Starikova, E., Sung, K., Tashkun, S., Tennyson, J., Toon, G.C., Tyuterev, V.G. & Wagner, G. (2013). The HITRAN2012 molecular spectroscopic database. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 130, 4-50. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2013.07.002>
- Servais, C., Flock, O., & Demoulin, P. (2007). A new software framework specially designed for remote FTIR observation. Paper presented at the *NDACC Infrared Working Group Meeting*, Tenerife, Spain. <http://hdl.handle.net/2268/64605>
- Stolarski, R. S., & Cicerone, R. J. (1974). Stratospheric Chlorine: a Possible Sink for Ozone. *Canadian Journal of Chemistry*, 52(8), 1610-1615. <https://doi.org/10.1139/v74-233>
- Swensson, J. W., Benedict, W. S., Delbouille, L., & Roland, G. (1970). Photometric atlas of the solar spectrum from λ 7498 to λ 12016. A Table of Measures and Identifications. *Mém. Soc. Roy. Sci. Liège*, Spécial vol 5.
- Té, Y., Jeseck, P., Franco, B., Mahieu, E., Jones, N., Paton-Walsh, C., Griffith, D.W.T., Buchholz, R.R., Hadji, Lazaro, J., Hurtmans, D. & Janssen, C. (2016). Seasonal variability of surface and column carbon monoxide over the megacity Paris, high-altitude Jungfraujoch and Southern Hemispheric Wollongong stations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(17), 10911-10925. <https://doi.org/10.5194/acp-16-10911-2016>
- Vigouroux, C., Blumenstock, T., Coffey, M., Errera, Q., García, O., Jones, N. B., Hannigan, J.W., Hase, F., Liley, B., Mahieu, E., Mellqvist, J., Notholt, J., Palm, M., Persson, G., Schneider, M., Servais, C., Smale, D., Thölix, L., De Mazière, M. (2015). Trends of ozone total columns and vertical distribution from FTIR observations at eight NDACC stations around the globe. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(6), 2915-2933. <https://doi.org/10.5194/acp-15-2915-2015>
- von Muralt, A. (1951). *Zwanzig Jahre Hochalpine Forschungsstation Jungfraujoch* (Verlag Stämpfli & Cie). Bern: Verlag Stämpfli & Cie.
- Wang, Y., Deutscher, N.M., Palm, M., Warneke, T., Notholt, J., Baker, I., Berry, J., Suntharalingam, P., Jones, N., Mahieu, E., Lejeune, B., Hannigan, J., Conway, S., Mendonca, J., Strong, K., Campbell, J.E., Wolf, A., & Kremser, S. (2016). Towards understanding the variability in biospheric CO_2 fluxes: using FTIR spectrometry and a chemical transport model to investigate the sources and sinks of carbonyl sulfide and its link to CO_2 . *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(4), 2123-2138. <https://doi.org/10.5194/acp-16-2123-2016>
- WMO (World Meteorological Organization) (2014). Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2014, Global Ozone Research and Monitoring Project, Report N° 55, Geneva, Switzerland, 416 pp.
- Zander, R. (1975). Présence de HF dans la stratosphère supérieure. *Comptes Rendus Hebdomadaires Des Séances de l'Académie Des Sciences*, 281(12), 213-214. <http://hdl.handle.net/2268/187167>
- Zander, R., Roland, G., & Delbouille, L. (1977). Confirming the presence of hydrofluoric acid in the upper stratosphere. *Geophysical Research Letters*, 4(3), 117-120. <https://doi.org/10.1029/GL004i003p00117>
- Zander, R., Roland, G., Delbouille, L., Sauval, A., Farmer, C.B., & Norton, R.H. (1987). Column abundance and the long-term trend of hydrogen chloride (HCl) above the Jungfraujoch Station. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 5(4), 395-404. <https://doi.org/10.1007/BF00113902>
- Zander, R., & Demoulin, P. (1988). Spectroscopic evidence for the presence of the v4-Q branch of chlorine nitrate (ClONO_2) in ground-based infrared

- solar spectra. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 6(3), 191-200. <https://doi.org/10.1007/BF00053855>
- Zander, R., Demoulin, P., Ehhalt, D.H., & Schmidt, U. (1989). Secular increase of the vertical column abundance of methane derived from IR solar spectra recorded at the Jungfraujoch station. *Journal of Geophysical Research*, 94(D8), 11029. <https://doi.org/10.1029/JD094iD08p11029>
- Zander, R., Rinsland, C.P., & Demoulin, P. (1991). Infrared spectroscopic measurements of the vertical column abundance of sulfur hexafluoride, SF₆, from the ground. *Journal of Geophysical Research*, 96(D8), 15447-15454. <https://doi.org/10.1029/91JD01214>
- Zander, R., Mahieu, E., Demoulin, P., Duchatelet, P., Roland, G., Servais, C., De Mazière, M., Reimann, S., & Rinsland, C.P. (2008). Our changing atmosphere: Evidence based on long-term infrared solar observations at the Jungfraujoch since 1950. *Science of The Total Environment*, 391(2-3), 184-195. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2007.10.018>

Coordonnées des auteurs :

- | | |
|--|--|
| Emmanuel MAHIEU
Institut d'Astrophysique et de Géophysique
Université de Liège
Belgique
emmanuel.mahieu@ulg.ac.be | Bruno FRANCO
Institut d'Astrophysique et de Géophysique
Université de Liège
Belgique
Institute of Energy and Climate Research (IEK-8)
Forschungszentrum Jülich
Allemagne |
| Whitney BADER
Institut d'Astrophysique et de Géophysique
Université de Liège
Belgique
Department of Physics
University of Toronto
Ontario, Canada | Bernard LEJEUNE
Institut d'Astrophysique et de Géophysique
Université de Liège
Belgique |
| Benoît BOVY
Institut d'Astrophysique et de Géophysique
Université de Liège
Belgique | Maxime PRIGNON
Institut d'Astrophysique et de Géophysique
Université de Liège
Belgique |
| Philippe DEMOULIN
Institut Royal d'Aéronomie Spatiale de Belgique
Uccle, Belgique | Ginette ROLAND
Institut d'Astrophysique et de Géophysique
Université de Liège
Belgique |
| Olivier FLOCK
Institut d'Astrophysique et de Géophysique
Université de Liège
Belgique | Christian SERVAIS
Institut d'Astrophysique et de Géophysique
Université de Liège
Belgique |