Chapitre 5

Le rayonnement dans l'atmosphère 1 : le domaine solaire

5.1 Introduction

5.1.1 Structure thermique verticale moyenne de l'atmosphère



FIGURE 5.1 – Profil vertical moyen (moyenne annuelle et moyenne en latitude) de température dans le modèle « US-Standard atmosphere 1976 »

- De la surface (1000 hPa) à environ 10 km d'altitude (*tropopause* vers 250 hPa), la température décroît avec un gradient quasi-constant de -6.5 K/km : cette région qui concentre les 3/4 de la masse de l'atmosphère est appelée la *troposphère*.

– Au dessus de la tropopause s'étend une région plus stable appelée *stratosphère* où la température croît avec l'altitude jusqu'à environ 50 km (*stratopause* vers 1 hPa).

- Au dessus de la stratopause, la température recommence à décroître dans la $m\acute{e}$ sosphère et jusqu'à un second minimum vers 85 km d'altitude, définissant la $m\acute{e}so$ pause.

Troposphère, stratosphère et mésosphère font partie de l'*homosphère*, où les processus de mélange dominent et assurent une masse molaire de l'air constante, alors que dans l'*hétérosphère* les espèces diffusent selon leur masse propre. On montrera que la structure thermique verticale de l'atmosphère est déterminée par l'équilibre radiatif dans la stratosphère, mais qu'il est nécessaire de prendre en compte les flux non radiatifs pour expliquer l'équilibre de la troposphère.

5.1.2 Répartition spectrale de l'absorption

Les propriétés spectroscopiques des gaz atmosphériques sont liées à leur structure moléculaire. Par ordre d'énergie décroissante

Х	UV	visible	IR proche	IR lointain micro-ondes
photoionisation	photodissociation	transitions électronique	vibration	vibration-rotation
bandes (continuum)		raies de plus en plus complexe		le plus en plus complexes

Fenêtre atmosphérique dans le visible.

5.1.3 Espèces chimiques

L'abondance d'un constituant atmosphérique peut être caractérisée par son épaisseur réduite, Δz_i : c'est la hauteur de la colonne verticale qu'il occuperait à lui seul s'il était ramené au sol. Δz_i est défini par :

$$\Delta z_i \ n_{\rm air}(z=0) = \int_0^\infty n_i(z) \,\mathrm{d}z \tag{5.1}$$

où $n_{\rm air}(z=0) \approx 2.55 \times 10^{25}$ molécules m⁻³ est la concentration de l'air au sol à 15 °C. Dans les conditions standard de température (273,15 K) et de pression (1,013 × 10⁵ Pa), $n_{\rm air}(z=0) \approx 2.69 \times 10^{25}$ molécules m⁻³ est appelé **nombre de Loschmidt**. L'épaisseur réduite est donc le contenu intégré vertical du constituant divisé par la concentration de l'air à la surface. Exemples :

- pour l'air, on retrouve l'échelle de hauteur (**scale height**) : $\Delta z_{air} = kT/mg = H_{air} \approx 8 \text{ km}.$

– pour l'ozone : $\Delta z_{\text{ozone}} \approx 3 \,\text{mm}.$

Le rapport de mélange en volume $r_i(z) = n_i(z)/n_{air}(z)$ permet de caractériser la répartition verticale d'un minoritaire. Il s'exprime traditionnellement en **ppmv** (= 10^{-6} = parties par million en volume) ou **ppbv** (= 10^{-9} = parties par milliard en volume). Dans l'homosphère (jusqu'à la mésopause vers 90 km d'altitude), les espèces non actives chimiquement ou thermodynamiquement (changements de phase par exemple) sont en équilibre de mélange¹ et donc en rapport de mélange constant.

La distribution verticale d'un constituant et ses propriétés spectroscopiques induisent un couplage entre la répartition verticale de l'absorption et sa répartition spectrale.

Par rapport de mélange décroissant, en négligeant les espèces non actives radiativement (cf. fig. 5.2, p. 63) :

– Majoritaires mélangés

- N₂ représente 78 % du gaz atmosphérique;
- O₂ représente 21 % du gaz atmosphérique;

ce sont des molécules diatomiques symétriques possédant un seul mode de vibration ; leur spectre est pauvre en IR, d'où le rôle des minoritaires.

- Minoritaires radiativement actifs (la plupart triatomiques)

- H₂O, essentiellement troposphérique, de concentration très variable : rapport de mélange maximal de l'ordre de 0,01 et échelle de hauteur l'ordre de 2 km ($\Delta z_{\rm H_{20}} \approx 20 \,\mathrm{m}$);

^{1.} Au dessus de la mésopause, dans l'hétérosphère, les composés atmosphériques suivent des distributions verticales différentes liées à leur masse, et la masse molaire moyenne dépend de l'altitude.

- CO₂ (*cf.* fig. 6.1, p. 75) en rapport de mélange constant, moyenne annuelle ≈ 408 ppmv (janv 2018), en augmentation d'environ 0,5 % par an ($\Delta z_{CO_2} \approx 3,2 \text{ m}$);
- O₃, essentiellement stratosphérique $(r_{\text{max}} \approx 10^{-5}, \Delta z_{\text{O}_3} \approx 3 \text{ mm});$
- CH₄, en rapport de mélange constant dans la troposphère (1,85 ppmv);
- N₂O, CO, ... CFC (chloro-fluoro-carbones).



FIGURE 5.2 – Rapport de mélange des gaz atmosphériques d'intérêt radiatif (échelle logarithmique) : repérer le maximum sachant qu'hormis pour l'ozone, les rapports de mélange décroissent avec l'altitude (d'après GOODY (1995)).

5.1.4 Transmission globale de l'atmosphère



FIGURE 5.3 – Transmission globale de l'atmosphère : noter la forte absorption en UV et en infra-rouge tellurique, sauf dans la fenêtre IR (*cf.* fig. 5.4).

La transmission globale de l'atmosphère est (cf. fig. 5.3):

- négligeable pour les ultra-violets en dessous de 0,3 μm (absorption par $N_2,\,O_2$ et $O_3)\,;$

2018-2019-v.3355/3403



FIGURE 5.4 – Absorption en fonction de la longueur d'onde dans la fenêtre infra-rouge de l'atmosphère terrestre entre 8 et $12 \,\mu\text{m}$: noter les composés minoritaires absorbant dans cette fenêtre (O₃, CH₄ et les CFC).

- bonne dans le visible autour du maximum d'émission du flux solaire; l'absorption du flux solaire se fait donc essentiellement à la surface.
- très faible dans le domaine de l'infra-rouge tellurique. L'essentiel du rayonnement émis par la surface est donc absorbé par l'atmosphère, qui à son tour réémet vers l'espace et ... vers la surface : c'est le phénomène d'*effet de serre*. Il existe cependant une fenêtre entre 8 et 12 µm (*cf.* fig. 5.4) où la transmission est meilleure : ce sont les composés chimiques absorbant dans cette fenêtre infra-rouge qui vont présenter le plus fort potentiel d'augmentation de l'effet de serre. En effet, hors de cette fenêtre, l'absorption atmosphérique est pratiquement saturée.

5.2 Absorption du rayonnement solaire UV et visible

5.2.1 Rappel : maximum d'absorption et profil de Chapman cf. 4.1.2

Si le composé considéré présente une concentration qui décroît de façon exponentielle avec l'altitude, le maximum d'absorption se produit au niveau \hat{z} où l'épaisseur optique depuis le sommet de l'atmosphère atteint 1 (selon la direction de propagation). Cette hypothèse est applicable aux majoritaires (N₂ et O₂) qu'ils soient en équilibre de mélange (dans l'homosphère) ou de diffusion (dans l'hétérosphère), ainsi qu'à l'ozone au dessus de son maximum de concentration (échelle de hauteur voisine de 5 km). Elle permet d'estimer l'altitude de pénétration du flux solaire à 1/e en fonction de la longueur d'onde (*cf.* fig. 5.5).



FIGURE 5.5 – Pénétration du rayonnement solaire dans l'atmosphère en fonction de la longueur d'onde : altitude où le rayonnement est atténué d'un facteur 1/e.

domaine spectral	absorbant	\hat{z}
$\lambda < 100\mathrm{nm}$	N_2, O	$150\mathrm{km}$
$100\mathrm{nm} < \lambda < 200\mathrm{nm}$	O_2	$100\mathrm{km}$
$200\mathrm{nm} < \lambda < 300\mathrm{nm}$	O_3	$45\mathrm{km}$

Noter la pénétration de la raie Lyman α jusqu'à 80 km, car elle coïncide avec un minimum d'absorption de l'oxygène (d'après BRASSEUR et SOLOMON (1986)).

5.2.2 Taux de photodissociation

La probabilité qu'une molécule X soit photodissociée par l'absorption d'un photon pendant la durée dt est $J_X dt$ où J_X est le *taux de photodissociation* de la molécule X.

$$J_X = -\frac{1}{[X]} \frac{\mathrm{d}[X]}{\mathrm{d}t} \quad \text{en s}^{-1} \qquad \Rightarrow \quad \frac{\mathrm{d}[X]}{\mathrm{d}t} = -J_X[X] \tag{5.2}$$

Si le spectre d'absorption de la molécule couvre la bande $[\nu_1, \nu_2]$, $J_X = \int_{\nu_1}^{\nu_2} j_{X,\nu} d\nu$ où $j_{X,\nu}$ s'exprime en s⁻¹ Hz⁻¹. Le taux total est donc la somme des contributions de chacune des bandes d'absorption (*cf.* fig. 5.7, p. 67 et 5.10, p. 69).

Expression du taux de photodissociation

L'orientation du rayonnement intercepté par la molécule est indifférente, donc $j_{X,\nu}$ est proportionnel au flux sphérique photonique $q_{\nu}/h\nu$ et à la section efficace d'absorption $\sigma(\nu)$.

$$j_{X,\nu} = \eta_{\nu} \sigma(\nu) \frac{q_{\nu}}{h\nu}$$
 où

2018-2019-v.3355/3403

UPMC-M1

- $-\eta_{\nu}$ est le rendement quantique (proche de 1 sauf au bord de la bande),
- $-\sigma(\nu)$ est la section efficace d'absorption (en m²),
- $-h\nu$ l'énergie d'un photon (en J)
- et $q_{\nu} = \iint_{4\pi} L_{\nu}(\vec{u}) d^2 \Omega'$ le flux sphérique incident en W m⁻² Hz⁻¹.

Évaluation du taux de photodissociation au sommet de l'atmosphère

Si on néglige l'albédo de la Terre et la diffusion, seul le flux solaire direct est intercepté par les molécules. La luminance est donc nulle en dehors de la direction du Soleil, vu sous un angle solide Ω'_S depuis la Terre.

$$q_{\nu}(z=\infty) = \iint_{4\pi} L_{\nu}(\vec{\Omega'}) d^{2}\Omega' = L_{\nu,\text{Soleil}} \Omega'_{S} \quad \text{où} \quad \Omega'_{S} = \frac{\pi R_{S}^{2}}{D_{TS}^{2}}$$
$$q_{\nu}(z=\infty) = \frac{\pi R_{S}^{2}}{D_{TS}^{2}} L_{\nu,S} = \frac{R_{S}^{2}}{D_{TS}^{2}} M_{\nu,S}$$
$$j_{\nu}(\infty) = \eta_{\nu} \left(\frac{R_{S}}{D_{TS}}\right)^{2} \frac{M_{\nu,S} \sigma(\nu)}{h\nu}$$

5.2.3 Absorption par l'oxygène moléculaire



FIGURE 5.6 – Section efficace d'absorption de l'oxygène moléculaire (Franck LEFÈVRE, LATMOS, communication personnelle)

domaine spectral		$\sigma_{\rm max}$ en m ²
$\lambda < 130 \ \mathrm{nm}$	continuum d'ionisation	$qq \ 10^{-21} m^2$
$130\mathrm{nm} < \lambda < 170\mathrm{nm}$	continuum de Schumann Runge	$qq \ 10^{-21} m^2$
$170\mathrm{nm} < \lambda < 200\mathrm{nm}$	bandes de Schumann Runge	$qq \ 10^{-23} m^2$
$200\mathrm{nm} < \lambda < 250\mathrm{nm}$	continuum de Herzberg	$5 \times 10^{-27} \mathrm{m}^2$

À 150 nm, vers le maximum du continuum de Schumann Runge, pour un soleil au zénith, l'épaisseur optique de 1 est atteinte pour un contenu intégré en dioxygène de $N_{\rm O_2} = 1/\sigma \approx 10^{21} \,\mathrm{m}^{-2}$. Avec des hypothèses très simplifiées, cela correspond à une altitude de 122 km.



FIGURE 5.7 – Taux de photodissociation du dioxygène J_{O_2} en s⁻¹ pour le Soleil au zénith, d'après GOODY (1995) : les bandes de Schumann-Runge constituent la contribution dominante, sauf en très haute atmosphère où intervient le continuum ; noter aussi la contribution de la raie Lyman- α du Soleil.

5.2.4 Absorption par l'ozone



FIGURE 5.8 – Section efficace d'absorption de l'ozone (Franck LEFÈVRE, LATMOS, communication personnelle)

domaine spectral	bandes	$\sigma_{ m max}$
$200\mathrm{nm} < \lambda < 310\mathrm{nm}$	Hartley	$10^{-21} \mathrm{m}^2$
$310\mathrm{nm} < \lambda < 350\mathrm{nm}$	Huggins	$10^{-23} \mathrm{m}^2$
$400\mathrm{nm} < \lambda < 800\mathrm{nm}$	Chappuis	$5 \times 10^{-25} \mathrm{m}^2$



FIGURE 5.9 – Comparaison de l'absorption par le dioxygène et l'ozone : les sections efficaces d'absorption ont été pondérées par le rapport de mélange. Le basculement se situe vers 200 nm (d'après BRASSEUR et SOLOMON (1986)).

5.2.5 Cycle de Chapman simplifié de l'ozone

$$\begin{array}{ccccc} O_2 + h\nu & \longrightarrow & O + O & & (J_{O_2}) \\ O_3 + h\nu & \longrightarrow & O_2 + O^* & & (J_{O_3}) \\ O_2 + O^* + M & \longrightarrow & O_3 + M + \Delta W & (k_2) \\ O + O_3 & \longrightarrow & 2O_2 & & (k_3) \end{array}$$

En ne gardant que les deux réactions les plus rapides :

$$\begin{array}{cccc} O_3 + h\nu & \longrightarrow & O_2 + O^* & (J_{O_3}) \\ \hline O_2 + O^* + M & \longrightarrow & O_3 + M + \Delta W & (k_2) \\ \hline O_3 + h\nu & \longrightarrow & O_3 + \Delta W & (\Delta W = 24 \, \text{kcal/mole}) \end{array}$$

Bilan chimique nul : transformation de rayonnement solaire en énergie interne (chaleur), qui sera évacuée par rayonnement infra-rouge de l'atmosphère.

$$\frac{d[O_3]}{dt} = k_2[O_2][O][M] - J_{O_3}[O_3]$$

La concentration d'ozone à l'équilibre photochimique est donc donnée par :

$$J_{O_3}[O_3] = k_2[O_2][O][M]$$

Mais la concentration en oxygènes impairs $[O_x] = [O] + [O_3]$ est conservée dans chacune des deux réactions rapides; les deux autres réactions doivent aussi assurer un bilan équilibré des oxygènes impairs.

$$2J_{O_2}[O_2] = 2k_3[O][O_3]$$

UPMC-M1

On en déduit la concentration d'ozone à l'équilibre photochimique, qui dépend du taux de photodissociation du dioxygène (cf. fig. 5.7) mais aussi de celui de l'ozone (cf. fig. 5.10)...

$$[O_3]^2 = \frac{k_2 J_{O_2}}{k_3 J_{O_3}} [O_2]^2 [M]$$

Ce modèle très simplifié surestime l'ozone, car il néglige les puits d'ozone associés aux espèces chlorées et la chimie hétérogène. De plus, il ne prend pas en compte les phénomènes dynamiques, essentiels pour expliquer la répartition en latitude de l'ozone.

Contenu intégré d'ozone

On définit l'«*unité Dobson*» (**D.U.**) par 1 Dobson = 0,01 mm d'ozone en épaisseur réduite. $\Delta z_{O_3} \approx 3 \text{ mm}$, soit 300 Dobson, d'où le contenu intégré :

$$N_{\rm O_3} = \int_0^\infty n_{\rm O_3}(z) \, \mathrm{d}z = n_{\rm air}(0) \Delta z_{\rm O_3}$$

$$N_{\rm O_3} = 2.7 \times 10^{25} \,\mathrm{m}^{-3} \times 3 \times 10^{-3} \,\mathrm{m} = 8.1 \times 10^{22} \,\mathrm{m}^{-2}$$



FIGURE 5.10 – Taux de photodissociation de l'ozone J_{O_3} en s⁻¹ en fonction de l'altitude pour le Soleil au zénith, d'après GOODY (1995). La différence d'ordre de grandeur avec celui de l'oxygène, fig. 5.7, p. 67 est due principalement à la croissance rapide du rayonnement solaire entre le domaine spectral UV où absorbe le dioxygène et celui où absorbe l'ozone.

5.2.6 Taux de chauffage stratosphérique par l'ozone

Répartition verticale de l'ozone

Largement au dessus du maximum, on peut représenter *très grossièrement* la répartition verticale de l'ozone par un profil exponentiel d'échelle de hauteur $H_{O_3} \approx 5$ km.

 $[O_3] = [O_3](30 \text{ km}) \exp\left[-\frac{(z-30 \text{ km})}{H_{O_3}}\right] \quad z \ge 30 \text{ km} \quad \text{avec} \quad [O_3](30 \text{ km}) \approx 3 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$

Alors, le contenu intégré au dessus de z se calcule simplement :

pour
$$z \ge 30 \,\mathrm{km}$$
 $N_{\mathrm{O}_3}(z,\infty) = H_{\mathrm{O}_3}[\mathrm{O}_3](z) \approx 1.5 \times 10^{22} \,\mathrm{m}^{-2} \exp\left[-\frac{(z-30 \,\mathrm{km})}{H_{\mathrm{O}_3}}\right]$

À l'aide de ces approximations, on montre que le maximum du taux de chauffage par l'ozone se situe vers $50 \,\mathrm{km}$ d'altitude et atteint $11,5 \,\mathrm{K}\,\mathrm{jour}^{-1}$.

5.3 Rôle de la diffusion et de l'albédo de la surface dans l'UV et le visible

5.3.1 Différentes contributions au flux sphérique

Le flux sphérique spectral q_{ν} qui cumule les rayonnements issus de toutes les directions (*cf.* fig. 5.11) est le paramètre pertinent pour la photochimie.

Les figures 5.12, 5.13 et 5.14 représentent le rapport $\Phi_{\nu}/\Phi_{\nu}(\infty)$ du flux sphérique spectral à sa valeur au sommet de l'atmosphère en fonction de l'altitude. Le spectre est échantillonné à plusieurs longueurs d'onde de 240 nm (courbe A) à 700 nm (courbe N), dans l'ultra-violet et le visible : la source est donc solaire.

5.3.2 Sans diffusion multiple, ni albédo

Dans un premier temps, la surface est considérée comme totalement absorbante ($A_{\text{surf.}} = 0$) et la diffusion multiple est négligée (*cf.* fig. 5.12).

Absorption par l'ozone : essentiellement dans la stratosphère

- bandes de Hartley (courbes A à F) avec un maximum vers 250 nm, pas de pénétration du flux en dessous de l'altitude du maximum d'ozone
- bandes de Huggins (courbes G à I)
- bandes de Chappuis (courbes K à N) avec un maximum à 600 nm (courbe M), pénétration jusqu'à la surface

Altitude du maximum de taux d'absorption $\frac{dq_{\nu}}{dz}$: au point d'inflexion de la courbe $q_{\nu}(z)/q_{\nu}(\infty)$. Dans le cas d'un absorbant à profil vertical exponentiel, ce maximum correspond à une épaisseur optique de 1 (*cf.* profil de Chapman, § 4.1.2, p. 40).

Atténuation par diffusion Rayleigh et aérosols : essentiellement dans les couches denses donc en troposphère.

Forte dépendance en longueur d'onde pour la diffusion Rayleigh.





- A rayonnement direct
- B rayonnement diffusé une fois (ou plus si diffusion multiple)
- C rayonnement diffusé puis réfléchi
- D rayonnement réfléchi

d'après BRASSEUR et SOLOMON (1986).

5.3.3 Effet de la diffusion multiple

La prise en compte de la diffusion multiple (*cf.* fig. 5.13) ne peut être efficace que pour le flux parvenant dans les basses couches (denses), donc on observe peu d'effet en UV (courbes A à F). Puis, la compétition entre la décroissance de l'absorption par l'ozone et la diminution de l'efficacité de la diffusion Rayleigh ($\propto \lambda^{-4}$) aboutit à un renforcement maximal de l'ordre de 1,5 vers 360 nm (courbe J), plus faible longueur d'onde à laquelle l'ozone n'absorbe plus. L'augmentation du flux est quasi-uniforme en altitude, sauf près de la surface, considérée ici comme absorbante.

5.3.4 Effet de l'albédo de la surface

Pour les longueurs d'onde pénétrant jusqu'à la surface, le sol se comporte comme une source secondaire diffuse (*cf.* fig. 5.14 p. 74), qui permet une homogénéïsation verticale de $q_{\nu}(z)$. Noter que le flux sphérique dans la stratosphère peut être affecté par l'albédo de la surface et plus généralement des basses couches (nuages), ce qui peut créer un couplage entre la couverture nuageuse ou neigeuse et la photochimie stratosphérique (par exemple pour l'ozone dans les bandes de Chappuis).

2018-2019-v.3355/3403



FIGURE 5.12 – Flux sphérique spectral sans diffusion multiple ni albédo : rapport au flux en haut de l'atmosphère pour différentes longueurs d'onde (d'après BRASSEUR et SOLOMON (1986)).

5.4 Simplification de l'équation du transfert radiatif suivant les domaines spectraux

5.4.1 Fonction source suivant les domaines spectraux

 $\lambda < 4 \,\mu m$ Rayonnement solaire : négliger l'émission Séparer les contributions :

- flux direct (μ_0, φ_0) monodirectionnel
- rayonnement diffusé une fois $\omega_s p_{\nu}(\tau_{\nu}, \mu_0, \varphi_0, \mu, \varphi)$
- rayonnement diffusé plusieurs fois, donc issu de toutes les directions possibles (la diffusion multiple ne se développe que dans les milieux denses, où la probabilité de rencontrer un élément diffusant, molécule ou particule, est élevée : donc dans les très basses couches de l'atmosphère et dans les nuages denses).
- les phénomènes de réflexion diffuse à la surface ou sur les nuages denses peuvent être pris en compte en tant que sources secondaires caractérisées par leur albédo.
- $\lambda > 4 \,\mu m$ Rayonnement infra-rouge tellurique : négliger la diffusion
 - une source localisée : émission de la surface (corps noir) isotrope et atténuation $L_{\text{surf.}}(\tau_{\nu}, \mu, \varphi) = B_{\nu}(T_{\text{surf.}}) \exp[-(\tau_{\text{surf.}} \tau_{\nu})/\mu)]$

UPMC-M1



FIGURE 5.13 – Flux sphérique avec diffusion multiple sans albédo : rapport au flux sans diffusion ni albédo en haut de l'atmopshère (d'après BRASSEUR et SOLOMON (1986)).

– une source répartie : émission atmosphérique isotrope $J_{\text{atm.}}(\tau_{\nu}, \mu, \varphi) = B_{\nu}(T_{\tau_{\nu}})$

5.4.2 Simplification suivant les domaines spectraux

λ	UV	VISible	IR proche	IR tellurique
Source	solaire			tellurique
Absorption	O_2, O_3	non (fenêtre)	H_2O	$CO_2, H_2O, O_3, nuages$
Diffusion	oui			négligeable
ω_s	$0 < \omega_s < 1$	$\omega_s = 1$	$0 < \omega_s < 1$	$\omega_s = 0$



FIGURE 5.14 – Flux sphérique avec diffusion multiple et albédo rapport au flux sans diffusion ni albédo en haut de l'atmosphère (d'après BRASSEUR et SOLOMON (1986)).