

N° d'ordre : 41273

# Université Lille 1

## Sciences et Technologies

THESE

Présentée pour l'obtention du grade de :  
Docteur de l'Université de Lille 1

Spécialité :

Sciences de la Matière, du Rayonnement et de l'Environnement

Par

Augustin MORTIER

## **Tendances et variabilités de l'aérosol atmosphérique à l'aide du couplage Lidar/ Photomètre sur les sites de Lille et Dakar**

Thèse soutenue le 17 décembre 2013 devant le jury composé de :

J. PELON	Directeur de Recherche CNRS	LATMOS, Paris 6	Rapporteur
M. SCHULZ	Directeur de Recherche	MET Norway	Rapporteur
E. CUEVAS	Directeur de Recherche	AEMET, Ténérife	Examineur
P. LAJ	Physicien des Observatoires	LGGE, Grenoble 1	Examineur
S. VICTORI	Responsable Département R&D	CIMEL Advanced Monitoring	Examineur
Y. DERIMIAN	Chargé de Recherche CNRS	LOA, Lille 1	Examineur
P. GOLOUB	Professeur	LOA, Lille 1	Directeur de Thèse

**Laboratoire d'Optique Atmosphérique**  
U.F.R de Physique  
Université Lille 1 – Sciences et Technologies  
59655 Villeneuve d'Ascq  
France



*We've taken the world apart but we have no idea what to do with the pieces.*

CHUCK PALAHNIUK



# Résumé

Au delà de leur impact sur la qualité de l'air que nous respirons et sur la santé, les aérosols atmosphériques constituent une des pièces maîtresses de la machine climatique. De fortes incertitudes demeurent aujourd'hui encore (IPCC, 2013) du fait de la grande diversité de leurs propriétés, de leurs multiples interactions avec le rayonnement et les nuages, ainsi que de leur grande variabilité spatio-temporelle. Dans ce contexte, la mise en place d'un suivi sur le long terme est fondamentale.

En 2006, le LOA a enrichi les observations photométriques qu'il conduisait, avec la mise en place de micro-lidars sur les sites de Lille et Dakar. Notre travail porte sur l'analyse à multi-échelle temporelle de ces mesures complémentaires pour détecter d'éventuelles tendances et évaluer la variabilité des aérosols. Ces observations incluent aussi des évènements extrêmes (éruption de l'Eyjafjöll, 2010). L'exploitation de cette base de données riche et originale a nécessité le développement et la mise en oeuvre d'un algorithme opérationnel (BASIC), combinant profils verticaux et mesures photométriques. Ces travaux présentent un intérêt pour la communauté française, en particulier dans le cadre du système d'observation ORAURE et du futur réseau de surveillance de Météo France.

Nos travaux nous ont permis de préciser l'impact radiatif des aérosols. Nos résultats ont également été utilisés pour une étude de validation des profils de CALIOP et pour une première évaluation du modèle NMMB/BSC-Dust en Afrique.

Enfin, nous présentons les premiers résultats d'un système mobile permettant l'étude de la variabilité spatiale aérosol à haute résolution, déployé pendant la campagne DRAGON (USA, 2011).

## Mots-Clefs

Atmosphère, Aérosols, Télédétection, Lidar, Photomètre, Forçage Radiatif, Climat, Variabilité, Tendances



# Abstract

Beyond their impact on air quality affecting health, atmospheric aerosols are a key parameter of the climate. Large uncertainties remain (IPCC, 2013) due to their type versatility, radiative and clouds interactions and their strong variability in space and time. In light of this, a long-term observation is highly required.

In 2006, the LOA reinforced sunphotometer observations with two micro-lidars in two contrasted sites : Lille and Dakar. In this work, we analyse these complementary observations at multiple time scale in order to highlight trends and provide a variability estimation. These observations include detection of extreme events (volcanic ash from Eyjafjöll, 2010). The analysis of the unique and large database is based on the development of an automatic algorithm (BASIC) combining vertical profiles and sunphotometer measurements. This work is particularly relevant and of interest in the current and future context of observation systems (ORAURE, Météo France).

Our results are used to provide a better determination of aerosols radiative effect. Our whole database has been used faced to vertical profiles from the CALIOP spaceborne lidar and for a first evaluation of the NMMB/BSC-Dust model in Africa during one year.

Finally, we present first results of a mobile ground-based remote sensing system, providing high space resolution capability to monitor aerosol properties, deployed during DRAGON campaign (USA, 2011).

## Key Words

Atmosphere, Aerosols, Remote Sensing, Lidar, Sunphotometer, Radiative Impact, Climate, Trends, Variability



# Remerciements

Ce sont les doigts délestés, des quelques pages qui vous attendent, que je vais pouvoir enfin remercier les nombreuses personnes sans lesquelles ce travail n'aurait pas pu voir le jour.

Reposant en grande partie sur l'exploitation de données, je remercie tout d'abord ceux, qui ont contribué de près ou de loin, à la fourniture de ces données. Pour débiter de manière relativement impersonnelle, je pense donc notamment aux organismes AERONET pour la télédétection passive et plus spécifiquement au Système d'Observation PHOTONS, chargé de la qualité des données et du maintien instrumental sur les deux principaux sites (parmi bien d'autres) étudiés dans ce travail. Concernant les mesures in situ, les données du site de Lille proviennent de l'association Atmo Nord-Pas-De-Calais et du LISA pour les mesures Africaines. La maintenance des instruments de télédétection sur le site Africain est réalisée par l'Institut de Recherche et de Développement du Sénégal.

De manière plus personnelle, je souhaiterais en premier lieu remercier Philippe Goloub avec qui j'ai débuté cette aventure scientifique en Master 2. Vous m'avez, premièrement, donné l'envie de m'engager dans cette voie et vous m'avez, par la suite, accompagné et aidé sur de nombreux points, tout au long de ces trois dernières années bien remplies. J'espère que ce premier accomplissement n'est que le début d'une prochaine longue collaboration.

Merci, à Frédéric Parol, directeur du LOA, qui m'a, entre autres, permis d'effectuer cette thèse dans d'excellentes conditions de travail. Plus généralement, je remercie l'ensemble des membres du laboratoire, qui contribuent chaque jour à la bonne ambiance générale.

En particulier, Thierry Podvin et Luc Blarel, avec qui j'ai partagé de bons moments durant les campagnes de mesures sur différents continents. Nous avons mis en évidence à de maintes reprises la fameuse loi de Murphy. À cette même occasion, je remercie Brent Holben ainsi que ses fils Sam et Travis pour l'accueil (et le lit) qu'ils m'ont réservés lors de la campagne de mesures DRAGON à Washington-DC en juillet 2010. Merci également au directeur de l'IRD Aboudacry Diallo et à Thierno N'Diare pour leur aide et leur accueil chaleureux lors de notre mission à Mbour (promis, plus d'escapade nocturne...).

Je remercie l'ex-directeur de l'équipe aérosols, Didier Tanré, qui a participé au développement de la thématique Lidar au sein du laboratoire et avec qui j'ai pu échanger

scientifiquement, tout comme avec Yevgeny Derimian avec qui j'ai pu collaborer directement, notamment sur l'épisode du volcan islandais (que je remercie également puisqu'il nous a offert un cas d'étude exceptionnel!).

Ce travail n'aurait pu exister en l'état sans le soutien primordial de l'équipe informatique : Christine Deroo (gestion de la base de données, automatisation des procédures LiDAR, ...), Fabrice Ducos (pour l'extraction des données CALIOP) et bien-sûr Romain De Filippi qui est aujourd'hui un véritable ami (et le chanteur officiel de notre groupe qui cumule pas moins de deux répétitions!).

Merci également à Sarah Basart pour les échanges d'idées et de données que nous avons pu avoir concernant les modèles atmosphériques.

La vie d'un laboratoire ne se limite pas à la science, et j'en profite donc pour remercier les secrétaires Marie-Lyse Liévin et Anne Priem pour le soutien logistique qu'elles m'ont apporté, ainsi qu'Isabelle Favier pour tous les bons gâteaux que j'ai eu la chance de goûter.

Bien évidemment, je remercie la team : Rudy (good luck in UK), Marine (courage, c'est la fin), Fanny (je sais, le bureau va être bien vide sans moi...), Pierre-Sébastien, Adrien, Quentin, Anne Burlet-Parendel et Lucia pour tous les moments mémorables passés autour d'un café, d'un plateau de restau-U, d'un footing ou de la fameuse bière du jeudi soir. Je n'ai ni le temps, ni la place de vous consacrer un paragraphe à tous, comme certains me l'avait commandé, mais cela ne minimise pas tout le bien que je pense de vous. La vie au labo n'aurait certainement pas eu la même saveur sans vous.

La pratique de la gymnastique a tenu une part très importante dans ma vie et a contribué à mon équilibre, relatif selon certains. Merci, entre autres, à mon coach Amar et à mon coéquipier Mils pour tous ces moments partagés. Votre présence lors de ma soutenance m'a fait grand plaisir.

L'équilibre repose également beaucoup sur ses amis. Je profite de ces quelques lignes pour remercier mes amis de longue date, Justine et Flo, qui ont également pu faire le déplacement en ce jour spécial. Merci à mon ami de très longue date, Cyril, pour tous les moments de décompression, d'évasion et de folie qu'on a pu partager. Que l'aventure continue!

Noémie, même si nos chemins se sont d'une certaine manière séparés lors du sprint final, je n'oublie pas que tu m'as accompagné et soutenu depuis le début. Je t'en serais toujours reconnaissant.

Finalement, je finirai par remercier ma famille : mes parents qui ont toujours été là quand il le fallait (et qui m'ont permis d'éviter quelques fautes d'orthographe dans ce manuscrit), ainsi que mon frère et ma soeur qui m'ont supporté, de plus ou moins loin (géographiquement), dans tous les sens du terme.

*Merci!*





# Table des matières

<b>1</b>	<b>Introduction générale</b>	<b>3</b>
1.1	Les aérosols . . . . .	5
1.1.1	Généralités . . . . .	5
1.1.1.1	Définition . . . . .	5
1.1.1.2	Les sources et précurseurs d'aérosols . . . . .	7
1.1.1.3	Répartition verticale et transport . . . . .	12
1.1.1.4	Les effets des aérosols . . . . .	14
1.1.2	Propriétés des aérosols . . . . .	19
1.1.2.1	Propriétés microphysiques . . . . .	19
1.1.2.2	Propriétés radiatives . . . . .	23
1.2	Stratégie et contexte d'observation . . . . .	30
1.2.1	Les moyens d'observation . . . . .	32
1.2.2	Les stratégies d'observation . . . . .	33
1.3	Présentation des sites de mesure : Lille et Mbour . . . . .	37
1.4	Objectifs de la thèse . . . . .	39
1.5	Organisation du document . . . . .	39
<b>2</b>	<b>Instrumentation et méthode</b>	<b>43</b>
2.1	Le TEOM . . . . .	43
2.2	Le photomètre . . . . .	44
2.2.1	Caractéristiques instrumentales . . . . .	44
2.2.2	Mesures de rayonnement solaire direct . . . . .	46
2.2.3	Mesures de rayonnement du ciel diffusé . . . . .	47
2.2.4	Niveaux de qualité . . . . .	48
2.3	Le lidar . . . . .	49
2.3.1	Caractéristiques instrumentales . . . . .	50
2.3.2	L'équation lidar . . . . .	52
2.3.3	Corrections instrumentales . . . . .	53
2.3.3.1	Non linéarité des détecteurs . . . . .	53
2.3.3.2	After Pulse . . . . .	54
2.3.3.3	Fonction de recouvrement . . . . .	54

2.3.4	Traitement des données . . . . .	56
2.3.4.1	Filtrage spectral . . . . .	56
2.3.4.2	Détection nuageuse . . . . .	57
2.3.4.3	Hauteur des couches . . . . .	61
2.4	Synergies instrumentales . . . . .	63
2.4.1	Synergie des mesures lidar/photomètre . . . . .	64
2.4.1.1	Méthode de Klett . . . . .	64
2.4.1.2	Choix de l'altitude de référence . . . . .	67
2.4.1.3	Incertitudes . . . . .	67
2.4.2	Synergie des inversions LiDAR/Photomètre . . . . .	70
2.4.2.1	Estimation de la concentration . . . . .	70
2.4.2.2	Incertitudes . . . . .	71
2.4.3	Automatisation . . . . .	72
<b>3</b>	<b>Variabilités, tendances et évènements extrêmes - Lille</b>	<b>77</b>
3.1	Climatologie des masses d'air . . . . .	77
3.2	Couverture nuageuse . . . . .	79
3.3	Propriétés intégrées sur la colonne . . . . .	85
3.3.1	Épaisseur optique $\tau$ . . . . .	85
3.3.2	Coefficient d'Angström $\alpha$ . . . . .	87
3.3.3	Distribution en taille . . . . .	89
3.3.3.1	Rayons effectifs . . . . .	89
3.3.4	Albédo de diffusion $\varpi_0$ . . . . .	93
3.3.5	Indice de réfraction $m$ . . . . .	95
3.3.6	Rapport lidar $S_a$ . . . . .	95
3.3.7	Interprétation . . . . .	99
3.3.7.1	Tendances à long-terme . . . . .	99
3.3.7.2	Tendances saisonnières . . . . .	101
3.3.7.3	Tendances journalières . . . . .	103
3.3.7.4	Tendances hebdomadaires . . . . .	105
3.3.7.5	Évènement : Mai 2003 . . . . .	106
3.4	Distribution verticale . . . . .	108
3.4.1	Profils d'extinction et hauteurs de couches . . . . .	108
3.4.1.1	Tendances saisonnières . . . . .	108
3.4.1.2	Tendances journalières . . . . .	111
3.4.2	Estimation de la concentration . . . . .	113
3.5	Évènements . . . . .	118
3.5.1	Quantification des évènements . . . . .	118
3.5.1.1	Évènements de pollution particulaire et qualité de l'air . . . . .	118
3.5.1.2	Évènements aérosols observés par télédétection . . . . .	120
3.5.2	Feux de biomasse (Juin-Juillet 2013) . . . . .	121

3.5.3	Poussières désertiques (Avril 2011)	125
3.5.4	Poussières volcaniques (Eyjafjöll, Avril-Mai 2010)	129
3.6	Impact radiatif	146
3.6.1	Définitions	146
3.6.2	Méthodologie	147
3.6.3	Résultats	148
3.7	Conclusion	152
<b>4</b>	<b>Variabilités, tendances et évènements extrêmes - Mbour</b>	<b>155</b>
4.1	Climatologie des masses d'air	155
4.2	Couverture nuageuse	157
4.3	Propriétés intégrées sur la colonne	162
4.3.1	Épaisseur optique $\tau$	162
4.3.2	Coefficient d'Angström $\alpha$	165
4.3.3	Distribution en taille	167
4.3.3.1	Rayons effectifs	167
4.3.4	Albédo de diffusion $\varpi_0$	169
4.3.5	Indice de réfraction $m$	172
4.3.6	Rapport lidar $S_a$	174
4.3.7	Interprétation	176
4.3.7.1	Tendances à long-terme	176
4.3.7.2	Tendances saisonnières	177
4.3.7.3	Tendances journalières	178
4.3.7.4	Tendances hebdomadaires	180
4.4	Distribution verticale	181
4.4.1	Profils d'extinction et hauteurs de couches	181
4.4.1.1	Tendances saisonnières	181
4.4.1.2	Tendances journalières	185
4.4.2	Estimation de la concentration	186
4.5	Évènements	191
4.5.1	Évènements de pollution particulaire et qualité de l'air	191
4.5.2	Classification des évènements aérosols observés par télédétection	192
4.6	Impact radiatif	194
4.6.1	Résultats	194
4.6.2	Influence du profil vertical de distribution des aérosols	196
4.7	Comparaison avec CALIOP	200
4.7.1	Méthodologie	200
4.7.2	Résultats	201
4.8	Évaluation du modèle NMMB/BSC-Dust	204
4.8.1	Brève présentation du modèle et méthodologie	205
4.8.2	Résultats	206

---

4.8.3	Conclusion . . . . .	210
<b>5</b>	<b>Aerosol spatial distribution during DRAGON experiment as seen by a mobile ground-based lidar-sunphotometer system - preliminary results</b>	<b>217</b>
5.1	Introduction . . . . .	217
5.2	Instrument and data . . . . .	219
5.2.1	Micro-Lidar . . . . .	219
5.2.2	Mobile sun-photometer . . . . .	219
5.3	Results and analysis . . . . .	220
5.3.1	Overview of aerosol optical properties . . . . .	220
5.3.2	Analysis of 20/07 and 21/07 data . . . . .	220
5.4	Conclusions and perspectives . . . . .	224
<b>6</b>	<b>Conclusion générale et perspectives</b>	<b>227</b>



Nous débutons ce chapitre par la présentation des types, des sources et des effets des aérosols. Nous présentons ensuite les propriétés microphysiques et radiatives de ces particules, ainsi que les bases des interactions lumière-matière (diffusion, absorption) qui permettent d'interpréter les mesures optiques des aérosols. Nous établissons par la suite une liste des différents moyens d'observation, ainsi que le contexte international dans lequel ils s'intègrent. Les observations conduites par le LOA sur les deux sites très contrastés de Lille et Mbour s'intègrent dans une stratégie d'observation continue sur une longue durée.

# Chapitre 1

## Introduction générale

Trou d’ozone, pluies acides, pollution de l’air, réchauffement climatique... Nous prenons progressivement conscience, depuis ces trente dernières années, de l’impact de l’Homme sur l’atmosphère et des différentes conséquences liées à ses changements brutaux.

La composition de l’atmosphère a largement évolué depuis sa formation, il y a environ 4,4 milliards d’années. L’atmosphère primitive était alors essentiellement composée de dihydrogène ( $H_2$ ), d’hélium (He), de méthane ( $CH_4$ ) et d’ammoniac ( $NH_3$ ). La sortie de l’attraction terrestre d’une partie des éléments les plus légers ( $H_2$  et He) associée à une accentuation de l’activité volcanique, a donné naissance, environ 100 millions d’années plus tard, à l’atmosphère secondaire, riche en vapeur d’eau ( $H_2O$  :  $\sim 60\%$ ), dioxyde de carbone ( $CO_2$  :  $\sim 20\%$ ), dioxyde de soufre ( $SO_2$  :  $\sim 15\%$ ) et diazote ( $N_2$  :  $\sim 5\%$ ). La dissolution du  $CO_2$  dans les océans, dont la formation a été permise par une diminution progressive de la température, a rendu possible le développement de la vie sous-marine (il y a 2,5 milliards d’années) et la libération de dioxygène ( $O_2$ ) dans l’atmosphère par photosynthèse (également formé par photo-dissociation de  $H_2O$  et  $CO_2$  par le rayonnement ultra-violet (UV)). L’ozone atmosphérique  $O_3$ , formé par photo-dissociation de  $O_2$ , de part sa capacité à absorber les rayons UV solaires nocifs, a permis le développement de la vie hors des océans. La composition de l’atmosphère a fini par se stabiliser il y a environ 500 millions d’années. L’Histoire de l’atmosphère nous montre bien son importance puisqu’elle a permis le développement de la vie, telle que nous la connaissons actuellement.

Malgré la stabilisation de sa composition, le climat n’a cessé d’évoluer. Le climat (dont la définition implique, au minimum, une période temporelle de plusieurs dizaines d’années) dépend, de fait, des interactions entre les différentes sphères qui composent la Terre (atmosphère, océan, biosphère, cryosphère et géosphère) et le rayonnement solaire dont la quantité totale d’énergie disponible dépend de l’activité du Soleil et des paramètres orbitaux de la Terre. Depuis ces deux derniers millions d’années, notre planète a connu une succession d’époques glaciaires et interglaciaires, selon un cycle d’une période

d'environ 100000 ans, expliqué par la théorie astronomique du climat de Milankovitch. La température moyenne de la Terre a alors varié, selon ce cycle, avec une amplitude d'environ 10 degrés, ce qui a eu d'énormes conséquences sur les différentes sphères de la Terre.

Le climat connaît également des variations de plus faible intensité à plus courte échelle temporelle. On peut citer par exemple l'optimum climatique médiéval (X<sup>e</sup>-XIII<sup>e</sup> siècle), période chaude pendant laquelle les vikings découvrirent le Groenland (« pays vert ») et dont le nom laisse sous-entendre une couverture neigeuse, à l'époque, bien différente de celle actuelle. Suivit alors le petit âge glaciaire (1550-1850), caractérisé par des hivers très rudes, provoquant mauvaises récoltes et famines, et qui aurait notamment contribué à la Révolution française.

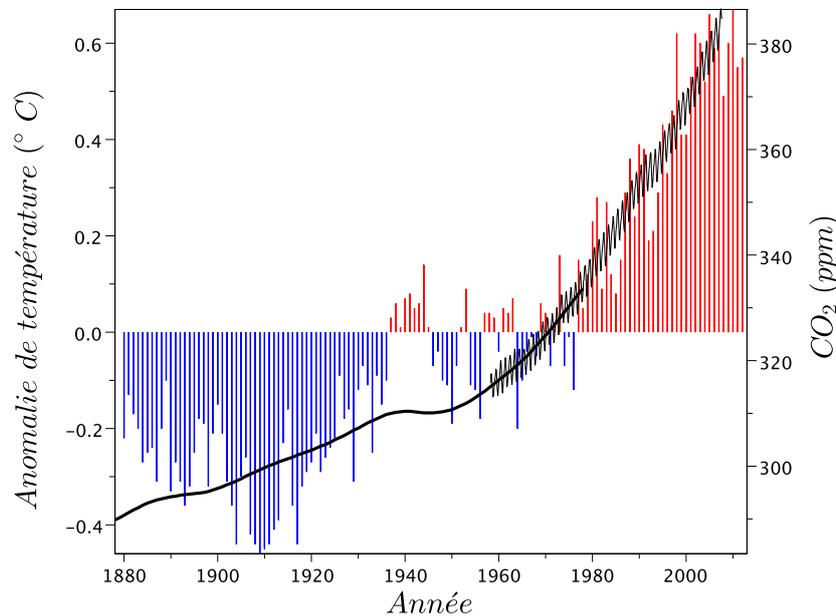


FIGURE 1.1 – Évolution de la température globale (barres de couleurs) et de la concentration en CO<sub>2</sub> (trait noir) depuis 1880, reconstruites puis mesurées. L'anomalie de la température est ici représentée et exprime la différence avec la température de référence moyennée entre 1950 et 1980. Les données de température sont issues du Global Historical Climatology Network (GHCN). Les données de concentration de CO<sub>2</sub> de 1880 à 1975 sont issues des travaux sur les carottes de glace polaire réalisés par le Commonwealth Scientific and Industrial Research Organisation (CSIRO, Australie), le Laboratoire de Glaciologie et Géophysique de l'Environnement (LGGE, France) et l'Antarctic CRC and Australian Antarctic Division. Les concentrations de 1958 à 2007 sont les résultats d'observations réalisées à l'observatoire de Mauna Loa (Hawaï) par l'Earth System Research Laboratory (ESRL).

La reconstruction des températures (à l'aide, par exemple, de la dendrochronologie) met en évidence une augmentation significative de ces dernières, depuis la révolution industrielle, qui s'accélère depuis ces trente dernières années (+0,65 °C entre 1956 et 2006). Sur les dix dernières années les plus chaudes depuis un siècle, neuf d'entre elles sont postérieures à l'an 2000. Ce réchauffement global est corrélé à la concentration du CO<sub>2</sub>, un des principaux gaz à effet de serre (GES), dont on estime qu'un tiers est le produit des activités humaines (énergie, industrie, transport, déforestation, ...) et dont l'émission est également en phase d'accélération (pays en développement, nouveaux pays émergents). La concentration est passée ainsi de 280 ppm (parties par million) en 1880 à environ 400 ppm en 2013, soit la plus grande concentration depuis le pilocène, il y a plus de 2,5 millions d'années. Longtemps controversé, le lien entre le réchauffement global observé et l'activité humaine est maintenant l'objet d'un consensus dans le milieu scientifique. En 2007, le quatrième rapport du GIEC annonce ainsi que

« la probabilité que le réchauffement climatique soit dû aux activités humaines est supérieure à 90 % ».

Les conséquences du réchauffement global sont nombreuses et variées puisque les sphères du système climatique sont en interaction les unes avec les autres. En plus de l'augmentation de la température (plus ou moins importante selon les régions du globe), nous constatons également la fonte de l'Arctique (-40 % en 2007 par rapport à la moyenne 1979-2000 (7 millions de km<sup>2</sup>), puis en 2012, -20 % par rapport au minimum de 2007), le recul des glaciers (-8000 km<sup>3</sup> depuis 1960, soit -30 %), une modification des précipitations (diminution au niveau de l'Équateur, et augmentation aux autres latitudes), une augmentation du niveau des océans et des mers (+17 cm depuis 1880), des modifications des migrations d'espèces animales, une diminution de la période de sommeil de la végétation, ...

Des interactions ont également lieu entre les différentes composantes d'une même sphère. L'objet de notre travail est l'atmosphère et plus particulièrement les aérosols (dont l'émission est, comme pour les GES, modulée par l'Homme), qui en interagissant avec les autres composantes atmosphériques et le rayonnement solaire, modifient le climat et à plus courte échelle la qualité de l'air.

## 1.1 Les aérosols

### 1.1.1 Généralités

#### 1.1.1.1 Définition

Selon sa définition générale, un aérosol est une particule solide ou liquide en suspension dans un gaz. Dans le cadre de la physique atmosphérique, il est d'usage de séparer

les particules nuageuses des autres types d'aérosols. On définit alors les aérosols comme des particules liquides ou solides en suspension dans l'atmosphère, à l'exception des hydrométéores (gouttes d'eau ou cristaux de glace qui constituent les nuages).

La composition de l'atmosphère ne se limite donc pas aux gaz ( $N_2$ ,  $O_2$ , Ar et autres espèces minoritaires) responsables du bleu du ciel (diffusion Rayleigh) et qui nous permettent, entre autres, de respirer, et aux nuages, qui en dépit de leur hétérogénéité, ne recouvrent pas moins de 70 % de la surface du globe. Plusieurs milliards de tonnes de particules microscopiques sont ainsi mises, chaque année, en suspension dans l'air. Les plus lourdes y demeureront quelques heures tandis que d'autres se laisseront porter au gré des courants atmosphériques pendant plusieurs semaines, mois, voire années. Si l'altitude et les conditions climatiques le leur permettent, elles pourront alors parcourir des distances pouvant atteindre l'équivalent de plusieurs rotations autour de la Terre.

Si ces micro-particules sont invisibles à l'œil nu, le recours à la microscopie nous permet de constater leur grande diversité dimensionnelle et morphologique (Figure 1.2). Cette large variété témoigne de la multiplicité des sources ainsi que des différents modes de formation des particules.

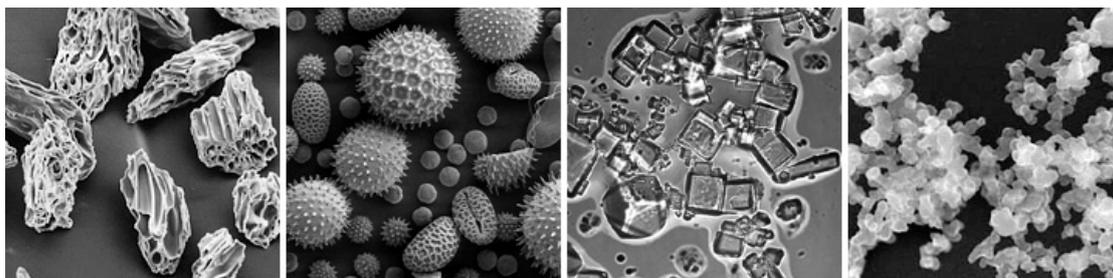


FIGURE 1.2 – Particules aérosols vues au microscope à balayage électronique (à différents grossissements). De gauche à droite : cendres volcaniques, pollen, embruns marins et suie. [Images : NASA, à partir de l'USGS, UMBC (Chere Petty) et l'Arizona State University (Peter Buseck).

Une des classifications des aérosols est basée sur le mode de formation de la particule. On dénombre alors, selon ce classement, deux types d'aérosols différents.

- Les aérosols primaires sont les particules émises dans l'atmosphère directement en tant que telles. Elles résultent en général de l'action du vent sur une surface qui vient lui arracher des particules issues des couches superficielles (embruns marins, poussières désertiques, ...). La combustion incomplète de matière fossile et de biomasse ainsi que les éruptions volcaniques sont d'autres exemples de sources d'aérosols primaires (Figure 1.3). Ces particules représentent en masse près de 95 % de la totalité des aérosols. Leur taille varie généralement de 100 nm à quelques micromètres.
- Les aérosols secondaires sont le résultat de la transformation de gaz atmosphériques, dits précurseurs, en particules. Les molécules gazeuses subissent une première étape

de nucléation : transformation de la phase gazeuse en une phase condensée (liquide ou solide). On distingue les nucléations homogènes et hétérogènes. Dans le premier cas, la nucléation se réalise simplement avec les molécules du milieu. Une nucléation hétérogène requiert au contraire la présence d'un support étranger solide ou ionique. À cette première étape de formation, les particules, alors appelées noyaux d'Aitken, ont une taille de quelques nanomètres. Celles-ci vont alors pouvoir grossir par condensation du gaz environnant, puis par coagulation (adhésion des particules entre elles) due au mouvement du fluide (agitation thermique, turbulences). Les aérosols secondaires ainsi formés peuvent atteindre une taille de quelques centaines de nanomètres.

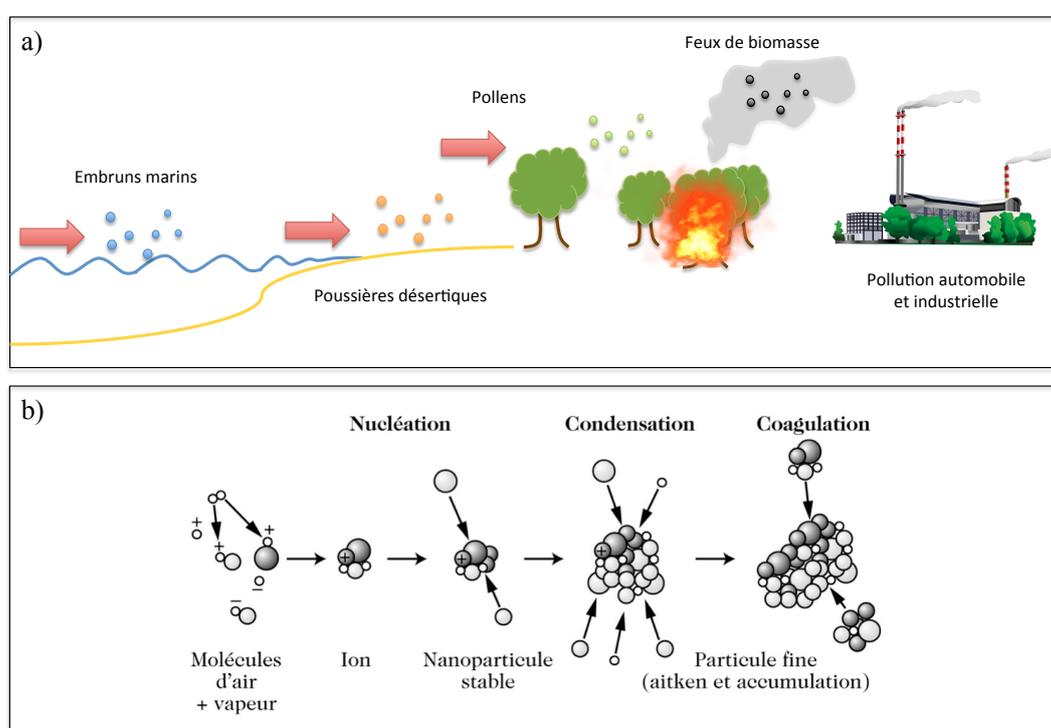


FIGURE 1.3 – Processus d'émission d'aérosols primaires a) et secondaires b) (Delmas et al. (2005))

### 1.1.1.2 Les sources et précurseurs d'aérosols

Les sources génératrices d'aérosols, ou de précurseurs d'aérosols sont multiples. Afin de quantifier l'impact de l'Homme sur leur production, il convient de séparer les sources

émettrices naturelles des sources anthropiques.

### Sources naturelles

Les sources naturelles sont à l'origine de près de 90 % de la masse totale de particules mises en suspension chaque année (Tableau 1.1 page 11).

**Source marine** L'action mécanique du vent sur la surface des océans entraîne la mise en suspension de fines particules d'eau salée (spume drops). Ce moyen de production d'aérosols dépend donc de sa vitesse. L'efficacité de la friction du vent augmente largement au delà du seuil de  $8 \text{ m.s}^{-1}$  (Monahan (1968)) et permet la mise en suspension de particules d'une taille pouvant atteindre quelques dizaines de micromètres. La production d'aérosols marins est également permise par l'éclatement des bulles en surface. Les sels marins alors formés (film drops et jet drops) sont de plus petite taille, mais disposent d'une plus longue durée de vie. Du fait de l'étendue des sources (70% de la surface du globe est recouverte par les océans), les sels marins représentent, en masse, la source la plus importante d'aérosols.

**Source terrigène** La friction du vent sur les étendues désertiques permet, sous certaines conditions, le soulèvement de poussières minérales de quelques centaines de nanomètres à quelques dizaines de micromètres. Cette production d'aérosols dépend, comme pour les embruns marins, de la vitesse du vent, mais également de l'humidité du sol qui conditionne les forces de cohésion des particules au sol. Avec une superficie de 12 millions de kilomètres carré, la contribution du Sahara est majeure puisqu'on estime qu'entre 60 et 200 millions de tonnes d'aérosols y sont générés chaque année (Goudie et Middleton (2001)). Cette formation d'aérosols n'est pas continue, mais se produit de manière plus ou moins ponctuelle, par exemple lors de tempêtes de sable. Les plus importantes d'entre elles peuvent mettre en suspension plus de 500 000 tonnes d'aérosols désertiques par jour (Koren et al. (2006)).

**Biomasse** La combustion partielle de toute matière organique, qu'elle soit de source animale, végétale ou spongique, génère des aérosols composés de carbone organique et généralement submicroniques. En plus de ces aérosols, la combustion de biomasse peut également émettre des gaz précurseurs, comme les composés organiques volatils (COV) et le dioxyde de soufre ( $\text{SO}_2$ ). La sécheresse est un facteur aggravant d'émission d'aérosols issus des feux de forêt. Le Sud de la France connaît régulièrement des incendies de forêt. En 2003, ce ne sont pas moins de 740 km<sup>2</sup> de forêt qui sont partis en fumée. La Grèce et la Russie ont connu respectivement en 2007 et 2010 d'importants incendies qui ont ravagé 2700 et 1900 km<sup>2</sup>. Au Canada, vaste pays recouvert par l'équivalent de 10 % des forêts de la planète, ces incendies sont récurrents. Chaque année, plus de 2,3 millions

d'hectares de végétation y sont ainsi brûlés, générant d'énormes quantités de suies et d'aérosols carbonés, parfois transportés sur de longues distances. Nous présenterons dans le chapitre 3 un exemple d'observation à Lille des aérosols issus de ce type d'évènement.

**Source biogénique** Même lorsqu'elle n'est pas brûlée, la végétation peut être source d'aérosols. En effet, les pollens ou spores fongiques émis en vue d'assurer la reproduction des espèces peuvent également être transportés par le vent et ainsi être qualifiés d'aérosols.

Les virus et bactéries le sont également puisqu'ils peuvent résider et se déplacer dans l'atmosphère. Des mesures indiquent que la concentration ambiante de bactéries dans l'air est de l'ordre de  $10^4$  cellules.m<sup>-3</sup> (au dessus des surfaces terrestres, Burrows et al. (2009)) pour une taille variant de 20 à 500 nm (Hogan et al. (2005)), ce qui en font les plus petits aérosols. Néanmoins, ils sont souvent agglomérés à d'autres aérosols plus gros et constituent alors, par mélange externe, des particules microniques.

**Source volcanique** Les éruptions des volcans de type explosif génèrent des quantités importantes de poussières minérales (cendres volcaniques), de dioxyde de soufre (SO<sub>2</sub>) et de sulfure d'hydrogène (H<sub>2</sub>S) dont l'oxydation permet la formation d'aérosols soufrés secondaires comme l'acide sulfurique (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>). L'imposante éruption du Pinatubo de 1991, qui a causé près d'un millier de morts, a dégagé près de 20 millions de tonnes de SO<sub>2</sub> dans l'atmosphère (Robock (2000)). Les aérosols secondaires formés ont résidé plus d'un an dans la stratosphère et causé une diminution de la température au niveau du sol dans l'hémisphère Nord de 0,6 ° et une diminution globale de 0,4 ° (Dutton et Christy (1992)). La plus récente éruption du désormais célèbre Eyjafjöll (20 mars 2010) reposant sur son glacier (Eyjafjallajökull) a projeté dans l'atmosphère plus de 200 millions de tonnes de cendres, paralysant alors le trafic aérien durant plus de quinze jours. Nous présenterons dans le chapitre 3 la détection du panache de cendres, issu de cette éruption, au dessus de Lille (section 3.5.4 page 129).

### Et aussi...

- Dans son article, Kruchinenko et al. (2011) nous rappelle que l'entrée des météorites dans l'atmosphère peut, selon certaines conditions (vitesse, masse de la météorite, ...), se désagréger en formant des aérosols dans les plus hautes couches de l'atmosphère. Chaque année, 200 000 tonnes d'aérosols cosmiques seraient ainsi produits selon ce processus.
- Le phytoplancton marin est également une source d'aérosols. Le diméthylsulfide (DMS) qu'il produit se dégrade dans l'atmosphère en SO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, diméthylsulfoxyde et acide sulfonique qui formeront alors des aérosols soufrés (Malin et al. (1992)).

## Les sources anthropiques

Les sources anthropiques, bien que très minoritaires en masse, représentent près de la moitié de l'épaisseur optique des aérosols (Satheesh et Moorthy (2005)).

**Combustion de fuels fossiles** L'utilisation de matières fossiles (charbons, fiouls...) par les industries et pour le chauffage est la cause principale de la pollution de l'air dans les pays industrialisés et en développement. Les particules submicroniques produites sont majoritairement composées de suie, de carbone organique et d'aérosols soufrés provenant du SO<sub>2</sub> dégagé. Autrefois courants en Europe<sup>1</sup>, les épisodes de pollution intense aux particules sont devenus aujourd'hui chroniques en Chine, qui promet toutefois de réduire les émissions de polluants majeurs industriels de 30 % par point de produit intérieur brut (PIB) à l'horizon 2017 (Thibault (2013)).

**Transport automobile** Avec une émission en particules de 20 mg/km, les véhicules disposant de moteurs diesels sont une source importante d'aérosols en milieu urbain. L'application de Filtres À Particules (FAP) permet de retenir près de 99 % des particules. En France, où l'on favorise ce type de carburant (Raymond (2013)), le FAP est devenu obligatoire pour les véhicules neufs équipés de moteurs diesels depuis le 1<sup>er</sup> janvier 2011. Mais sur 18 millions de véhicules, seuls 4 millions en sont déjà équipés. La France dépasse ainsi régulièrement les seuils de sécurité européens de concentration en particules, en particulier dans le Nord de la France, comme nous le verrons dans le chapitre 3 (partie 3.5.1.1 page 118).

## Rôle de l'Homme dans l'émission d'aérosols naturels

- Plus de la moitié des feux de forêt est d'origine humaine (accidentelle ou non). L'Homme module donc l'émission, par les feux de biomasse, d'aérosols carbonés et de suies.
- Le surlabourage des sols peut également modifier la production d'aérosols. Le dust bowl (bassin de poussière) qui a touché la région des Grandes Plaines des États-Unis et du Canada dans les années 1930 en est l'exemple. La surexploitation des sols a engendré une érosion accélérée qui, en combinaison d'une période de sécheresse

---

1. Le grand smog (contraction de l'anglais « smoke » (fumée) et « mog » (brouillard)) de Londres décembre 1952 est le pire épisode de pollution qu'ait connu le Royaume-Uni. L'augmentation de la consommation de charbon par les habitants pour faire face au froid hivernal, s'additionnant aux industries fonctionnant alors essentiellement au charbon, et accompagné d'un anticyclone perdurant, a provoqué la stagnation des particules sous forme d'un épais brouillard. La visibilité fut réduite à quelques mètres, immobilisant alors les moyens de transport de la ville. On estime à 12000 le nombre de personnes ayant perdu la vie à cause de cet événement de pollution. Ce dernier est à l'origine d'une prise de conscience de la société sur l'impact sanitaire de la qualité de l'air qui s'est concrétisée par la mise en place de nouvelles réglementations visant à limiter l'utilisation industrielle des combustibles polluants.

persistante, a provoqué pendant près d'une décennie d'innombrables tempêtes de poussières affectant les récoltes et habitations.

- L'assèchement de la mer d'Aral, causée par le détournement des fleuves pour répondre aux besoins en eau douce des récoltes de coton, en est un autre exemple. En plus d'augmenter la salinité de l'eau jusqu'à des taux d'éradication pour la plupart de la faune marine, la disparition de 50 % de la superficie initiale de la mer a mis à jour une vaste étendue de sable causant désormais, pendant plus de 90 jours par an, des tempêtes transportant entre 15 à 75 millions de tonnes de poussière minérale (Food et Organisation (1998)).

Type d'aérosol	Flux d'émission (Mt/an)
Aérosols primaires naturels	
Poussières désertiques	1000-3000
Sels marins	1000-6000
Aérosols de feux de biomasse	20-35
Aérosols primaires biogéniques	1000
dont bactéries	0,040-1,800
dont spores	28
Précurseurs d'aérosols secondaires naturels	
DMS	20-40 S
SO <sub>2</sub> volcaniques	6-20 S
Terpènes	40-400
Aérosols primaires anthropiques	
Poussières industrielles	40-130
Aérosols de feux de biomasse	50-90
Carbone suie (combustibles fossiles)	6-10
Carbone organique (combustibles fossiles)	20-30
Précurseurs d'aérosols secondaires anthropiques	
SO <sub>2</sub>	70-90 S
Composés organiques volatils	100-560 C
NH <sub>3</sub>	20-50 N

TABLE 1.1 – Flux approximatifs d'émission des principaux types d'aérosols primaires et des précurseurs aux aérosols secondaires. Mt=10<sup>12</sup> g, C=carbone, S=soufre, N=azote. Source : Boucher (2012)

### 1.1.1.3 Répartition verticale et transport

#### Structure verticale

Comme nous l'indique la Figure 1.4, l'atmosphère terrestre est stratifiée. La variation du gradient de température permet de distinguer les différentes couches atmosphériques.

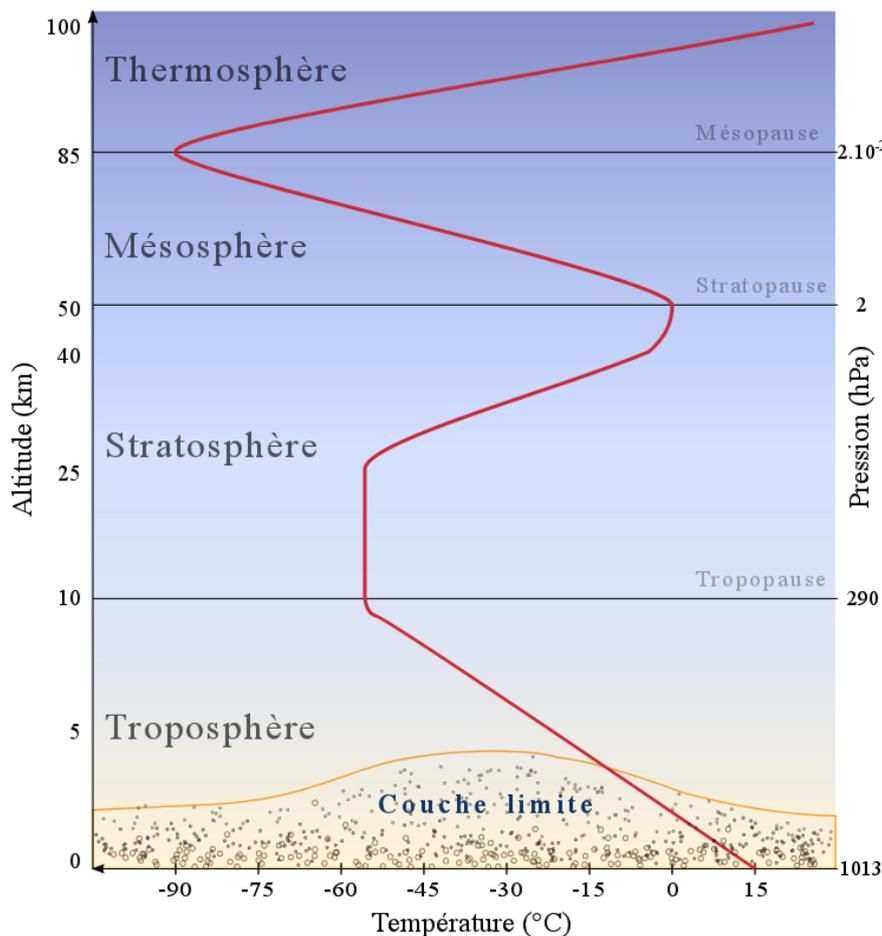


FIGURE 1.4 – Stratification verticale de l'Atmosphère.

Si le sommet de l'atmosphère n'est pas précisément défini (à cause de la décroissance exponentielle de la pression), les 100 premiers kilomètres de l'atmosphère contiennent cependant 99,999% de sa masse totale et peuvent donc raisonnablement représenter ce paramètre. Si les molécules atmosphériques sont concentrées principalement dans les basses couches (99,9 % sous les 50 premiers kilomètres et 90 % sous les 20 premiers), la répartition des aérosols est analogue, mais à échelle verticale beaucoup plus réduite.

En dehors d'éruption volcanique majeure (ou d'aérosols issus de la désintégration de météorites), la quasi-totalité des aérosols (et des nuages) est en effet concentrée dans la

plus basse couche de l'atmosphère, la troposphère. L'épaisseur de celle-ci varie selon la latitude (7-8 km aux pôles, 16-17 km à l'équateur). Cette couche est qualifiée d'instable de part les phénomènes de convection thermique et déplacements d'air horizontaux (advection) qui s'y produisent. Les aérosols ne sont cependant pas uniformément répartis à l'intérieur de la troposphère. Sous l'effet de la gravité, ceux-ci se retrouvent principalement localisés dans la partie inférieure de la couche appelée couche limite. Cette couche (BL, de l'anglais Boundary Layer) délimite la frontière entre la portion de la troposphère qui est directement influencée par la surface terrestre et la troposphère libre où les masses d'air circulent sans obstacle. Sa hauteur dépend également de la latitude, mais aussi du relief, de la saison et de l'heure de la journée. Elle peut alors varier, selon les conditions, de 100 à 5000 m, comme nous le verrons dans nos observations présentées dans les chapitres 3 et 4.

### Transport

Le transport horizontal des aérosols (advection) dépend principalement de leur durée de vie, qui elle-même est fortement conditionnée par leur taille. Les particules les plus fines disposent d'un taux de résidence dans l'atmosphère plus important et ont donc plus de chances de parcourir de plus grandes distances, portées par les courants atmosphériques.

En conditions sèches, le dépôt des aérosols se réalise selon deux procédés qui s'appliquent pour des gammes de taille de particules différentes. Le nombre de Knudsen  $Kn$  permet de définir quel processus domine le mouvement vertical des aérosols. Il dépend du diamètre de la particule  $d_p$  et du libre parcours moyen des molécules de gaz  $\lambda_g$  (dépendant de la pression et température du milieu).

$$Kn = \frac{2\lambda_g}{d_p} \quad (1.1)$$

Pour des conditions standard atmosphériques, on a  $\lambda_g = 0,0651\mu m$ . Pour les particules dont le diamètre est supérieur à  $1\mu m$  ( $Kn \ll 1$ ) la force de pesanteur est dominante. Les particules chutent alors jusqu'à atteindre une vitesse limite dépendant de leur taille et de leur densité. Pour celles dont le rayon implique  $Kn \gg 1$  ( $d_p \ll 0,1\mu m$ ), c'est le régime de diffusion moléculaire qui domine. Sous la contrainte de l'agitation moléculaire, les aérosols les plus fins adoptent alors un mouvement brownien. Une zone transitoire s'intercale entre ces deux régimes pour des valeurs de  $Kn$  proches de 1.

Le dépôt des aérosols se réalise (surtout) via le lessivage (ou dépôt humide) qui peut se produire à la fois à l'intérieur et sous les nuages. Les gouttelettes qui composent le nuage sont constituées d'aérosols solubles. Le grossissement (par condensation ou agglomération) des gouttelettes d'eau liquide, jusqu'à une taille permettant la sédimentation va déclencher le phénomène de précipitation. Les aérosols contenus dans ces gouttelettes seront donc entraînés vers le sol. Le long de leur parcours, les gouttes d'eau précipitées

vont également impacter les aérosols en suspension sous le nuage. Ce deuxième lessivage, généralement de moindre importance, dépend du flux de précipitation et de la concentration en aérosols sous le nuage.

L'émission ou le transport d'aérosols dans la stratosphère (circulation de Brewer-Dobson), implique pour les particules des durées de vie pouvant atteindre plusieurs années. En effet, de part son gradient positif de température, la stratosphère est une couche verticalement très stable. Une couche d'aérosols y est d'ailleurs persistante vers 20 km d'altitude (couche de Junge) et les particules qui y résident peuvent être transportées à grande vitesse par les courants-jets pouvant atteindre au maximum 100 m/s, et alors effectuer jusqu'à plusieurs rotations autour du globe (Vernier (2012)).

La chimie des particules (et de leur gaz précurseurs) peut également conditionner leur potentiel de transport. Des particules actives chimiquement auront une faible durée de vie et donc un moindre impact géographique.

#### 1.1.1.4 Les effets des aérosols

Selon leur temps de résidence dans l'atmosphère et leurs propriétés (microphysiques, optiques), les aérosols vont avoir différents impacts selon l'échelle considérée.

### Impact Sanitaire

Nous respirons en moyenne 15 m<sup>3</sup> d'air par jour. Or, comme nous l'avons vu précédemment, la majeure partie des aérosols est concentrée dans les basses couches de l'atmosphère (1.1.1.3). Avec, en milieu urbain, une concentration moyenne (très variable) allant de 5.10<sup>4</sup> à 10<sup>6</sup> particules.cm<sup>-3</sup> (Delmas et al. (2005)), nous inhalons en moyenne 6.10<sup>11</sup> particules par jour, qui, selon leur taille, vont pouvoir entrer plus ou moins profondément dans l'organisme (Figure 1.5). Ainsi, si les particules de diamètre supérieur à 10 µm sont stoppées au niveau du segment naso-pharyngien et facilement évacuées, les plus fines peuvent prolonger leur course jusque dans les bronches et les alvéoles. Selon leur composition chimique, celles-ci peuvent représenter un risque plus ou moins important sur la santé. Certaines substances véhiculées par les particules, y compris les métaux lourds (plomb, arsenic, nickel, ...) peuvent franchir la barrière air/sang au niveau des alvéoles pulmonaires provoquant des effets toxiques à court et/ou long-terme. Malheureusement, la plupart des particules submicroniques capables d'atteindre les alvéoles sont issues des sources anthropiques (milieu urbain ou industriel). De multiples effets sont constatés aux niveaux cardiovasculaire, respiratoire et des systèmes sanguin et reproductif.

En Europe, on recense depuis ces dernières années une augmentation significative des cas d'asthme et allergies (Brauer et al. (2007)). On note ainsi en France une augmentation de 40% des cas d'asthme depuis 1970 (4 millions d'asthmatiques aujourd'hui)

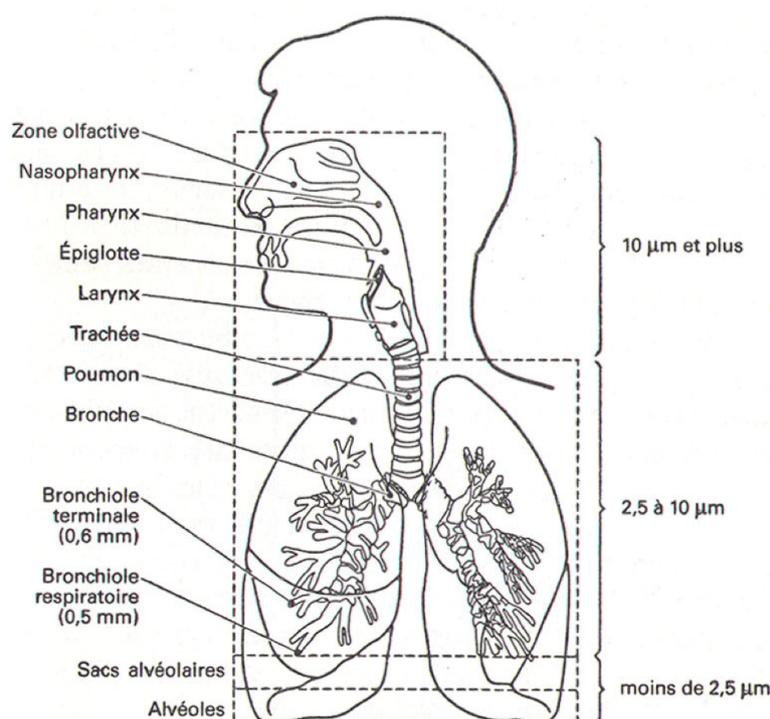


FIGURE 1.5 – Schéma de l'appareil respiratoire de l'Homme et transport des aérosols inhalés en fonction de leur dimension.

avec des coûts humains (1000 décès par an) et une répercussion économique importante (600000 journées d'hospitalisation et 7 millions de journées d'arrêt de travail par an) (<http://asthme-allergies.org> (2013)). Une étude menée dans 6 villes du Royaume-Uni (Villeneuve et al. (2002)) montre que l'exposition pendant un an, pour une augmentation de  $10 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  des  $\text{PM}_{2,5}$  (Particule Matter 2.5 : particules dont le diamètre aérodynamique est inférieur à  $2,5 \mu\text{m}$ ), implique des augmentations de décès (14 %), cancers du poumon (27 %) et accidents cardio-vasculaire (28 %). En prenant en compte toutes les pathologies, une diminution de l'espérance de vie de 9,3 mois a ainsi pu être attribuée à la pollution de l'air en France, dans les zones urbanisées.

Dans un récent communiqué de presse, daté du 17 octobre 2013 (<http://www.who.int/>), l'OMS a reconnu officiellement le lien entre pollution atmosphérique (en particulier les aérosols) et cancers :

« Les matières particulaires, une composante majeure de la pollution de l'air extérieur, ont été évaluées séparément et ont également été classées comme cancérogènes pour l'homme (Groupe 1). »

Un cas extrême est celui de la Chine (Figure 1.6a page suivante) où, avec des pics de

concentration en  $\text{PM}_{2.5}$  à  $400 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  et un record avoisinant les  $1000 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  (en France, le seuil limite de concentration est de  $50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ), 1,2 millions de décès prématurés sont recensés par an, soit 40 % des décès dus à la pollution atmosphérique dans le Monde.

Les particules peuvent également servir de vecteur aux virus et bactéries (1.1.1.2). Si l'épidémie de la grippe espagnole de 1917, responsable de la mort de 30 à 100 millions de personnes (Johnson et Mueller (2002)), a été si foudroyante, ce serait en partie à cause de la propagation de l'agent viral par une tempête de poussière (Griffin et al. (2013)).

Ces mêmes aérosols désertiques, en irritant la muqueuse pharyngée, favorisent la colonisation par le méningocoque (Chiapello (2011)). Ils favoriseraient ainsi les épidémies de méningite d'Afrique sahélienne (250000 cas chaque année selon l'OMS).



(a) Les épisodes intenses et réguliers de pollution à Beijing (Chine) obligent la pollution à se protéger.



(b) La Saïga, antilope des steppes et déserts semi-arides de l'Asie centrale se sert de son nez incurvé en forme de trompe afin de filtrer la poussière.

FIGURE 1.6 – Les voies respiratoires sont la porte d'entrée de l'organisme pour les particules atmosphériques.

## Impact Environnemental

L'émission de gaz précurseurs d'aérosols ( $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_x$ ) naturelle (éruptions volcaniques, décomposition de biomasse, ...) ou anthropique (chauffage, industrie, transport, ...) peut être responsable du phénomène des pluies acides. Celles-ci, dont le pH est inférieur à 5, entraînent par dépôt humide (1.1.1.3) des acides (sulfureux :  $\text{H}_2\text{SO}_3$  et nitrique :  $\text{HNO}_3$ ) au niveau du sol. Les conséquences sur l'environnement sont diverses et néfastes.

En détruisant les éléments nutritifs et micro-organismes contenus dans les sols, les pluies acides empêchent le bon développement de la végétation (tâches sombres sur les feuilles) et de toute la faune qui lui en dépend. L'acidification des eaux des lacs perturbe

aussi fortement la faune et la flore aquatique. Les marques des pluies acides sont également visibles sur les bâtiments. Des édifices tels le Taj Mahal (Inde) ou le Colisée de Rome voient ainsi leur dégradation s'accélérer du fait de l'érosion et de la corrosion induite par l'acidification des précipitations. Afin de réduire ces impacts, 51 pays de l'hémisphère Nord ont ratifié la CLRTAP (Convention on Long-Range Transboundary Air Pollution) qui préconise la réduction de l'émission d'une liste de polluants contribuant, entre autre, au phénomène des pluies acides.

Les aérosols naturels peuvent, au contraire, avoir un effet positif sur l'environnement. Chaque hiver, l'Harmattan (alizé soufflant du Nord/Est vers le Sud/Ouest) transporte depuis le Sahara d'importantes quantités d'aérosols désertiques ( 1.1.1.2 page 8). Ces particules, riches en fer et phosphore vont pouvoir alimenter, après dépôt au niveau de l'Océan Atlantique, le micro-plancton qui s'en nourrit. C'est ce même apport en nutriment qui a permis aux scientifiques de comprendre le mystère de la forêt Amazonienne. Le poumon vert de la planète est en effet basé sur un sol très pauvre (latérite rouge). La richesse de cette forêt n'est permise que grâce à l'apport en nutriments assuré par le transport des poussières désertiques d'Afrique et principalement issues de la dépression du Bodélé (pour 50 %), située près du lac Tchad (Koren et al. (2006)).

### Impact Climatique

Dans son dernier rapport, le GIEC (Groupe d'Experts Intergouvernemental sur l'Évolution du Climat) synthétise le forçage radiatif induit par les différentes composantes de l'atmosphère (Figure 1.7). Le forçage radiatif (ou bilan radiatif) est la différence entre les flux d'énergie entrant (solaire) et sortant (solaire « réfléchi » et tellurique) mesurés dans les hautes couches de l'atmosphère. À l'échelle globale, la stabilité du climat est assurée pour un forçage radiatif nul. Un forçage positif (négatif) entraînera une augmentation (diminution) de la température globale. Si l'effet des gaz à effet de serre est aujourd'hui bien connu (+ 1,66 W/m<sup>2</sup> pour le CO<sub>2</sub>), une importante incertitude persiste toujours quant à la contribution des aérosols. L'effet global est reconnu comme étant un refroidissement, mais les barres d'erreurs sont aussi grandes que les effets. L'incertitude est en partie due à la grande variabilité des aérosols (sources, quantité, évolution temporelle, ...). Une autre raison réside dans la multiplicité des interactions entre les aérosols, le rayonnement électromagnétique incident ainsi que les autres composantes atmosphériques comme les nuages (1.8).

**Effet direct (effet « parasol »)** La dernière éruption du Pinatubo (1.1.1.2) a causé un refroidissement global de l'atmosphère de 0,4°. Ceci est une illustration de l'effet direct des aérosols.

En obstruant une partie du rayonnement solaire incident par diffusion et absorption (processus qui seront définis plus loin), les aérosols sont responsables d'une atténuation

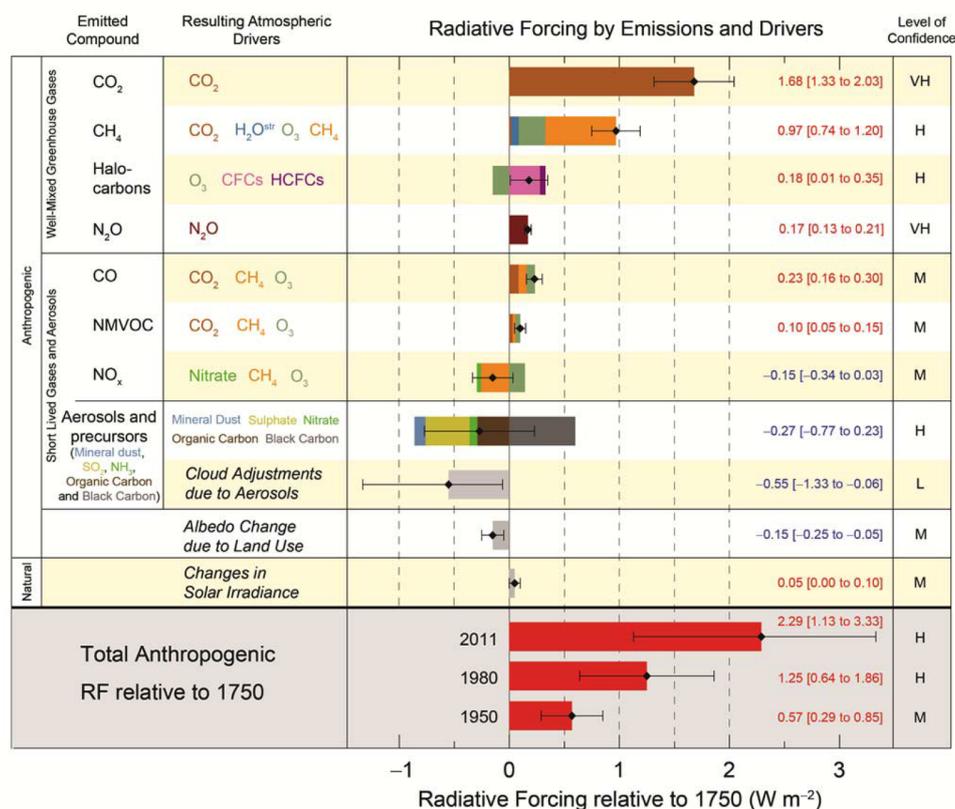


FIGURE 1.7 – Forçage radiatif induit par les différentes composantes atmosphériques. L'incertitude la plus grande est associée à l'effet des aérosols. Source : IPCC, 2013 (<http://www.ipcc.ch/report/ar5/wg1/>).

du flux radiatif incident, ce qui conduit à une diminution de la température de surface.

L'absorption du rayonnement par les particules les plus sombres (suies, aérosols issus de la combustion de biomasse) entraîne un réchauffement de la couche d'aérosols considérée, mais ne permet pas alors la transmission du flux jusqu'aux basses couches.

Pour les aérosols non ou peu absorbants, c'est le phénomène de diffusion qui domine. Celle-ci étant multi-directionnelle, une partie du rayonnement solaire diffusée par les aérosols l'est donc vers l'arrière (rétrodiffusée), ce qui conduit à une nouvelle diminution du flux entrant et donc à un refroidissement. Cet effet direct est majeur en condition de ciel clair (absence de nuages).

Les plus grosses particules (sels marins, poussières désertiques) peuvent également interagir avec le rayonnement infrarouge tellurique, renforçant alors l'effet de serre.

**Effets indirects** Le premier effet indirect, ou effet de Twomey (Twomey (1974)) est une conséquence du rôle de noyaux de condensation des aérosols (CCN : Cloud Conden-

sation Nuclei). Le phénomène de condensation est en effet facilité sur les surfaces. Dans l'atmosphère, ce sont les aérosols qui jouent ce rôle de surface et qui favorisent donc la formation des gouttelettes (cristaux) d'eau liquide (solide) dans les nuages. À concentration égale de vapeur d'eau, l'augmentation du nombre de CCN implique un plus grand nombre de gouttelettes de plus petite dimension.

Cette modification des propriétés du nuage augmente sa réflectivité (Cloud Albedo Effect). En renvoyant une partie plus importante du rayonnement solaire, ce processus conduit à un refroidissement du système climatique. C'est le premier effet indirect.

En réduisant la taille des gouttelettes qui constituent le nuage, les conditions de précipitation de ce dernier sont repoussées. Cela a pour conséquence d'augmenter la durée de vie des nuages et par conséquent leur potentiel de réflectivité. Ce deuxième effet indirect conduit de nouveau à un refroidissement.

**Effet semi-direct** Cet effet concerne également l'interaction entre nuages et aérosols. L'absorption du rayonnement solaire incident par certains aérosols affecte localement le profil vertical de température qui modifie à son tour les conditions de formation des nuages.

**Effet d'albédo ou effet des aérosols sur la neige** L'albédo est défini comme le rapport de l'énergie solaire réfléchi par une surface sur l'énergie solaire incidente. Une surface blanche, telle la neige, présente un albédo élevé (0,40 à 0,90) en comparaison à l'albédo moyen de la Terre (0,30). Une grande partie du rayonnement solaire est donc réfléchi en arrivant sur une telle surface.

Lorsque des aérosols absorbants se déposent sur des surfaces recouvertes de neige ou de glace, l'albédo de cette surface diminue, ce qui provoque un forçage radiatif positif (augmentation de la température).

Ces multiples effets font des aérosols un élément très complexe du système climatique. De plus, les propriétés microphysiques des aérosols contrôlent leurs propriétés radiatives. Nous présentons dans la suite les différentes grandeurs les caractérisant.

## 1.1.2 Propriétés des aérosols

### 1.1.2.1 Propriétés microphysiques

La présentation des sources et des modes de formation des aérosols nous a permis de constater l'étendue du spectre dimensionnel qu'ils couvrent, mesurant de quelques nanomètres à plusieurs dizaines de micromètres. Quatre modes principaux sont usuellement utilisés pour classer les particules selon leur rayon  $r$ .

On distingue le mode de nucléation ( $r \leq 10 \text{ nm}$ ), le mode d'Aitken ( $10 \text{ nm} \leq r \leq 50 \text{ nm}$ ), le mode d'accumulation ( $50 \text{ nm} \leq r \leq 1 \text{ }\mu\text{m}$ ) et finalement le mode grossier qui concerne les particules dont le rayon est supérieur à  $1 \text{ }\mu\text{m}$ .

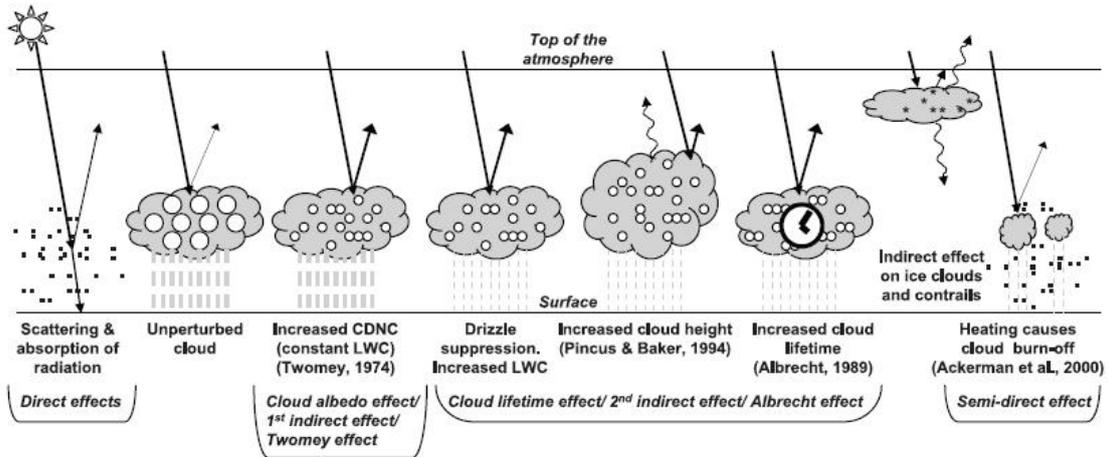


FIGURE 1.8 – Représentation des différents effets radiatifs des aérosols. (Source : Physical Science Basis, AR4 Report, IPCC, 2007).

Si la taille d'une particule peut facilement être décrite par un simple paramètre comme le rayon ou rayon équivalent pour les particules non sphériques, cela ne peut-être le cas d'un ensemble de particules (non monodispersées en milieu naturel). Il convient donc d'utiliser la distribution en taille afin de décrire une population de particules .

### Distribution en taille

Plusieurs modèles mathématiques permettent de représenter le spectre granulométrique d'un ensemble de particules (la loi de Junge, la loi gamma standard notamment utilisée pour décrire les nuages), mais nous nous concentrerons ici sur la distribution log-normale et particulièrement sur sa déclinaison multimodale (Figure 1.9). Il est en effet courant de rencontrer des collections d'aérosols présentant plusieurs modes.

Soit  $n(r)$  le nombre de particules par unité de volume dont le rayon est compris entre  $r$  et  $r + dr$  (particules. $m^{-3}.m^{-1}$ ). La concentration totale  $N_0$  (particules. $m^{-3}$ ) s'exprime alors comme

$$N_0 = \int n(r) dr \quad (1.2)$$

Puisque les particules peuvent couvrir plusieurs modes, il est d'usage d'utiliser une échelle logarithmique.  $n'(r)$  est alors défini comme le nombre de particules par unité de volume dont le logarithme du rayon est compris entre  $\ln r$  et  $\ln r + d \ln r$ . On a donc l'équivalence

$$N_0 = \int n'(r) d \ln r \quad (1.3)$$

La loi log-normale permet de décrire, avec  $3k$  paramètres, une distribution de  $k$  modes. Les paramètres  $n_{0,i}$ ,  $\sigma_i$  et  $r_{m,i}$  représentent respectivement la concentration en particules (particules.m<sup>-3</sup>.µm<sup>-1</sup>), la variance et le rayon modal du  $i^{\text{ème}}$  mode (µm).

$$n'(r) = \frac{dN}{d \ln r} = \sum_{i=1}^k n_{0,i} \frac{1}{\sigma_i \sqrt{2\pi}} \exp \left\{ -\frac{1}{2} \left[ \frac{\ln(r/r_{m,i})}{\sigma_i} \right]^2 \right\} \quad (1.4)$$

Selon les applications, il peut-être intéressant de convertir la distribution en nombre en distribution en surface ou en volume.

En chimie des particules, la surface est un paramètre capital puisqu'elle conditionne la vitesse de certaines réactions. C'est plutôt la distribution en volume qui est utilisée lors des bilans en masse :  $n_V(r) = \frac{dV}{d \ln r} = \frac{4}{3} \pi r^4 n'(r)$ .

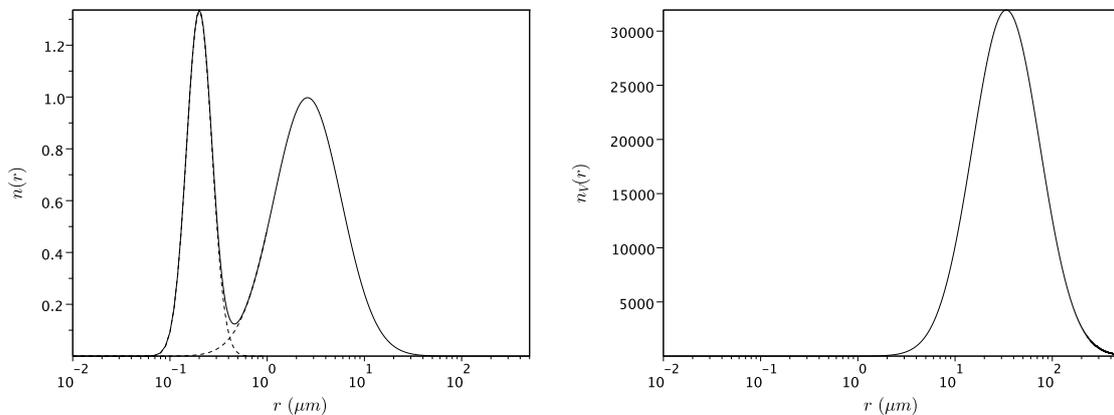


FIGURE 1.9 – Distributions en taille bi-modale en nombre (à gauche) et en volume (à droite). Mode fin :  $n_{0,f} = 1$  particules.m<sup>-3</sup>.m<sup>-1</sup>,  $\sigma_f = 0,3$  µm et  $r_{m,f} = 0,2$  µm - Mode grossier (coarse) :  $n_{0,c} = 2$  particules.m<sup>-3</sup>.m<sup>-1</sup>,  $\sigma_c = 0,8$  µm et  $r_{m,c} = 2,6$  µm.

## Morphologie

Un modèle simple (théorie de Mie définie en 1.1.2.2 page 24) permet de décrire les interactions lumière-matière pour des particules sphériques, ce qui est loin d'être le cas de certaines particules (Figure 1.2 page 6). La description de ces interactions pour des formes plus réalistes est autrement plus complexe. Afin de préciser les limites de l'application de cette théorie, on sépare donc les particules sphériques des non-sphériques. En général, les aérosols secondaires et d'origine anthropique appartiennent à la famille des aérosols sphériques. Ce n'est pas le cas, en revanche, des poussières désertiques pour lesquelles, la seule théorie de Mie ne permet pas d'expliquer l'ensemble de leurs propriétés optiques. Dans leurs travaux, Mishchenko et al. (1995) et Dubovik et al. (2002b) introduisent un mélange de sphéroïdes polydispersés orientés de manière aléatoire pour modéliser des

aérosols non-sphériques. Cette prise en compte de la non-sphéricité permet de limiter les erreurs d'interprétation des observations réalisées par télédétection.

## Mélanges

Au cours de leur transport, les aérosols vont pouvoir rencontrer d'autres aérosols dont la nature (composition chimique : aérosols organiques, inorganiques, carbonés, sulfates, ...) pourra leur être soit identique, soit différente. Cette rencontre pourra donner lieu à deux types de mélanges.

- Le mélange externe désigne le mélange entre particules (chimiquement pures) de composition chimique différente.
- Le mélange interne correspond au mélange de composés chimiques à l'intérieur de chaque particule issue d'une population. Ce mélange est considéré comme homogène si le mélange des composés donne lieu à des particules dont la composition chimique finale est identique au sein de la population. Il est qualifié d'hétérogène dans le cas contraire.

Ces mélanges modifient les propriétés microphysiques des particules (distributions en taille, forme, chimie) et donc leurs propriétés optiques. Jacobson (2001) a ainsi montré que l'intégration du carbone suie implique un forçage radiatif (positif) plus important dans le cas d'un mélange interne que dans celui d'un mélange externe. Derimian et al. (2008a) a , quant à lui, mis en évidence l'impact de la teneur en carbone et en fer des aérosols désertiques sur leur absorption spectrale.

Ces deux types de mélange ne permettent pas de décrire précisément les processus qui ont effectivement lieu en milieu naturel. Ils peuvent, d'une part, se produire simultanément. D'autre part, au sein même des mélanges de type externe, un mélange de type « agrégats » n'aura pas le même effet qu'un mélange en couches (core-shell).

## Hygroscopicité

La télédétection offre l'avantage d'observer les aérosols dans leur milieu. Dans leur environnement, les particules sont affectées par l'humidité ambiante qui modifie leurs propriétés microphysiques et optiques.

Les molécules qui composent une particule sont plus ou moins solubles dans l'eau et vont définir son caractère hydrophile (hydrophobe). Des particules de nature différente ne seront donc pas affectées de la même manière par une même humidification.

Lorsque l'humidité augmente, la condensation de la vapeur d'eau sur les particules accroît leur diamètre. Cette croissance (et décroissance dans le cas d'une diminution de l'humidité) est contrôlée par les points de déliquescence et d'efflorescence (voir Figure 1.10). Le premier représente la valeur d'humidité au-delà de laquelle la taille de la particule augmente lors d'une humidification. Le second est le point en-deçà duquel la

crystallisation se produit. Ces deux valeurs étant en général distinctes, l'humidification et déshumidification d'une particule se déroule selon un cycle d'hystérésis.

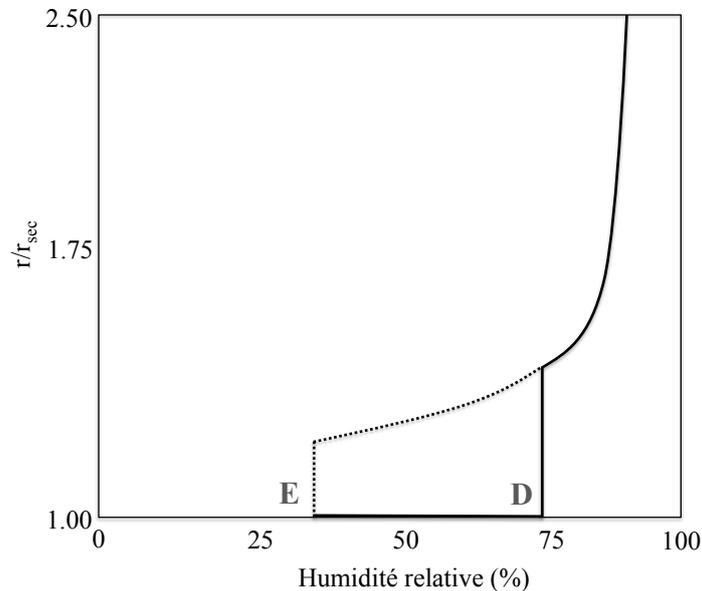


FIGURE 1.10 – Augmentation du rayon  $r$  d'une particule avec l'humidité. L'humidité croissante (décroissante) est représentée en traits pleins (pointillés). E et D représentent respectivement les points d'Efflorescence et de Déliquescence (d'après Boucher (2012)).

La vapeur d'eau modifie également l'indice de réfraction et peut donc faire varier les propriétés optiques de l'ensemble. L'eau contenue dans les aérosols peut en effet contribuer pour plus de 70 % à l'épaisseur optique (extinction). Un certain nombre de travaux s'intéressent à l'impact de l'humidité sur différents types d'aérosols (en milieu urbain (Randriamiarisoa et al. (2006)), aérosols de feux de biomasse (Fors et al. (2010)) et cendres volcaniques (Lathem et al. (2011))). Depuis les observations effectuées au Puy de Dôme, Hervo (2013) a également quantifié l'impact de l'humidité sur l'effet radiatif direct. « Tenir compte de l'hygroscopicité modifie d'un facteur 2,8 le forçage radiatif calculé au PdD à 90 % d'humidité et d'un facteur 1,75 à humidité ambiante. »

La densité  $\rho$  des particules ( $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) est une propriété intrinsèque des particules qui dépend directement de leur composition chimique. Ce paramètre est également affecté par leur condition de mélange et d'humidité.

### 1.1.2.2 Propriétés radiatives

$$n_1 \sin i_1 = n_2 \sin i_2$$

La célèbre loi de réfraction de Snell-Descartes permet de décrire, pour deux milieux d'indice  $n_1$  et  $n_2$  la déviation d'un faisceau lumineux à leur interface. L'indice de réfraction, qui traduit la vitesse de propagation de la lumière dans le milieu par rapport à la propagation de la lumière dans le vide, dépend directement de la nature chimique des matériaux.

La description de l'interaction entre la lumière et les aérosols nécessite la prise en compte de l'indice de réfraction complexe  $m(\lambda) = m_r(\lambda) - i m_i(\lambda)$  et l'utilisation de la notion d'onde électromagnétique. L'indice complexe, qui dépend de la longueur d'onde de l'onde incidente  $\lambda$ , permet de rendre compte de la diffusion et de l'absorption grâce à sa partie imaginaire. Pour des particules non absorbantes, cette dernière est nulle, alors qu'elle peut atteindre 0,50 dans le cas des carbonés suies.

Lorsqu'une onde électromagnétique interagit sur une particule, celle-ci va venir exciter les électrons qui la composent. Ces derniers vont alors entrer en vibration et former un dipôle électromagnétique. Cet état est cependant temporaire puisque les électrons vont rapidement retomber sur les niveaux atomiques fondamentaux ( $10^{-12}$  s). Cette relaxation provoque la ré-émission d'une onde électromagnétique dans toutes les directions spatiales. C'est la diffusion. Celle-ci est qualifiée d'élastique lorsque les longueurs d'ondes des ondes incidentes et diffusées sont identiques (la diffusion inélastique, ou diffusion Raman, ne sera pas abordée dans ce document). Une partie de l'énergie de désexcitation peut également être transformée en chaleur. C'est le phénomène d'absorption. Si l'absorption dépend surtout de la composition chimique de la particule, la diffusion dépend principalement de sa taille, au regard de la longueur d'onde  $\lambda$  de l'onde incidente.

## Théorie de Mie

Pour des particules dont les rayons  $r \ll \lambda$ , la diffusion moléculaire ou diffusion de Rayleigh s'applique. L'optique géométrique s'applique au contraire lorsque  $r \gg \lambda$ . Le problème que nous considérons ici est l'interaction entre aérosols (10 nm à 100  $\mu\text{m}$ ) et rayonnement solaire dont le spectre s'étend de l'ultraviolet (UV, de 100 à 400 nm) à l'infrarouge (IR, de 750 nm à 1 mm) et présente son maximum d'émission dans le visible à environ 500 nm. Si la diffusion de Rayleigh peut s'appliquer quand il s'agit de l'interaction entre la lumière et les molécules gazeuses, et que la taille des gouttelettes nuageuses autorise l'application de l'optique géométrique, ces deux théories ne permettent pas, en revanche, de rendre compte de l'interaction entre les aérosols et le rayonnement solaire dont les dimensions sont du même ordre de grandeur.

La théorie de Mie a été établie il y a plus d'un siècle afin de répondre à ce problème (Mie (1908)). C'est une solution des équations de Maxwell pour la diffusion d'une onde électromagnétique par des particules sphériques. Cette théorie permet le calcul de la section efficace de diffusion qui sera l'objet du paragraphe suivant.

Avant de poursuivre, il convient de rappeler quelques bases concernant les énergies

radiatives.

- L'angle solide  $\omega$ , exprimé en stéradians (sr), est la surface sur laquelle un objet se projette radialement sur une sphère de rayon  $r$ . Il est égal au rapport entre la surface et le carré du rayon de la sphère :  $\omega = S/r^2$ . Dans un repère de coordonnées sphériques, l'angle solide élémentaire est égal à :

$$d\omega = \frac{dS}{r^2} = \sin\theta \, d\theta \, d\varphi \quad (1.5)$$

(voir Figure 1.11).

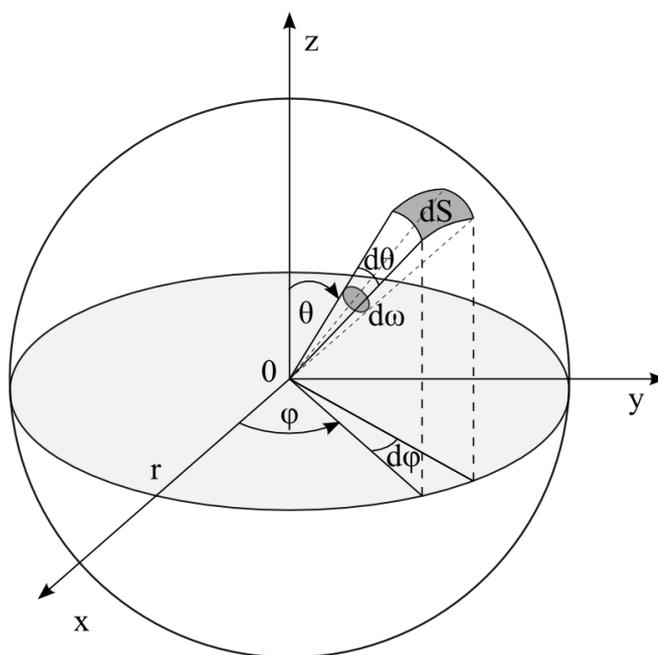


FIGURE 1.11 – Représentation de l'angle solide élémentaire  $d\omega$ .

- Le flux radiatif,  $F$ , exprimé en  $\text{W.m}^{-2}$  et encore appelé éclairement, désigne l'énergie radiative  $E$  (Joules) reçue par unité de surface et de temps.

$$dF = \frac{dE}{dt} \quad (1.6)$$

- La luminance,  $L$ , permet d'exprimer la directionnalité de l'éclairement. Elle désigne le flux reçu par une surface  $dS$ , dans une direction donnée et contenu dans un angle solide  $d\omega$ . Elle s'exprime donc en  $\text{W.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}$ . Le flux est donc relié à l'énergie radiative par la relation

$$dE = L(\theta, \varphi) \, dS \, d\omega \, dt \quad (1.7)$$

NB : la luminance monochromatique ( $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{sr}^{-1}\cdot\mu\text{m}^{-1}$ ) permet de décrire la luminance dans un intervalle spectral  $[\lambda, \lambda + d\lambda]$ .

### Sections efficaces

Les sections efficaces de diffusion et d'absorption  $s^{dif}$  et  $s^{abs}$  d'une particule représentent la surface utile de cette particule, en terme d'interaction avec le rayonnement, dans les processus respectifs de diffusion et d'absorption.

Afin de représenter l'efficacité d'une particule seule en terme de diffusion ou d'absorption, on définit les facteurs de diffusion et d'absorption comme les rapports entre sections efficaces et section géométrique  $s^g$  de cette particule ( $\pi r^2$  pour une sphère). On s'affranchit de cette manière du fait que, pour un même éclaircissement, une particule de dimension plus importante va pouvoir interagir avec plus de rayonnement du fait de sa surface.

$$Q^{dif} = \frac{s^{dif}}{s^g} \quad \text{et} \quad Q^{abs} = \frac{s^{abs}}{s^g} \quad (1.8)$$

La section efficace d'extinction est la somme des sections efficaces de diffusion et d'absorption. De manière similaire, on notera le facteur d'extinction comme

$$Q^{ext} = \frac{s^{ext}}{s^g} = Q^{abs} + Q^{dif} \quad (1.9)$$

Comme nous l'avons vu dans le paragraphe précédent, le paramètre important dans l'interaction entre lumière et particule n'est pas la seule taille, mais la taille de la particule par rapport à la longueur d'onde  $\lambda$  du champ incident. Le paramètre de Mie (ou paramètre de taille),  $x$ , est une grandeur sans unité qui permet de quantifier le rapport de ces deux grandeurs :

$$x = \frac{2\pi r}{\lambda} \quad (1.10)$$

où  $r$  est le rayon de la particule.

La particule devient efficace pour la diffusion pour un paramètre de taille  $x \approx 1$ . Sur la Figure 1.12, on peut également observer des oscillations qui témoignent de phénomènes d'interférences successivement constructives et destructives entre le champ incident et le champ diffusé. Le changement de la partie réelle de l'indice fait varier la position des oscillations. L'absorption a tendance à les limiter. Le facteur d'extinction  $Q^{ext}$  tend vers 2 pour des paramètres de taille importants (approximation de l'optique géométrique).

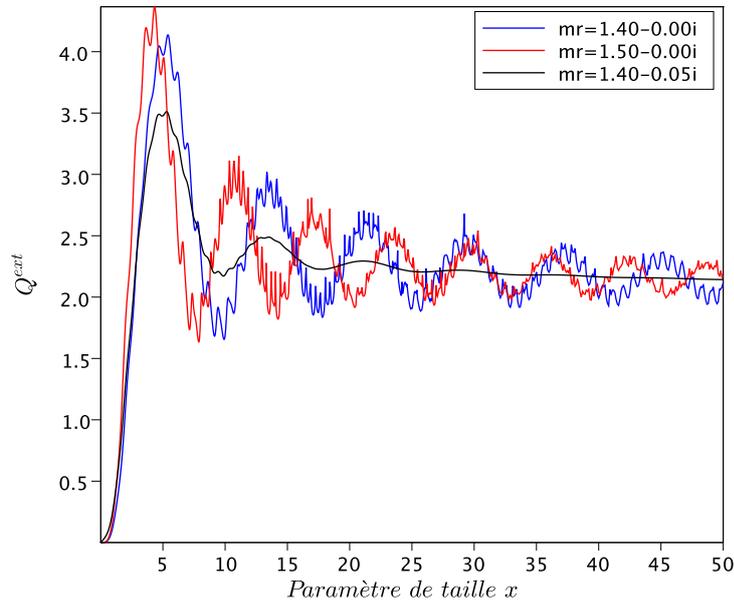


FIGURE 1.12 – Variation du facteur d’extinction en fonction du paramètre de taille  $x$  pour différents indices de réfraction.

## Extinction

Soit un flux de rayonnement monochromatique  $\varphi_0$  se propageant dans un élément de volume de l’atmosphère et contenant des centres de diffusion et/ou d’absorption. La loi de Beer Lambert donne la variation de flux après traversée d’une longueur  $dx$  dans la direction incidente (Figure 1.13) :

$$d\varphi = -\varphi \sigma_{ext}(x) dx \quad (1.11)$$

où  $\sigma_{ext}$  est le coefficient d’extinction. Son unité est l’inverse d’une distance ( $m^{-1}$ ).

Le flux transmis s’obtient en intégrant la variation de flux le long du chemin parcouru :

$$\varphi(x) = \varphi_0 \exp\left(-\int_0^x \sigma_{ext}(x') dx'\right) \quad (1.12)$$

Le terme exponentiel est donc un facteur de transmission. Une faible extinction impliquera une forte transmission et inversement. Aussi, l’extinction a un impact sur la visibilité atmosphérique  $x_v$ . Ces deux grandeurs peuvent d’ailleurs être reliées par l’équation de Koschmeider (Seinfeld et Pandis (1998)) :

$$x_v = \frac{3,912}{\sigma_{ext}} \quad (1.13)$$

Des villes extrêmement polluées comme Beijing peuvent avoir une visibilité réduite à 500 m lors d'épisodes majeurs de pollution, comme ce fût le cas en janvier et février 2013. Une telle turbidité se traduit par une extinction de l'ordre de  $8 \text{ km}^{-1}$ .

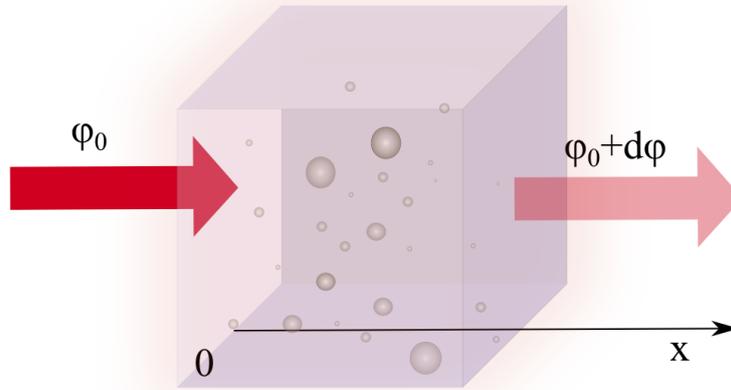


FIGURE 1.13 – Transmission d'un rayonnement au travers un volume  $dV$  contenant un milieu diffusant et absorbant

Même pour des atmosphères très polluées, le libre parcours moyen des particules reste suffisant pour pouvoir considérer que l'intensité totale du rayonnement diffusé est égale à la somme de la diffusion simple de chaque particule. C'est l'hypothèse de diffusion simple : chaque particule ne diffuse que le champ incident, et non le champ préalablement diffusé par ses particules voisines. Pour une population de particules suivant une distribution en taille  $n(r)$ , le coefficient d'extinction s'écrit alors :

$$\sigma_{ext,\lambda} = \int_0^{\infty} \pi r^2 Q^{ext}(m, r, \lambda) n(r) dr \quad (1.14)$$

où  $\pi r^2 Q^{ext}$  est la section efficace d'extinction  $s^{ext}$ .

### Épaisseur optique

L'épaisseur optique  $\tau$  d'un milieu ou d'une couche atmosphérique est une grandeur sans unité qui évolue de manière inverse à la transmission. Elle est égale à l'intégrale du coefficient d'extinction le long du chemin optique parcouru :

$$\tau_{\lambda} = \int_0^L \sigma_{ext,\lambda}(x) dx \quad (1.15)$$

S'agissant de l'atmosphère, cette grandeur est liée à la concentration totale en particules comprise dans la colonne d'atmosphère observée.

Pour des atmosphères très claires en terme d'aérosols, comme à Río Gallegos (Argentine), la moyenne annuelle d'épaisseur optique aérosols, ou AOD (de l'anglais Aerosol Optical Depth) est d'environ 0,02. Elle est d'environ 0,8 à Beijing (en 2011), avec des pics supérieurs à 4 (maximum de détection photométrique) lors d'évènements de pollution.

### Coefficient d'Angström

Le coefficient d'Angström  $\alpha$  (encore noté AE : Angström Exponent) définit la dépendance spectrale de l'extinction :

$$\frac{\tau_\lambda}{\tau_{\lambda_0}} = \left( \frac{\lambda}{\lambda_0} \right)^{-\alpha} \quad (1.16)$$

Globalement, il diminue pour des tailles de particules croissantes. Il est compris entre 0 (pas de dépendance spectrale, ex : gouttelettes nuageuses) et 4 (molécules).

### Albédo de simple diffusion

L'albédo de diffusion  $\varpi_0$  définit le pouvoir d'absorption d'une particule. Il est défini comme le rapport entre les coefficients d'extinction et de diffusion :

$$\varpi_0 = \frac{\sigma_{dif}}{\sigma_{ext}} \quad (1.17)$$

Pour une particule non absorbante, on a  $\sigma_{ext} = \sigma_{dif}$  et donc  $\varpi_0 = 1$ .

Quelques valeurs d'indice de réfraction, coefficient d'Angström et albédo de simple diffusion, sont présentés dans le Tableau 1.2 page 31.

### Fonction de phase

La théorie de Mie permet de décrire la directionnalité de la diffusion (Figure 1.14).

Soit l'éclairement  $E_\lambda$  arrivant en incidence normale dans la direction  $\vec{s}_0$  sur une particule élémentaire de volume  $dV$ . Le flux élémentaire diffusé  $d\varphi_{dif}$  dans la directions  $\vec{s}$  dans l'angle solide  $d\omega$  est

$$d\varphi_{dif,\lambda} = E_\lambda f(\Theta) dV d\omega \quad (1.18)$$

où  $f(\Theta)$  est la fonction de diffusion. Cette dernière est liée à la fonction de phase  $p(\theta)$  :

$$f(\Theta) = \frac{\sigma_{ext}}{\varpi_0} \frac{p(\Theta)}{4\pi} \quad (1.19)$$

La fonction de phase décrit la redistribution angulaire du rayonnement. Celle-ci dépend de la taille des particules, de la longueur d'onde et de la forme de la particule. La diffusion

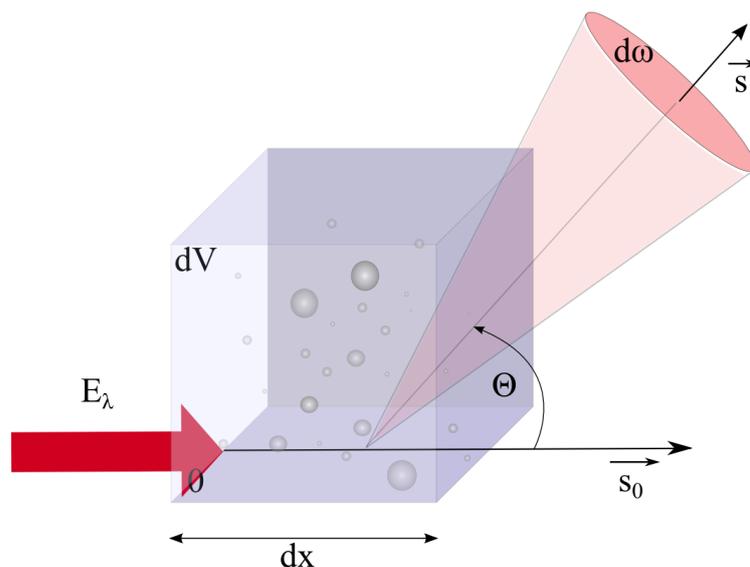


FIGURE 1.14 – Diffusion d'un rayonnement par un volume élémentaire  $dV$  composé de centres de diffusion.

sera privilégiée dans la direction avant pour des grosses particules tandis qu'elle sera plus isotrope pour des plus fines, comme le montre les fonctions de phase pour différentes tailles de particules sur la Figure 1.15a. On parle de rétrodiffusion lorsque la lumière est diffusée dans la direction opposée au rayonnement incident. La fonction de phase pour cet angle particulier,  $p(180)$ , est utilisée pour définir le coefficient de rétrodiffusion  $\beta$  :

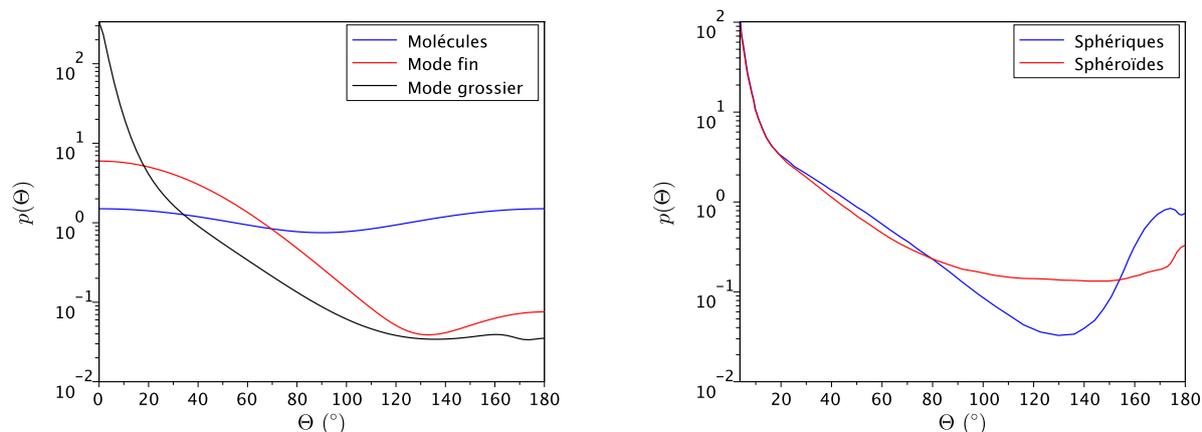
$$\beta = \sigma_{diff} \frac{p(180)}{4\pi} \quad (1.20)$$

Cette valeur s'avère utile pour décrire les observations de télédétection active basées sur le principe de rétrodiffusion, comme le Lidar (de l'anglais Light Detection And Ranging) que nous utiliserons ultérieurement.

La Figure 1.15b montre l'effet de la forme des particules sur le calcul de la fonction de phase. L'effet de la non sphéricité est important pour les grands angles de diffusion (Dubovik et al. (2006)).

## 1.2 Stratégie et contexte d'observation

En raison de la variété de leurs effets (section 1.1.1.4), l'intérêt pour les aérosols transparaît au travers de différentes thématiques. Au niveau sanitaire d'abord, puisque les particules les plus proches du sol influent directement sur la qualité de l'air. Leur



(a) Cas des molécules (en bleu) et de particules distribuées selon un mode fin (rouge) et un mode grossier (noir).

(b) Effet de la non sphéricité, d'après Dubovik et al. (2006).

FIGURE 1.15 – Fonctions de phase.

Aérosols	Site	$m_r$	$m_i$	$\alpha$	$\varpi_0$
désertiques	Arabie Saoudite (Solar Village)	1,56	0,003	$0,1 \leq \alpha \leq 0,9$	0,92
urbains	GSFC (Washington DC)	1,41	0,003	$1,2 \leq \alpha \leq 2,5$	0,98
marins	Hawaï	1,36	0,001	$0 \leq \alpha \leq 1,55$	0,98
biomasse	Savane Africaine (Zambie)	1,51	0,010	$1,4 \leq \alpha \leq 2,2$	0,88

TABLE 1.2 – Propriétés optiques des principaux types d'aérosols (à 440 nm) (Dubovik et al. (2002a)).

nocivité dépend de leur taille, composition chimique et concentration. Afin de réduire les épisodes de pollution particulaire, la législation de certains pays a été renforcée pour permettre un meilleur contrôle des émissions d'aérosols anthropiques. En France, et sous les directives de l'Union Européenne, le seuil limite concernant la moyenne annuelle de  $PM_{2.5}$  passera ainsi de 50 à 25  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  au 1<sup>er</sup> Janvier 2015 (puis à 20  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  en 2020). L'évaluation des résultats de ces politiques de réduction de pollution implique des moyens d'observation homogène et continue de ces aérosols.

Nous avons également abordé les interactions multiples entre particules et rayonnement, encore à l'origine de grandes sources d'incertitudes dans les modèles de calcul de forçage radiatif. Ces derniers sont notamment utilisés pour quantifier l'impact anthropique sur le climat à l'échelle globale et ainsi tenter de prédire son évolution. La réduction de ces incertitudes passe par le renforcement de nos connaissances sur les interactions aérosols-rayonnement, ce qui implique également une observation des aérosols dans leur milieu et à plusieurs échelles spatio-temporelles.

### 1.2.1 Les moyens d'observation

Les moyens d'observation des aérosols sont, à l'image de leurs effets, multiples et variés. Nous pouvons, en premier lieu, séparer les observations réalisées depuis le sol des observations spatiales.

- Les observations au sol permettent de réaliser des prélèvements de particules dans leur milieu (in situ). Les compteurs de particules et TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) permettent la mesure continue et instantanée de concentration en nombre, en masse ( $PM_{10}$  et/ou  $PM_{2.5}$  selon les filtres) et la distribution en taille discrète, pour certains modèles. En général, la méthode de mesures produit une diminution de l'humidité relative de l'échantillon (à environ 20%). Des analyses plus poussées comme les observations au microscope à balayage électronique, ou encore les mesures de spectroscopie de masse (AMS) permettent d'accéder à des paramètres microphysiques précis tels que la forme, les mélanges ou encore la composition chimique des particules. Ces analyses sont en revanche plus ponctuelles car le niveau d'automatisation ne permet pas aujourd'hui de s'affranchir de toute intervention humaine. Les mesures au sol peuvent également être réalisées par des moyens optiques. Les néphélomètres et aethalomètres effectuent des mesures optiques qui donnent accès respectivement au coefficient de diffusion des particules pour différents angles ( $p(\Theta)$ ) ainsi qu'à leur absorption. La télédétection passive au sol s'appuie sur des photomètres solaires qui mesurent la transmission atmosphérique à plusieurs longueurs d'onde et pour différentes inclinaisons solaires. Certains paramètres sont mesurés directement ( $\tau$ ,  $\alpha$ ), et d'autres, plus élaborés, découlent de l'inversion des mesures ( $dV/dlnr$ , Non Sphéricité,  $\varpi_0$ ,  $m$ , et  $p(\Theta)$ ). Les données issues du photomètre intègrent l'ensemble des particules présentes dans la colonne atmosphérique et principalement dans la basse troposphère, comme indiqué précédemment ( 1.1.1.3 page 12). Or la connaissance de la distribution verticale est capitale puisqu'elle conditionne la qualité de l'air, la modification du profil de température, la durée de vie et donc le transport des aérosols. Le lidar (télédétection active) permet d'accéder à cette répartition verticale en fournissant principalement les profils de rétrodiffusion  $\beta(z)$  et d'extinction  $\sigma_{ext}(z)$ . D'autres paramètres seront également accessibles en fonction de la complexité des lidars (multichromatisme, Raman, dépolarisation).
- L'observation des aérosols depuis l'espace permet d'assurer une bonne couverture spatiale, avec une répétabilité plus ou moins importante selon le type d'orbite. Les satellites de la constellation A-Train embarquent des instruments passifs comme l'imageur MODIS (Moderate-resolution Imaging Spectroradiometer) et POLDER (Polarization and Directionality of the Earth's Reflectances) et actifs comme le lidar CALIOP (Cloud-Aerosol LIdar with Orthogonal Polarization). Les conditions

d'observation bien particulières limitent cependant la quantité de paramètres disponibles et leur précision. Les paramètres retrouvés par les instruments spatiaux sont donc encore aujourd'hui moins nombreux et moins précis que ceux qui découlent des observations terrestres. De nouvelles missions spatiales prévues ces prochaines années embarqueront des instruments visant à améliorer la restitution des différents paramètres des aérosols, comme 3MI, IASI-NG ou encore EARTHCARE (2015) qui disposera par exemple d'un lidar à haute résolution.

### 1.2.2 Les stratégies d'observation

L'hétérogénéité spatiale des aérosols implique la nécessité d'observation dans les différentes régions du Monde. Les aérosols désertiques de l'Afrique occidentale ont fait l'objet de nombreuses campagnes de mesures comme SHADE (SaHAran Dust Experiment, 2000) et AMMA (Analyses Multidisciplinaire de la Mousson Africaine, débuté en 2002) qui ont permis des avancées au niveau de la compréhension de l'effet des aérosols sur la mousson (Davis et al. (2013)), sur l'impact radiatif (Tanré et al. (2003), Derimian et al. (2008a)) et sanitaire (Martiny et al. (2007)). Pour compléter cette liste non-exhaustive, citons les programmes CHARMEX (Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment), qui s'est récemment concentrée (Juin-Août 2013) sur les aérosols présents dans le bassin Méditerranéen, INDOEX (Indian Ocean Experiment, 1998), ou encore les campagnes DRAGON (Distributed Regional Aerosol Gridded Observation. Networks, États-Unis en 2011 et 2013, Asie en 2012) qui se sont focalisées sur les aérosols d'origine anthropique et leur variabilité spatiale à fine échelle.

Ces campagnes permettent le fonctionnement simultané d'un grand nombre d'instruments mais restent en général assez ponctuelles dans le temps. Elles s'avèrent donc insuffisantes pour observer l'importante variabilité des aérosols à différentes échelles temporelles qui nécessite une observation à long-terme.

L'observation à long-terme est privilégiée dans les réseaux qui permettent une certaine harmonisation des mesures et des traitements. On peut distinguer deux types de réseaux.

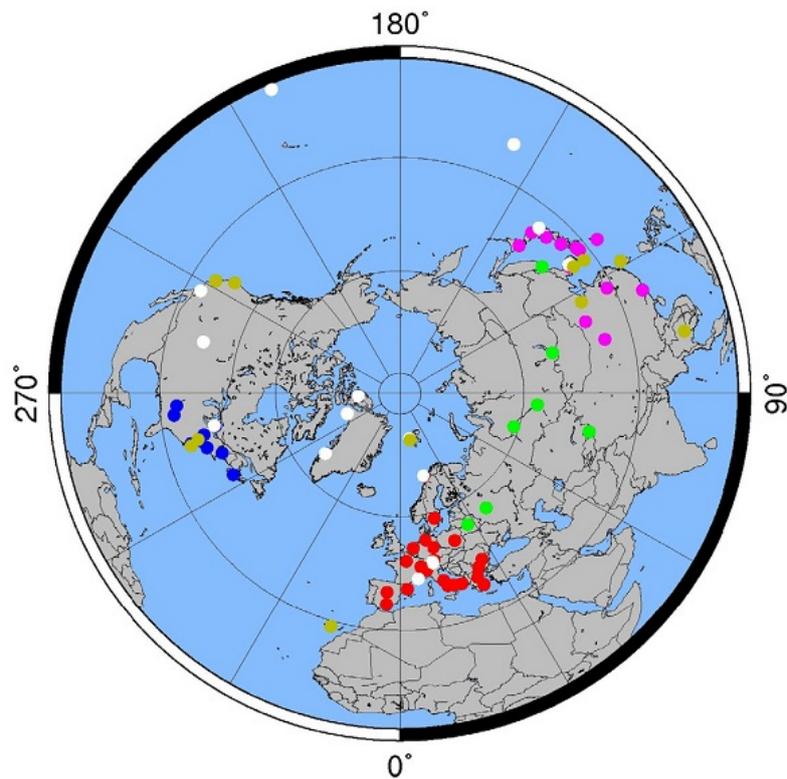
**Les réseaux de recherche** Parmi les réseaux de lidars, on peut noter le MPLNET (Micro Pulse Lidar Network) qui regroupe, depuis le début du programme lancé à l'initiative de la NASA (en 2000) une trentaine de lidars (principalement des lidars monochromatiques MPL) répartis stratégiquement sur la surface du globe. Ce réseau permet d'obtenir en quasi-continu et avec un algorithme commun, les profils d'extinction, de rétrodiffusion et hauteurs de couches des aérosols. Au niveau européen, EARLINET (European Aerosol Research Lidar Network) regroupe aujourd'hui 27 stations lidar de technologie beaucoup plus hétérogène. La plupart des lidars sont en effet développés au sein même des laboratoires et sont globalement plus élaborés (dépolarisation, voies de réception « Raman », polychromatiques). Tous ne permettent pas en revanche d'effectuer des mesures

en continu et la contribution au réseau se fait donc par le biais de mesures à date fixe, quelques heures par semaine. Afin d'assurer la cohérence entre les mesures des différents instruments, ces derniers sont soumis à des contrôles de qualité précis et participent à des campagnes d'intercomparaison (d'instruments et d'algorithmes). Le programme GAW (Global Atmosphere Watch) mené par le WMO (World Meteorological Organization) et notamment sa sous-division GALION (GAW Atmospheric Lidar Observation Network) tend à fédérer les réseaux de lidars à travers le Monde (Figure 1.16a). En plus des deux réseaux précédents, GALION regroupe entre autres ALINE (American LIDAR Network), AD-Net (Asian Dust Network) et NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change) pour les aérosols troposphériques, ce qui permet d'augmenter la couverture spatiale des observations. Certaines zones géographiques demeurent cependant en sous-représentation comme l'Asie, l'Amazonie et l'Afrique du Nord (Bösenberg et Hoff (2007)).

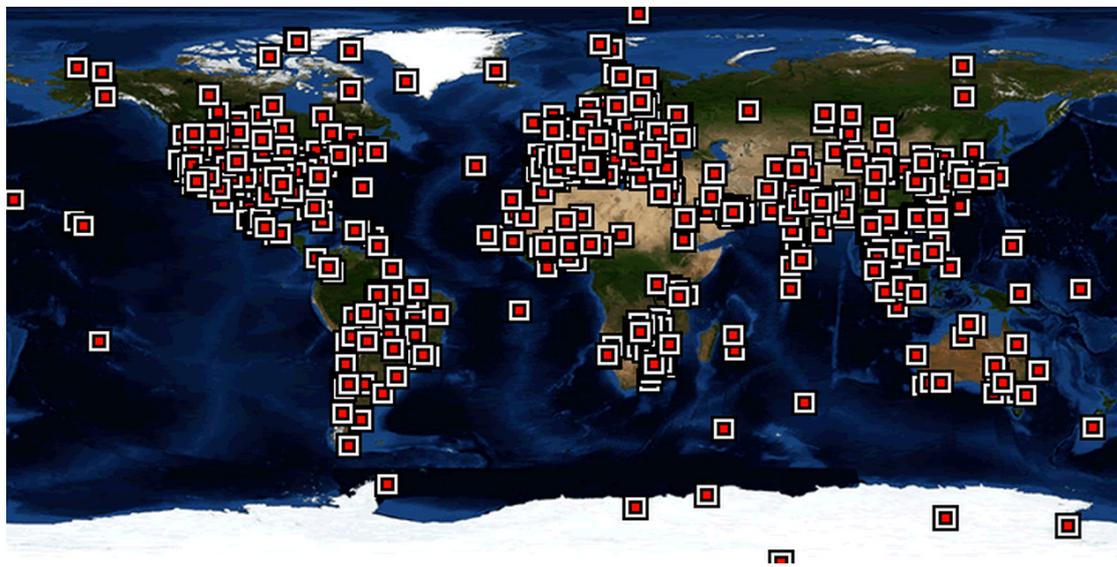
Le développement des réseaux de lidars est récent et l'effort d'homogénéisation des mesures et procédures doit encore être consolidé. Les réseaux photométriques bénéficient d'une plus grande maturité. AERONET (Aerosol RObotic NETwork) a été fondé en 1993 à l'initiative du GSFC (NASA) et du LOA (CNRS). Avec environ 350 sites d'observation (et presque deux fois plus d'instruments) qui couvrent de manière plus ou moins homogène les surfaces terrestres du globe, c'est le plus important réseau mondial de photomètres (CIMEL CE-318) (Figure 1.16). Dans le but d'assurer la qualité des données, les instruments sont régulièrement intercomparés avec des instruments de référence et étalonnés de manière absolue sur des sphères intégratrices étalon bien caractérisées. Sa composante française, PHOTONS, est responsable du bon fonctionnement et de l'étalonnage de plus de 80 instruments en Europe, Asie et Afrique, et pilote la composante européenne (AERONET-Europe) via le projet ACTRIS (Aerosols, Clouds, and Trace gases Research InfraStructure Network). Les observations se font quasiment sans interruption grâce à un système de roulement des instruments, ce qui fait d'AERONET un réseau presque opérationnel.

**Les réseaux opérationnels** Un réseau opérationnel doit répondre à la condition de continuité des observations. L'exemple de l'éruption de l'Eyjafjöll en 2010, et les perturbations du trafic aérien très importantes et coûteuses qui en ont découlé ont démontré la nécessité de ce type de réseau d'observation. Suite à cet épisode, Météo-France et ses homologues anglais et irlandais Met Office et Met Éireann, ont décidé de constituer leur propre réseau de lidars et photomètres en fonctionnement automatique et continu sur une grille permettant de recouvrir, de manière homogène, l'ensemble de leur territoire respectif. Leur but est de pouvoir contrôler l'évolution d'un panache de cendres et d'être en mesure d'affirmer si les concentrations estimées présentent un risque pour l'aviation.

La qualité de l'air est encadrée, en France, par le réseau Atmo qui regroupe les différentes AASQA (Association Agréée de Surveillance de la Qualité de l'Air) par région



(a) Le réseau GALION (partie hémisphère Nord). Les différentes couleurs représentent les différents réseaux lidar : AD-NET (violet), ALINE (jaune), CISLiNet (vert), EARLINET (rouge), MPLNET (marron), NDACC (blanc) et CREST-CLN (bleu).



(b) Le réseau AERONET en 2013. Chaque point de la carte représente un site photométrique.

FIGURE 1.16 – Réseaux de lidars et photomètres.

administrative. Les mesures in-situ des concentrations des particules fines et gaz précurseurs permettent d'informer, par exemple, la population en temps réel de la qualité de l'air (indice) et, en relation avec les autorités, de prendre des mesures visant à limiter l'intensité de ces épisodes de pollution.

**Les réseaux multi-instrumentés** L'observation conjointe par différents types d'instruments permet de multiplier le nombre de paramètres retrouvés, et donc une caractérisation plus fine des particules (Laj et al.). De plus, certains instruments permettent de mesurer un même paramètre de manière indépendante. L'extinction mesurée par le lidar peut, par exemple, être comparée/combinée à celle retrouvée grâce aux néphélomètres et aethalomètres, au niveau du sol (altitude en général la moins favorable pour le lidar). La distribution en taille estimée par les photomètres peut-être comparée à celle mesurée par les spectromètres de taille type SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer).

Plusieurs réseaux regroupant divers instruments d'observation des aérosols coexistent à différentes échelles.

Au niveau Européen, ACTRIS, fondé en 2011 et financé pour 4 ans par le FP7 (Seventh Framework Programme for Research : "Research Infrastructures for Atmospheric Research"), coordonne un certain nombre de réseaux de mesures in-situ et de télédétection (active et passive) en Europe et permet de faciliter l'échange (de procédés et de données) entre les différentes communautés scientifiques. Ces échanges favorisent aussi les synergies instrumentales qui permettent d'affiner la restitution des paramètres optiques et/ou microphysique des aérosols. C'est l'objectif de l'une des activités phare d'ACTRIS portant sur la synergie lidar/photomètre. L'utilisation conjointe de ces deux instruments permet, par exemple, de réaliser l'inversion des données lidar à une longueur d'onde sans a priori sur le rapport lidar  $S_a = \frac{\sigma_{ext}}{\beta}$ , ce qui réduit les incertitudes sur les profils d'extinction.

Au niveau national, la cohérence des observations aérosols est assurée depuis 2011 par le SOERE ORAURE (Observation en Réseau des Aérosols à Usage de Recherches Environnementales). De manière similaire à ACTRIS, on y retrouve une volonté de synergie instrumentale photomètre/lidar/in situ. Le lien avec les observations spatiales y est également mis en avant. D'une part, les observations terrestres, lorsqu'elles sont bien normalisées et réparties de manière stratégique, permettent de valider, de part leur niveau de précision, les mesures spatiales. D'autre part, certains algorithmes plus élaborés ont récemment vu le jour, comme GRASP (Generalized Retrieval of Aerosol and Surface Properties), et permettent de combiner les mesures terrestres et spatiales afin de préciser et augmenter le nombre de paramètres retrouvés.

Au niveau régional, le Labex CaPPA (Chemical and Physical Properties of the Atmosphere) regroupe 7 laboratoires (LOA, PC2A, PhLAM, ICARE, LASIR, LPCA, DCE-EMD) de spécialités différentes, mais dont la coordination permet une approche multidisciplinaire, expérimentale et théorique et à multi-échelle temporelle, des aérosols. Depuis leur formation jusqu'à leur impact climatique et sanitaire, en passant par leur observa-

tion, sous forme de campagnes intensives de mesures multi-instrumentées.

Finalement, tous ces efforts d'observation et de restitution des paramètres optiques et micro-physiques des aérosols contribuent largement à la validation des modèles dont l'intérêt est multiple puisqu'ils permettent de palier le manque d'observation dans certaines zones géographiques, une prédiction de l'évolution des aérosols à différentes échelles de temps et d'espace et, finalement, une estimation globale du forçage radiatif des aérosols. Le projet international AEROCOM (Aerosol Comparisons between Observations and Models) s'appuie ainsi sur les observations afin de mieux caractériser et paramétrer les sources d'aérosols, les transports verticaux, l'humidification, ... (AEROCOM (Site Internet 2013)). Certains modèles peuvent, de plus, assimiler les données, comme le modèle MACC (Monitoring Atmospheric Composition & Climate). Cette assimilation permet d'affiner les évolutions prédites par le modèle en précisant les conditions limites.

### 1.3 Présentation des sites de mesure : Lille et Mbour

Ce travail s'intègre dans une stratégie d'observation multi-instrumentée et à long terme, focalisée sur deux super-sites : Lille (France) et Mbour (Sénégal) (voir Figures 1.17 et 1.18).

Cette observation est menée par le LOA et en interaction avec l'IRD (Institut de Recherche pour le Développement) pour le site africain. La ville de Lille, au carrefour économique de l'Europe, est située en environnement très fortement urbanisé. Mbour, sur la côte Ouest Africaine est, pendant toute une partie de l'année, sous l'influence des sources d'aérosols désertiques. Sa proximité océanique laisse également présager la possibilité de la présence d'embruns marins. Des aérosols carbonés issus des feux de biomasse peuvent, finalement, y être observés en fonction de la saison et des conditions atmosphériques. Les deux sites d'observation présentent donc à priori des aérosols de nature très contrastée.

L'observation en routine des aérosols a débuté à Lille en 1994 avec des mesures photométriques (Lille fait partie des premiers sites AERONET). Les mesures ont été renforcées, entre autre, en 2006 avec la mise en place d'un micro-lidar CIMEL (CAML : Cloud and Aerosol Micro Lidar CE-370-C) élastique à 532 nm. D'abord plus ou moins espacées dans le temps, les observations de télédétection active sont devenues continues (hormis arrêt temporaire pour cause de maintenance) en 2008. Nous disposons donc d'une base de 5 années complètes de données d'observation conjointe lidar-photomètre (jusqu'en 2012) et de 8 années d'observation purement photométrique. Le réseau Atmo-NPDC est chargé de la surveillance de la qualité de l'air de la région Nord-Pas-De-Calais. Deux stations de mesures in situ sont situées à côté de l'observatoire du LOA (Lille Fives à 5 km et Tourcoing à 15 km) et mesurent les concentrations de gaz précurseurs ( $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_2$ ) et les concentrations massiques de particules ( $\text{PM}_{2.5}$  et  $\text{PM}_{10}$ ).



FIGURE 1.17 – Super-sites instrumentés du LOA.

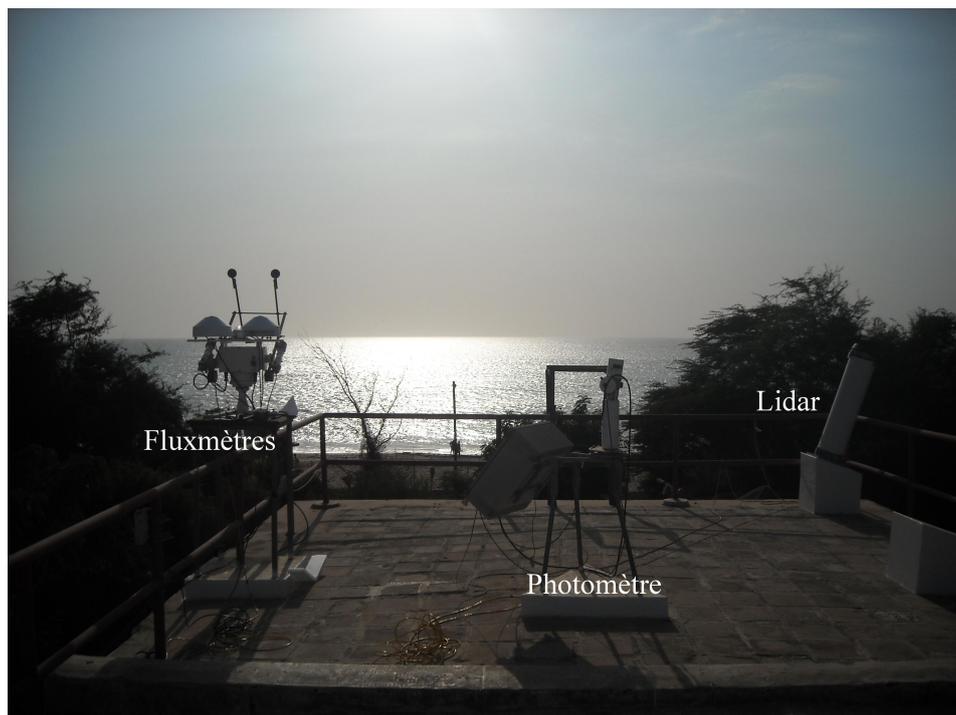


FIGURE 1.18 – La plateforme d'observation de Mbour.

Les premières mesures d'aérosols sur le site africain sont également des données photométriques (1996). L'addition du lidar (de même modèle, CE-370-C) s'est faite en 2006 à l'occasion de la campagne AMMA, au cours de laquelle le LISA (Laboratoire Inter-universitaire des Systèmes Atmosphériques) a mis en place un TEOM permettant d'effectuer des mesures de concentration massique ( $PM_{10}$ ) de manière automatique. Nous disposons donc de plus de 6 années d'observation conjointe lidar, photomètre et TEOM sur ce site.

## 1.4 Objectifs de la thèse

L'objectif principal de cette thèse est l'étude de l'évolution des propriétés des aérosols observés sur les deux sites à l'aide de la combinaison lidar-photomètre et pour différentes échelles temporelles. L'importance et le caractère continu des bases de données, que nous nous sommes efforcés de constituer, nous permettent d'étudier les tendances aussi bien sur une longue durée (plusieurs années) que pour de fines échelles temporelles (journalières), ce qui comprend également la détection d'évènements ponctuels.

La continuité des observations implique en général une relative simplicité des instruments. C'est le cas du lidar développé par CIMEL, qui ne dispose que d'une seule longueur d'onde et n'est pas muni de voie de dépolarisation. Dans notre travail, nous avons exploité au maximum cet ensemble de mesures en nous appuyant sur les synergies instrumentales, afin d'estimer des paramètres élaborés tels que la concentration massique qui est un des paramètres clés de la qualité de l'air et, dans des cas exceptionnels, de la sécurité aérienne.

L'exploitation de la base de données a aussi pour vocation de servir les modèles. Les profils aérosols inversés permettent en effet de valider, localement, les profils de concentration/extinction prédits. Ce genre d'exercice peut également être réalisé avec les données issues des observations spatiales.

La connaissance du profil vertical permet également d'effectuer un calcul plus précis du forçage radiatif, qui est un autre objectif de notre travail.

## 1.5 Organisation du document

Après avoir rappelé, dans le *chapitre 1*, les différentes définitions de base sur les aérosols, leurs propriétés et les moyens d'observation, nous consacrerons le *chapitre 2* à la description des différents instruments utilisés dans ce travail, ainsi que les traitements appliqués aux données recueillies et permettant d'estimer les propriétés des aérosols. La dernière partie de ce chapitre sera consacrée à la synergie lidar/photomètre.

Le *chapitre 3* présentera, tout d'abord, les résultats de l'ensemble de la base de données accessible sur le site de Lille. L'analyse de « l'histoire » des masses d'air nous permettra de

préciser le contexte des observations. Les propriétés intégrées sur la colonne ainsi que la distribution verticale des aérosols seront présentées pour les différentes séries de données disponibles. Nous présenterons ensuite une estimation de la concentration massique au niveau du sol que nous comparerons aux données in situ issues du réseau Atmo-NPDC. Le site de Lille étant urbain, nous essayerons de mettre en évidence l'impact anthropique sur l'émission de particules en étudiant, pour de plus fines échelles temporelles, les propriétés des aérosols. Un certain nombre d'évènements particuliers, d'origine plus inhabituelle ont pu être détectés depuis l'observatoire du LOA. Nous présenterons certains de ces évènements, et notamment la détection du panache de cendres volcaniques issues de l'éruption de l'Eyjafjöll. Finalement, l'impact radiatif des aérosols a été calculé en utilisant les propriétés des aérosols issues de notre étude et en nous appuyant sur un code de transfert radiatif (GAME, Dubuisson et al. (1996)). Ces résultats feront l'objet d'une dernière partie.

Dans *le chapitre 4*, nous présenterons les résultats des observations pour le site de Mbour en suivant, dans un premier temps, la même procédure que pour les résultats consacrés à Lille. En supplément, nous enrichirons notre étude en profitant de la proximité de l'orbite du lidar spatial CALIOP afin de présenter quelques comparaisons terrestres-spatiales. Enfin, différents modèles sont spécialisés dans la prédiction des aérosols désertiques. Nous comparerons donc les profils d'extinction simulés par l'un d'eux (NMMB/BSC-Dust) avec ceux obtenus par combinaison des données lidar et photomètre.

La déclinaison mobile du couple lidar-photomètre, développé au LOA en 2011, permet l'étude à haute résolution spatiale et temporelle de la variabilité des propriétés intégrées et verticales des aérosols. Un tel système a été déployé au travers différentes campagnes. Nous présenterons dans *le chapitre 5* l'une d'entre elles : DRAGON (USA, 2011).

Enfin, les différentes conclusions et perspectives permises par notre travail seront présentées dans *le chapitre 6*.



Le *chapitre 2* a pour but de présenter les instruments utilisés au cours de notre étude, la méthodologie employée et les différentes propriétés des aérosols accessibles. Si le TEOM et le photomètre sont des instruments de série dont les caractéristiques et les différents traitements sont bien documentés, il n'en est pas de même du lidar auquel une partie plus détaillée sera consacrée. Nous présenterons les différentes corrections instrumentales inhérentes au type de lidar utilisé ainsi que les algorithmes développés (détection de couches, détection nuageuse) en phase d'intégration dans le réseau national ORAURE. La dernière partie de ce chapitre sera consacrée à la synergie lidar-photomètre qui permet une restitution plus fidèle et complète des propriétés des aérosols : de l'extinction jusqu'à la concentration.

# Chapitre 2

## Instrumentation et méthode

L'observation des aérosols dans leur milieu est permise, depuis le sol, par les mesures de télédétection (passive et active) et les mesures in situ (introduites dans le chapitre 1, partie 1.2.1). Nous décrivons plus précisément, dans cette partie, les instruments utilisés au cours de notre travail.

### 2.1 Le TEOM



FIGURE 2.1 – TEOM 1400A (à gauche) et une cheminée de prélèvement (à droite).

Les mesures in situ effectuées à Mbour sont réalisées à l'aide d'un TEOM commercial (TEOM 1400A de Thermo Scientific) qui mesure la concentration massique des particules.

Dans son article, Marticorena et al. (2010) décrit les caractéristiques de l'instrument en fonctionnement à Mbour ainsi que la procédure de mesure.

En résumé, le filtre d'entrée permettant de sélectionner les particules selon leur taille est placé en environnement extérieur, sur le toit de l'observatoire. Il aspire l'air verticalement (afin de ne pas introduire de biais dépendant de la direction du vent) et laisse pénétrer les particules de diamètre aérodynamique inférieur à 10  $\mu\text{m}$ . La concentration massique mesurée correspond donc aux  $\text{PM}_{10}$ . La sensibilité de l'instrument permet des mesures de concentrations de quelques microgrammes à quelques grammes.

Le TEOM est constitué d'un élément conique oscillant surmonté d'un filtre. Lorsque des particules sont collectées dans le filtre, l'augmentation induite de la masse du système provoque une diminution de la fréquence d'oscillation. La différence de fréquence est en effet proportionnelle à l'inverse de la racine carrée de la différence de la masse du filtre (Patashnicka et Rupprechta (1991)). La perturbation de l'oscillation est alors convertie en variation de masse du filtre. La concentration massique en particules est finalement calculée en divisant la masse mesurée pendant un intervalle de temps  $\Delta t$  par le volume d'air considéré pendant cette durée (le débit d'air est mesuré en continu).

Le filtre de collecte des particules est chauffé et maintenu à une température de 50 °C afin d'en assurer la stabilité thermique et d'éviter tout problème de condensation. Ce chauffage présente néanmoins l'inconvénient d'engendrer la perte des composés les plus volatils comme les COV ou les embruns marins et peut donc entraîner une sous-estimation de la concentration totale massique dans des environnements riches en de tels composés. C'est malheureusement le cas de l'observatoire de Mbour qui, à moins d'une centaine de mètres de l'Océan Atlantique, est soumis de manière quasi-quotidienne à la brise de mer qui apporte quantité d'embruns marins et de composés organiques.

De part les concentrations importantes de poussières désertiques rencontrées sur le site d'observation, les filtres de l'instrument et d'entrée peuvent saturer au delà de quelques jours de mesures. Pendant les événements de poussière, ils sont alors changés 2 à 3 fois par mois. Il en est de même durant la saison humide, pendant laquelle l'humidité importante peut rapidement altérer leur qualité.

## 2.2 Le photomètre

### 2.2.1 Caractéristiques instrumentales

Le photomètre est un instrument de télédétection passive qui mesure, à plusieurs longueurs d'onde, la transmission atmosphérique, ainsi que la luminance du ciel pour certains angles de diffusion. La source lumineuse qu'utilisent la plupart des photomètres est la lumière du Soleil. Les données photométriques sont donc limitées par la durée du jour et par la présence de nuages. En pratique, les mesures ne peuvent être réalisées pour des angles solaires zénithaux trop importants. Elles sont ainsi limitées à des masses

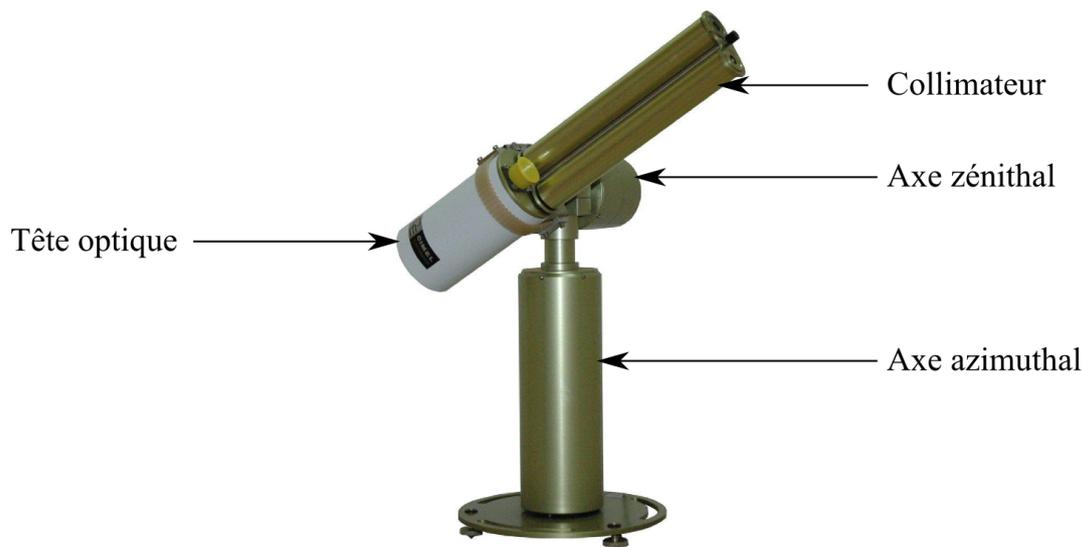


FIGURE 2.2 – Photomètre CE-318.

optiques ( $\approx 1/\cos\theta$  où  $\theta$  est l'angle zénithal) inférieures à 5 (soit  $\theta_{max} \approx 80^\circ$ ), ce qui réduit encore la durée potentielle d'observation journalière. Certains photomètres permettent d'effectuer des mesures de rayonnement direct (visée de la source lumineuse) de nuit, en s'appuyant sur la lumière réfléchiée par la Lune ou encore sur celle émise par des étoiles lointaines.

Le photomètre solaire CE-318 (présenté en Figure 2.2) équipant le réseau AERONET et utilisé dans notre travail est composé :

- de deux axes robotisés à haute résolution qui permettent d'assurer un positionnement spatial précis ( $0,05^\circ$ ) dans tout le demi-espace ( $\theta \in [-90; 90]$ ,  $\varphi \in [0; 360]$ ).
- d'une tête optique comportant deux détecteurs (photodiode au silicium et InGaAs) à faible ouverture de champ ( $1,3^\circ$ ) couvrant le domaine spectral depuis l'ultraviolet (UV) jusqu'au proche infrarouge (IR). Une roue porte-filtre permet le défilement des 9 filtres devant les détecteurs. Le modèle standard dispose de filtres de largeur 10 nm centrés en 340, 380, 440, 500, 670, 870, 936, 1020 et 1640 nm. Ces filtres ont été choisis en dehors des bandes d'absorption gazeuse (dans les fenêtres de transmission atmosphériques), excepté celui centré en 936 nm, dédié à la mesure de l'eau précipitable.
- d'un système de pointage à quatre-quadrants qui permet de s'assurer de la visée précise du Soleil. Le photomètre intègre la position de l'étoile ainsi que son déplacement relatif grâce à la connaissance de « l'équation du Soleil » et du renseignement des coordonnées géographiques de l'instrument. Il est alors capable de suivre le déplacement du Soleil avec une précision de  $1^\circ$ . Le système à quatre-quadrants permet d'affiner l'angle de visée jusqu'à une précision meilleure que  $0,1^\circ$ . Pour ce

faire, on compare l'énergie reçue par chacun des 4 détecteurs. Si la distribution d'éclairement solaire est homogène, cela signifie que le Soleil est bien au centre de l'angle de visée.

- d'un collimateur qui permet d'éliminer toute lumière parasite, principalement pour les mesures de diffusion du ciel.
- d'un boîtier externe qui permet d'assurer les fonctions de pilotage, d'acquisition et de stockage des données et de communication (par réseau ou satellite).

Le photomètre, comme tout instrument de terrain, doit également satisfaire aux exigences de fonctionnement en conditions extrêmes. Sa stabilité est assurée pour des températures extérieures comprises entre -30 et 70 °C et pour une humidité relative (RH) de 0 à 100 %. La faible consommation électrique du photomètre (<2 W) permet de l'alimenter grâce à un panneau solaire.

Différents scénarios de mesure sont programmables et permettent d'accéder de manière plus ou moins directe aux propriétés radiatives et microphysiques des particules.

### 2.2.2 Mesures de rayonnement solaire direct

La mesure de l'éclairement direct  $E_\lambda$ , mesuré au niveau du sol, permet d'accéder à l'épaisseur optique totale de la colonne atmosphérique  $\tau_\lambda$ . Elle s'exprime comme le produit de l'éclairement hors atmosphère (constante solaire)  $E_{0\lambda}$  et de la transmission atmosphérique :

$$E = E_{0\lambda} \exp\left(\frac{-\tau_\lambda}{\mu_0}\right) \quad (2.1)$$

où  $\mu_0$  est le cosinus de l'angle solaire zénithal. L'épaisseur optique totale mesurée est la contribution à l'atténuation (ou extinction) de toutes les composantes atmosphériques (molécules, particules aérosols et éventuellement nuageuses). La correction de l'épaisseur optique moléculaire permet de restituer l'épaisseur optique aérosols. La précision sur cette grandeur est  $< \pm 0,01$  pour  $\lambda > 440$  nm et  $< \pm 0,02$  pour les longueurs d'ondes inférieures (Holben et al. (1998)). Dans sa configuration standard, le photomètre réalise des mesures directes toutes les 15 minutes, en absence de précipitation. Un détecteur d'humidité permet, le cas échéant, de stopper le protocole de mesures, et impose alors au photomètre le retour à sa position de repos, tête optique orientée vers le sol. La mesure directe s'effectue pour 8 filtres (de 340 à 1020 nm), trois fois successives, afin de constituer un triplet qui permet de juger de la stabilité de l'atmosphère et de détecter la présence de nuages (Smirnov et al. (2000)).

Le coefficient d'Angström peut être calculé directement, à partir d'un couple d'épaisseurs optiques aérosols à 2 longueurs d'onde différentes.

$$\alpha = -\frac{\ln \frac{\tau_{\lambda_1}}{\tau_{\lambda_2}}}{\ln \frac{\lambda_1}{\lambda_2}} \quad (2.2)$$

### 2.2.3 Mesures de rayonnement du ciel diffusé

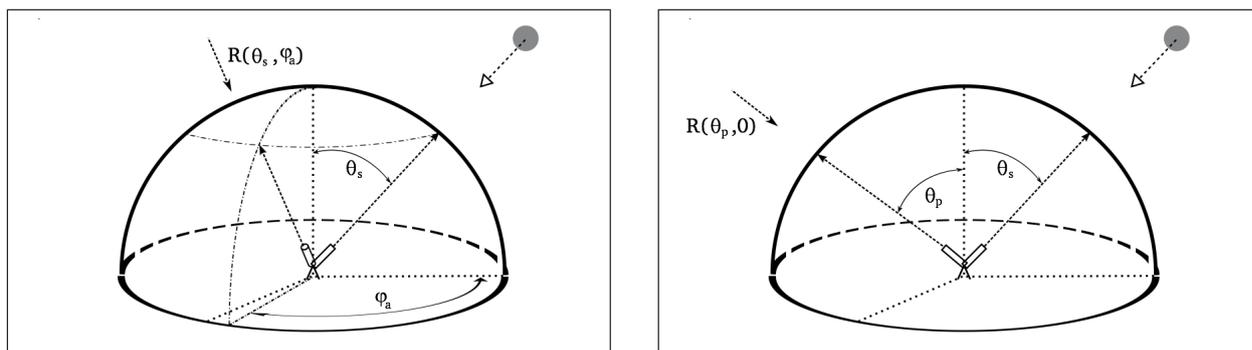


FIGURE 2.3 – Les deux scénarios de mesures de rayonnement diffus par le photomètre : l'almucantar (à gauche) et le plan principal (à droite). Source Torres (2012).

Le photomètre réalise des mesures de luminances diffusées dites, diffusion de ciel, dans les canaux 440, 670 870 et 1020 nm dans deux géométries distinctes (Figure 2.3).

- L'almucantar correspond à la mesure de luminance au niveau de l'élévation du Soleil, pour différents angles zénithaux (0-360°). Les mesures de luminance de ciel ne sont pas aussi fréquentes que celles de luminance directe. La procédure d'almucantars est limitée à 4 par jour, pour des angles zénithaux,  $\varphi$ , d'environ 55, 60,70 et 75 °.
- Le plan principal correspond à la mesure de luminance pour l'angle azimutal solaire et différentes valeurs d'angles zénithaux. Les mesures de plan principal sont effectuées chaque heure lorsque l'angle solaire zénithal est inférieur à 60°.

Les mesures de luminance diffuse ne permettent pas d'accéder directement aux propriétés microphysiques des particules. Il faut procéder pour cela à l'inversion des données ( $\tau(\lambda)$  et  $L(\lambda, \Theta)$ ). Dans leur article, Dubovik et King (2000) présentent la méthode d'inversion appliquée dans AERONET permettant d'accéder à la distribution en taille en volume  $\frac{dV}{d \ln r}$ , à l'indice de réfraction complexe  $m(\lambda)$ , à l'albédo de diffusion simple  $\varpi_0(\lambda)$  et à la fonction de phase  $p(\Theta, \lambda)$ . Le taux de non sphéricité des particules est également disponible (Dubovik et al. (2002b)),

L'inversion des données requiert tout d'abord un modèle direct qui, pour une atmosphère donnée (molécules et aérosols dont on définit les propriétés microphysiques),

permet de simuler des mesures de multi-angulaires et multi-spectrales avec un code de transfert radiatif. Les luminances simulées sont ensuite comparées aux mesures. Le processus itère pour différents modèles aérosols jusqu'à converger vers la meilleure concordance possible. On considère l'erreur faible sur la restitution pour une différence de l'ordre de 5 % (<1 %) entre luminances (épaisseurs optiques) simulées et réelles.

Les sources d'erreurs sont multiples : étalonnage, pointage, incertitudes sur la réflectance du sol... Dubovik et al. (2000) présente, dans son article, une estimation des erreurs commises sur la restitution des paramètres microphysiques inversés. Globalement, la précision est meilleure pour des épaisseurs optiques importantes. Certains paramètres y sont cependant plus ou moins sensibles. La qualité de l'inversion de l'indice de réfraction complexe et de l'albédo de diffusion est fortement dégradée pour de faibles épaisseurs optiques. Les inversions sont en revanche de meilleure qualité pour des angles zénithaux importants qui impliquent un plus grand nombre d'angles de diffusion à disposition et des angles de diffusion plus élevés.

## 2.2.4 Niveaux de qualité

Tous les paramètres aérosols décrits précédemment ainsi que les mesures de luminances directes et de luminances de ciel sont disponibles sur le site AERONET pour trois niveaux de qualité.

- Level 1 : toutes les données.
- Level 1.5 : données filtrées des nuages. Le filtrage des nuages est basé sur la stabilité du triplet pour les mesures directes et sur la symétrie azimutale des mesures d'aluminate pour les luminances diffusées.
- Level 2 : données filtrées des nuages et contrôle qualité. Les données peuvent atteindre le niveau 2 après vérification/étalonnage de l'instrument. Les coefficients d'étalonnage sont vérifiés, et une interpolation est réalisée avec les coefficients du précédent étalonnage. L'application des nouveaux coefficients permet le passage au niveau 2 de qualité (qui n'est donc par conséquent pas disponible en quasi temps réel).

Les mesures photométriques permettent une estimation précise des propriétés radiatives et microphysiques des particules. Celles-ci sont cependant intégrées sur la colonne atmosphérique. La télédétection active permet, grâce au contrôle de la source rayonnante, d'accéder à des informations sur la répartition verticale des particules. Celle-ci s'avère essentielle tant pour des objectifs de qualité de l'air, de validation des modèles que pour l'estimation de l'impact radiatif des aérosols.

## 2.3 Le lidar

Le lidar est, par opposition au photomètre, un instrument de télédétection active, dont le principe de base est l'émission et la réception d'un faisceau laser rétrodiffusé (molécules, aérosols et nuages) ou réfléchi (surface). Les champs d'applications sont très variés. Les deux principaux sont :

- l'étude des surfaces. La réception de l'écho du faisceau laser émis par un lidar aéroporté permet, grâce à un système de balayage, une étude de la topographie des sols, des océans, ou encore de la canopée.

- l'étude de l'atmosphère. Différentes familles de lidars permettent d'explorer plusieurs branches de la thématique atmosphère. Les lidars Doppler permettent d'étudier les champs de vitesse de vents grâce à l'étude de la variation de fréquence du faisceau laser réceptionné (Chanin et al. (1989)). La détection hétérodyne permet de mesurer la différence de fréquence émission/réception qui est ensuite reliée au déplacement des particules et donc de la masse d'air les contenant. Ces lidars sont utilisés au niveau des aéroports et dans les avions afin de détecter les champs de turbulence, et dans le marché éolien afin de juger du potentiel éolien d'un site. Les lidars Raman utilisent également la déviation de fréquence, dite diffusion inélastique (Ansmann et al. (1990)). Dans ce cas, le décalage est dû à l'excitation et désexcitation de certains niveaux atomiques des molécules qui entraîne l'émission de rayonnement à une longueur d'onde spécifique pour chaque molécule. Pour étudier différentes molécules, les lidars doivent donc disposer des voies de réception adaptées pour chacune d'entre elles. Les lidars DIAL (Differential Absorption) permettent de mesurer la concentration des composés gazeux ( $H_2O$ ,  $CO_2$ ,  $O_3$ ). L'observation est basée sur l'émission d'un faisceau à 2 longueurs d'onde différentes (Geiger (1993)). L'une d'entre elles est située dans la bande d'absorption de la molécule considérée  $\lambda_{ON}$ . L'autre,  $\lambda_{OFF}$ , est située sur une portion moins absorbante de la raie d'absorption. La quantité de molécules absorbantes est alors restituée en analysant le rapport des faisceaux rétrodiffusés à ces deux longueurs d'onde. Finalement, les lidars qui nous intéressent dans ce travail sont ceux dédiés à l'étude des aérosols. Une grande diversité d'instruments existent au sein de cette famille. Certains disposent de voies de réception avec mesure de dépolarisation, utile pour l'étude des particules non-sphériques. Certains instruments sont dotés de plusieurs longueurs d'onde. Le rapport des signaux reçus aux différentes longueurs d'onde (rapport de couleurs) donne une indication de la taille des particules.

Les instruments utilisés dans ce travail sont des micro-lidars CIMEL (CAML-CE370). Ce sont des instruments « simples » (une seule longueur d'onde, pas de dépolarisation), mais conçus de manière à pouvoir assurer un fonctionnement automatique et continu, ce qui est une condition nécessaire à l'étude des tendances et variabilités des aérosols pour différentes échelles temporelles (Spinhirne (1993); Welton et al. (2001)).

### 2.3.1 Caractéristiques instrumentales

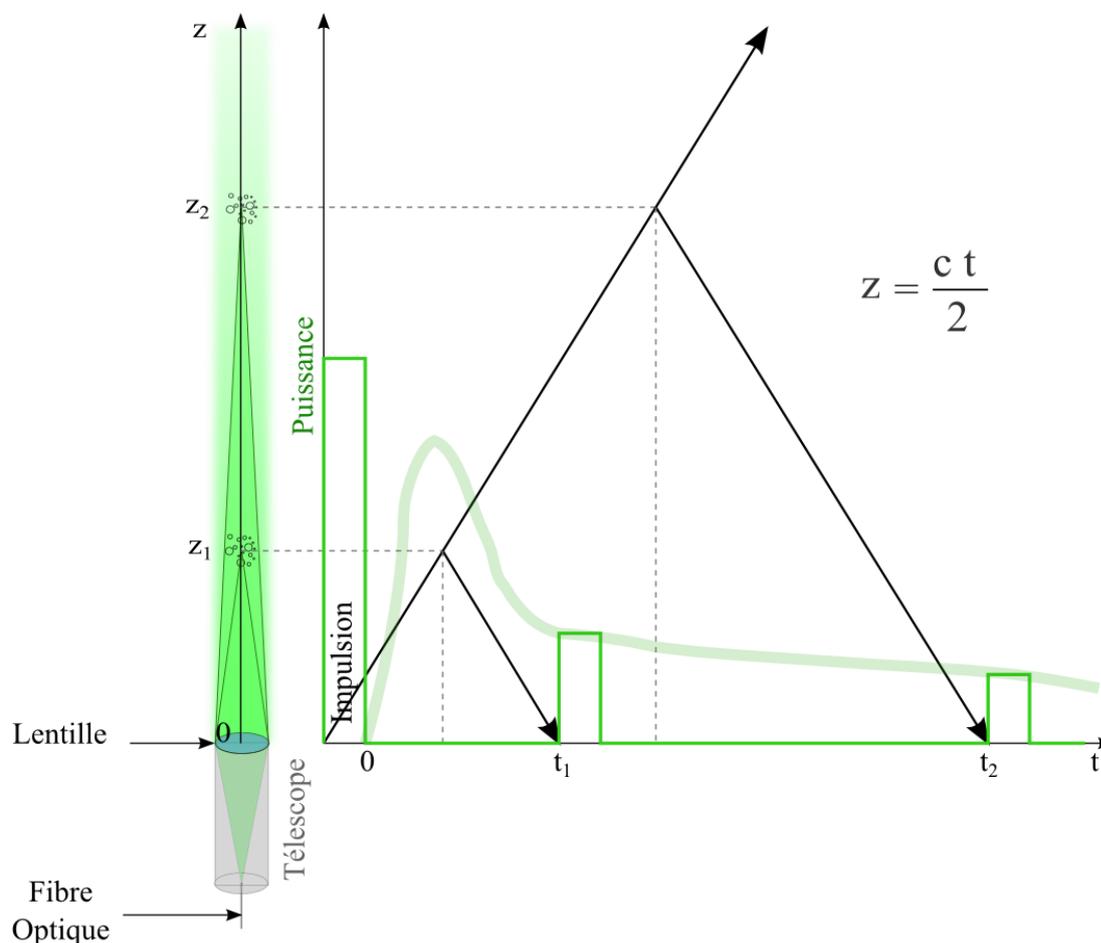


FIGURE 2.4 – Principe de détection du lidar. Le pulse laser émis est diffusé par les composantes atmosphériques et détecté par le télescope. Le décalage temporel entre l'émission du pulse et la réception donne l'altitude des centres de diffusion de la porte considérée.

Le CAML-CE370 est composé d'un laser Nd-Yag II qui émet des pulses laser à 532 nm, d'une durée d'une dizaine de nanosecondes et d'une énergie d'environ  $20 \mu\text{J}$ <sup>1</sup>. La haute cadence de tirs (4,7 kHz) permet d'assurer une puissance de 100-150 mW en période de fonctionnement normal.

Le pulse émis est propagé depuis le laser contenu dans le rack jusqu'au « télescope » (lunette) via une fibre optique de 10 m. L'emploi de la fibre optique permet de séparer la partie optique (en environnement extérieur) de la partie électronique qui pourra alors être

1. La puissance des lasers utilisés a évolué au cours des séries de mesures pour les deux sites (vieillesement, changement de modèles).

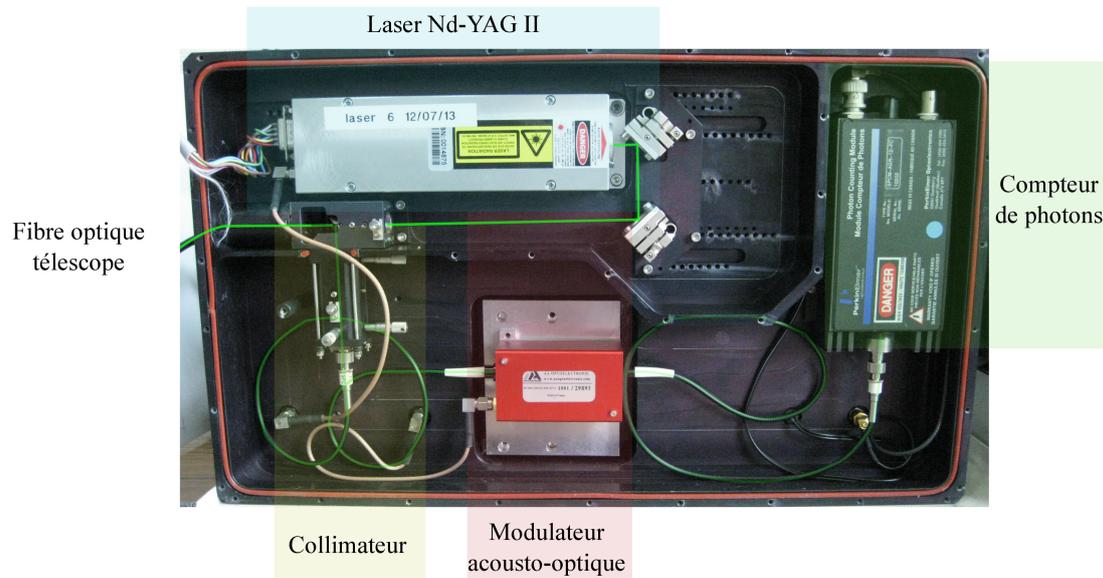


FIGURE 2.5 – Photographie du rack lidar et parcours du faisceau laser (en vert).

isolée (température, humidité) plus facilement. En sortie de télescope, le faisceau laser a un diamètre d'environ 20 cm, qui est le diamètre du doublet de lentilles à l'extrémité de la lunette. À ce niveau, les conditions de sécurité oculaires sont respectées, ce qui permet de ne pas restreindre l'utilisation de l'instrument à certaines zones sécurisées.

Les aérosols et molécules situés dans le faisceau laser vont diffuser le rayonnement laser dans toutes les directions. Une partie du rayonnement sera donc diffusée dans la même direction et dans le sens opposé du faisceau incident. Cette fraction de rayonnement rétrodiffusé suit le trajet inverse du pulse émis, est focalisé par la lentille jusque dans la fibre optique, puis atteint, dans le rack, un système de séparateur de faisceau (miroir semi-réfléchissant incliné à  $45^\circ$ ). Il passe ensuite à travers un filtre centré en 532 nm d'une largeur de 0,2 nm afin de limiter le bruit de fond radiatif et de ne conserver que les photons à la longueur d'onde considérée. La détection est réalisée avec un compteur de photons (photodiode avalanche APD) dont les comptes numériques seront moyennés sur 4096 tirs par un FPGA (Field Programmed Gate Array) afin d'augmenter le rapport signal sur bruit (RSB). La détection est fractionnée en 2048 portes de 100 ns chacune. Ce découpage permet d'obtenir un profil de comptes numériques de 0 à 30 km avec une résolution spatiale de 15 m.

Lors de la phase d'émission, des réflexions aux extrémités de la fibre optique laissent pénétrer une fraction du pulse dans le circuit de détection. Afin de limiter la contribution de ce signal parasite, un modulateur acousto-optique synchronisé sur l'émission du pulse permet de dévier 99,9 % du signal. La fraction résiduelle reste néanmoins suffisante pour éblouir le compteur de photons pendant un court laps de temps. Les portes de réception

concernées pendant cette durée sont inexploitable, c'est le phénomène « d'After Pulse ». Les premières mesures utiles du profil correspondent à une altitude de  $z_{min} \approx 250 \text{ m}$  selon les instruments.

Depuis décembre 2011 à Lille et juin 2013 à Mbour, les télescopes ont été placés au sein d'enceintes régulées thermiquement afin d'éviter les problèmes de condensation et de limiter d'éventuelles dépendances résiduelles du système optique à la température.

Les données sont envoyées toutes les 15 minutes au serveur informatique du laboratoire afin d'y être stockées et traitées en quasi temps réel.

Caractéristiques	Valeur
Laser	Nd : YAG (fréquence doublée : 532 nm), Q-Switch
Énergie	20 $\mu\text{J}$
Fréquence	4,7 kHz
Champ d'observation	55 (110) $\mu\text{rad}$ pour fibre simple (double) coeur
Résolution temporelle	Minimale : 1 s, Effective : 1 min
Résolution spatiale	15 m
Lentille	diamètre 20 cm, focale 0,9 m
Rack	dimension standard 6U, poids : 30 kg

TABLE 2.1 – Principales caractéristiques du lidar.

### 2.3.2 L'équation lidar

L'équation lidar relie la puissance rétrodiffusée  $P(z)$  à l'altitude  $z$  (en W, proportionnelle au nombre de photons détectés) à la puissance initiale  $P_0$  en fonction des propriétés optiques des molécules et des particules d'aérosols, voire nuageuses. En se limitant à la contribution des molécules et aérosols, cette puissance s'exprime comme

$$P(z) = \frac{KP_0}{z^2} O(z) (\beta_{mol}(z) + \beta_{aer}(z)) \exp \left[ -2 \int_{z_{min}}^z (\sigma_{mol}(z') + \sigma_{aer}(z')) dz' \right] + B \quad (2.3)$$

où  $\beta_{mol}$ ,  $\beta_{aer}$ ,  $\sigma_{mol}$  et  $\sigma_{aer}$  sont respectivement les coefficients de rétrodiffusion ( $m^{-1}.sr^{-1}$ ) et d'extinction ( $m^{-1}$ ) des molécules et aérosols.  $K$  est la constante lidar et décrit, entre autres, l'efficacité du système optique et de détection.  $O(z)$  est la fonction de recouvrement et exprime la focalisation partielle du rayonnement rétrodiffusé dans la fibre optique pour les altitudes au dessous du point de recouvrement total ( $O(z_{fo}) = 1$ ). Le dénominateur  $z^2$  exprime l'effet d'angle solide : plus les particules sont élevées, plus l'angle solide leur permettant de rétrodiffuser dans le champ du télescope est faible. Les termes  $\beta$  traduisent la fraction de rayonnement rétrodiffusée, et le terme exponentiel la transmission

aller-retour.  $B$  représente le bruit radiatif. Le Soleil émet des photons à  $\lambda = 532 \text{ nm}$ . Ces photons vont s'ajouter à ceux du faisceau laser émis par le lidar, ce qui entraîne l'ajout d'une constante le long du profil lidar. Ce paramètre dépend bien sûr de l'heure de la journée et des conditions d'ensoleillement. On s'affranchit de cette constante en retranchant, au signal, la moyenne de la puissance rétrodiffusée entre 22 et 30 km. Pour ces altitudes, la rétrodiffusion par les molécules et aérosols est en effet négligeable et le signal respectif reçu représente alors le bruit radiatif. Par souci de simplification d'écriture, nous omettrons par la suite ce terme lorsque nous parlerons de la puissance rétrodiffusée  $P(z)$  qui sera alors déjà corrigée du fond radiatif.

La contribution de l'atmosphère comprend des termes aérosols et moléculaires.

Le profil de concentration moléculaire peut être déterminé à l'aide des profils de température et de pression issus de radiosondages, ou estimés à l'aide de modèles, dans l'hypothèse d'un gaz parfait. Dans notre travail, nous avons utilisé un modèle standard simple de profil vertical de pression et de température qui nous a permis, connaissant le coefficient d'extinction moléculaire, d'estimer le profil d'extinction moléculaire  $\sigma_{mol}(z)$ . Le profil de rétrodiffusion moléculaire est proportionnel au profil d'extinction :

$$S_{mol} = \frac{\sigma_{mol}}{\beta_{mol}} = \frac{8\pi}{3} \quad (2.4)$$

La seule variation atmosphérique restante provient donc des aérosols. L'accès aux propriétés optiques des aérosols sera expliquée dans la partie 2.4.1.1.

### 2.3.3 Corrections instrumentales

Différentes corrections instrumentales sont à appliquer préalablement au traitement des signaux. Celles-ci sont propres à chacune des configurations instrumentales.

#### 2.3.3.1 Non linéarité des détecteurs

Les détecteurs APD (Avalanche Photo Diode) sont des détecteurs non linéaires qui ont tendance à sous-estimer les comptes de photons. Cette sous-estimation est compensée par l'introduction d'un facteur de correction  $Fc$  qui dépend des comptes  $C$  de chaque porte de réception.

$$C = C.Fc(C) \quad (2.5)$$

La sous-estimation est d'autant plus importante que les comptes le sont (2.6) et aboutit, à partir d'un seuil propre à chacun des détecteurs, à un phénomène de saturation au-delà duquel l'exploitation des mesures n'est plus possible. De part la décroissance avec le carré de l'altitude de la puissance détectée, ce phénomène se limite à la détection de certaines couches très denses et de basse altitude.

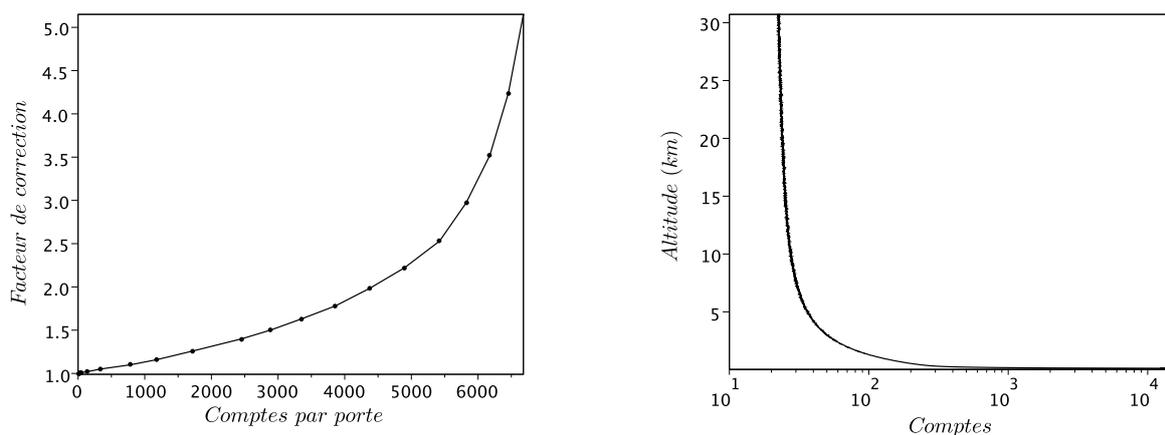


FIGURE 2.6 – Facteur de correction de la non linéarité des détecteurs (à gauche) et signal d'écho enregistré lors d'une mesure d'After Pulse (à droite)

### 2.3.3.2 After Pulse

Le phénomène d'After Pulse (introduit en 2.3.1) est responsable de la perte de signal utile dans les premières portes de réception. Les portes suivantes sont exploitables, mais sont, selon le réglage du modulateur acousto-optique, plus ou moins contaminées par le signal parasite induit par le temps de recouvrement du détecteur initialement ébloui. La correction de cet effet est réalisée en retranchant au signal reçu le signal d'écho. Celui-ci est mesuré chaque semaine en accumulant pendant 10 minutes les tirs avec le télescope recouvert d'un corps noir afin de ne pas être affecté par la composante atmosphérique. La correction de l'After Pulse affecte surtout les portions de signal de basses altitudes (Figure 2.6 de droite) et est d'autant plus importante dans des conditions d'atmosphère claires pour lesquelles la rétrodiffusion des aérosols est faible.

### 2.3.3.3 Fonction de recouvrement

Le calcul théorique de la fonction de recouvrement est complexe, étant donné les imprécisions sur les différents alignements optiques. Sa détermination peut se faire de manière expérimentale.

Une des méthodes consiste à réaliser des tirs en position horizontale (Berkoff et al. (2003)). Lorsque l'atmosphère est stable, on peut considérer que celle-ci est relativement homogène sur quelques kilomètres et pour une altitude donnée, d'un point de vue de la concentration en aérosols. Dans ce cas, l'équation lidar s'écrit en fonction de la distance  $r$  et pour l'altitude  $z_0$  :

$$P(r) r^2 = K'O(r) (\beta_{mol}(z_0) + \beta_{aer}(z_0)) \exp[-2(\sigma_{mol}(z_0) + \sigma_{aer}(z_0)) r] \quad (2.6)$$

L'application de la fonction  $\ln$  nous donne pour le signal corrigé de l'effet d'overlap ( $P'(r) = P(r)/O(r)$ ) :

$$\ln(P'(r)r^2) = \ln(K'') - 2(\sigma_{mol}(z_0) + \sigma_{aer}(z_0))r \quad (2.7)$$

Cette écriture permet de mettre en évidence la dépendance linéaire du signal reçu en fonction de la distance. Le profil réel obtenu n'est cependant pas linéaire pour les basses altitudes, mais est inférieur au profil linéaire (Figure 2.7, à gauche). Cette sous-estimation est le résultat de la focalisation partielle du signal dans la fibre optique pour les basses altitudes. La différence entre le profil linéaire théorique (non affecté par le recouvrement partiel) et le profil mesuré nous permet d'accéder à la fonction de recouvrement. En pratique, au-delà d'une certaine altitude (6-8 km), le profil n'est plus linéaire car le faisceau parvient de moins en moins à traverser la couche d'atmosphère. Les valeurs d'extinction aérosols étant en général plus élevées au niveau du sol, le faisceau est stoppé plus rapidement en configuration horizontale. La charge en aérosols module évidemment la distance potentielle de propagation du faisceau. Nous « fittons » donc le signal rétrodiffusé dans sa partie la plus linéaire (pour un recouvrement total, et avant une trop forte atténuation). La fonction de recouvrement se calcule comme :

$$O(r) = \exp\left(\ln(P(r)r^2) - fit_{linéaire}\right) \quad (2.8)$$

La fonction de recouvrement obtenue est inférieure à 1 pour  $z < z_{fo}$  et égale à 1 pour  $z \geq z_{fo}$ .

L'inconvénient de cette méthode est que la fonction de recouvrement calculée dépend alors de la zone d'ajustement de la courbe. Cette dépendance est néanmoins moins importante lorsque le télescope est correctement réglé, ce qui implique pour le signal une partie linéaire plus marquée et une fonction de recouvrement monotone (Figure 2.7 de droite).

La détermination ou vérification de la fonction de recouvrement est également réalisable en configuration verticale. Les conditions atmosphériques nécessaires sont, dans ce cas, une faible concentration en aérosols ( $\tau_{532} \leq 0.10$ ) localisés dans une couche limite peu développée verticalement (petite devant  $z_{fo}$ ). La technique consiste alors à comparer le signal mesuré au-dessus de la couche limite à un signal lidar simulé purement moléculaire (d'après des conditions standards atmosphériques) :

$$P_{mol}(z)z^2 = \beta_{mol}(z) \exp\left[-2 \int_{z_{min}}^z (\sigma_{mol}(z')) dz'\right] \quad (2.9)$$

Cette méthode a été utilisée régulièrement durant la période d'observation, lorsque les conditions atmosphériques étaient réunies (Figure 2.8) afin de vérifier et recalculer, si nécessaire, la fonction de recouvrement.

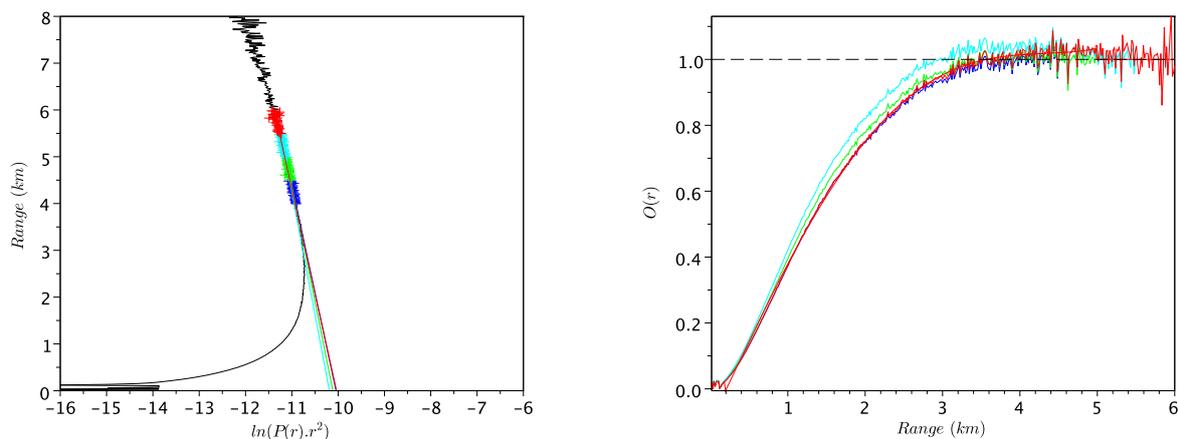


FIGURE 2.7 – À gauche : en noir, le signal rétrodiffusé en configuration horizontale (Lille, 18/02/2013) ; en couleur, les différents fits linéaires effectués pour différentes zones d’ajustement. À droite : les fonctions de recouvrement résultantes. La zone de recouvrement total est atteinte pour  $z_{fo} \approx 4 \text{ km}$ .

La fonction de recouvrement est dépendante des configurations instrumentales. Un des points les plus sensibles est le réglage de la position de la fibre optique, à l’extrémité du télescope, à l’aide de vis micrométriques. Une mauvaise position de la fibre peut entraîner une fonction de recouvrement non monotone : au delà de  $z_{fo}$ , la fonction de recouvrement devient inférieure à 1. Le signal des hautes couches est alors également sous-estimé. La vérification des pentes à haute altitude entre signal moléculaire simulé et signal mesuré permet de s’assurer de la monotonie de  $O(r)$ .

### 2.3.4 Traitement des données

Avec plus de 6 années de données, des évolutions instrumentales et des situations d’observation variées, le traitement des données lidar (qualité des données et produits physiques) nécessite adaptation et automatisme. Le développement et l’automatisation des procédures ont été réalisés au cours de ce travail. L’algorithme de traitement BASIC est d’ailleurs en phase d’intégration dans la partie de traitement des données des lidars qu’intègre ORAURE. Il a été préalablement testé sur différentes familles d’instruments, pour différentes longueurs d’onde, ... donnant des premiers résultats satisfaisants au regard des différentes configurations instrumentales.

#### 2.3.4.1 Filtrage spectral

Afin d’augmenter le rapport signal sur bruit des signaux sans perte de résolution temporelle, causée par un moyennage temporel, ou en évitant les déformations que peut

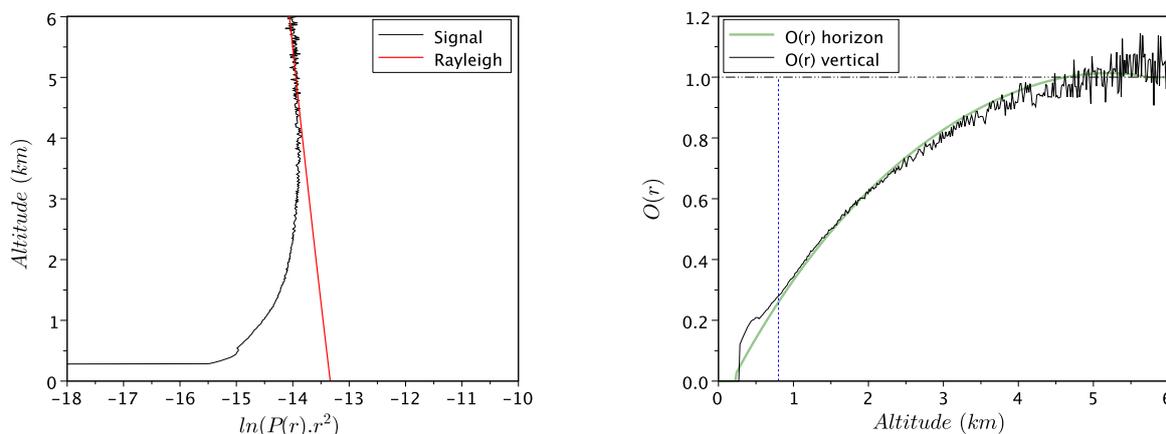


FIGURE 2.8 – À gauche, le signal rétrodiffusé mesuré à Lille, le 10/10/2010 et le signal moléculaire simulé (Rayleigh). À droite, les fonctions de recouvrement obtenues lors de tirs horizontaux (vert), et par comparaison avec le signal moléculaire simulé (noir). Les pointillés bleus démarquent la zone affectée par les particules en-deçà de laquelle la vérification de la fonction de recouvrement n'est pas permise.

provoquer un moyennage vertical des portes, nous avons mis en place un filtrage spectral des données.

Le signal utile (rétrodiffusion des molécules, couches d'aérosols et/ou nuages) correspond à des variations « lentes » de signal s'étendant sur plusieurs portes successives, contrairement au bruit qui est un signal de haute fréquence. Afin de réduire ce dernier, on obtient tout d'abord le spectre du signal par transformée de Fourier (FFT). On multiplie ensuite le spectre par une gaussienne centrée au niveau des basses fréquences afin d'effectuer un filtrage passe-bande. L'utilisation d'une gaussienne (au lieu d'une fonction porte, par exemple) permet d'éviter les effets de bords qui provoquent des oscillations parasites. Le signal filtré est finalement obtenu par transformée inverse du produit spectre-gaussienne.

L'intensité du filtrage dépend de la largeur de la gaussienne utilisée (Figure 2.9). Celle-ci peut être adaptée en fonction des caractéristiques instrumentales. Au cours de notre étude, nous avons appliqué une gaussienne d'une largeur de 50 % de la taille du spectre total.

### 2.3.4.2 Détection nuageuse

L'étude des propriétés des aérosols implique l'interprétation des données en l'absence de nuages. Les données photométriques disposent d'une détection nuageuse pour les observations directes et diffuses (2.2.4). Bien que le lidar et le photomètre réalisent des mesures simultanées sur le même site, la différence des angles de visée des deux ins-

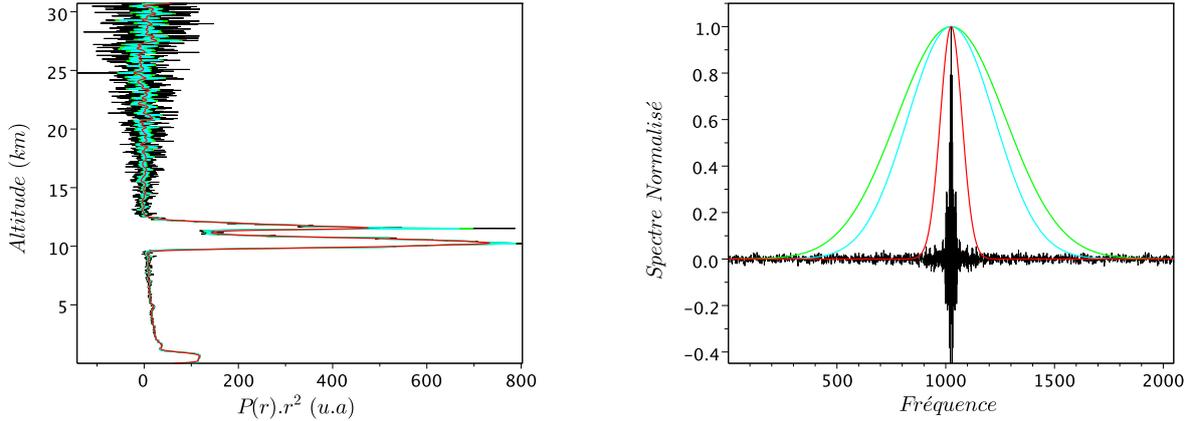


FIGURE 2.9 – Signal lidar original (noir) et filtré pour différentes largeurs de gaussiennes (à gauche) - Lille, 16/07/2013. À droite, le spectre du signal original (noir) et les différentes gaussiennes utilisées dans les filtrages.

truments peut entraîner la présence de nuages dans le champ d'un seul instrument. La détection nuageuse est donc également requise pour le lidar.

Plusieurs méthodes ont été mises en place au cours de notre travail.

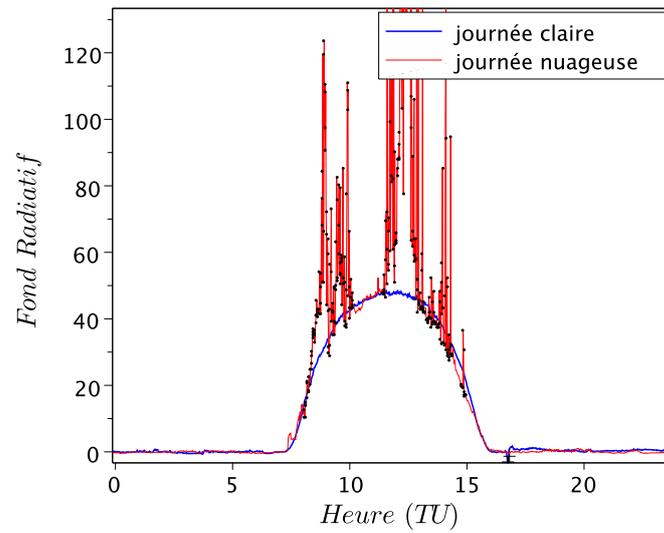
La première est basée sur la variabilité temporelle du bruit de fond radiatif (Clothiaux et al. (1998)). Lors d'une journée sans nuage, le bruit radiatif mesuré par le lidar varie lentement et suit une forme de cloche dont le maximum est situé au midi solaire. La présence de nuages dans le signal perturbe le bruit de fond radiatif (Figure 2.10a). Afin de détecter les variations temporelles rapides de ce dernier, on effectue un fit linéaire (méthode des moindres carrés) du bruit de fond radiatif en fonction du temps. Les valeurs de variabilité supérieures à un seuil, pré-établi par analyse statistique de plusieurs journées de mesures, correspondent à des profils contaminés par la présence de nuages.

L'inconvénient de cette méthode, simple et rapide en temps de calcul, est qu'elle n'est valide que lors de la journée (période de fonctionnement du photomètre solaire) puisque le fond radiatif est constant et nul la nuit. Cette méthode ne permet pas non plus d'accéder aux informations sur la distribution verticale des nuages qui peut s'avérer utile pour exploiter, par exemple, des données aérosols au dessous de nuages de haute altitude (cirrus).

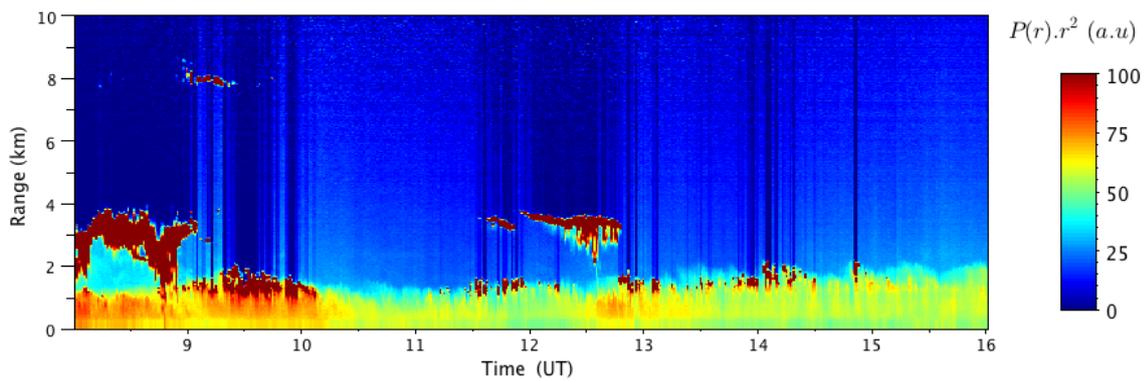
Afin de palier les lacunes de cette première détection nuageuse, nous avons donc mis en place une détection nuageuse basée sur la variabilité verticale de chaque profil, inspiré de Pal et al. (1992).

On calcule premièrement la dérivée du signal lidar corrigé de l'altitude au carré  $S(r) = P(r).r^2$  sur une moyenne glissante de 10 portes :

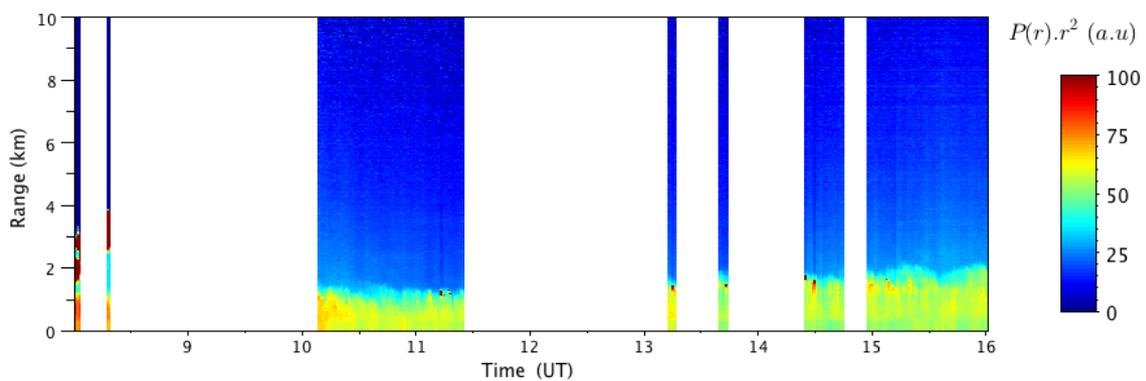
$$S'(r) = d(S(r)) / dr \quad (2.10)$$



(a) Le fond radiatif mesuré par le lidar est perturbé par la présence de nuages. Les points noirs représentent les valeurs supérieures au seuil.



(b) Quick Look lidar - Lille, 07/12/2011.



(c) Quick Look lidar avec détection nuageuse (rectangles blancs) - Lille, 07/12/2011.

FIGURE 2.10 – Détection des nuages à partir de l'étude du fond radiatif.

Les valeurs négatives et positives de cette dérivée correspondent respectivement aux minimums et maximums locaux du profil. De part le bruit instrumental, un nombre important de bases et maximums sont détectés dans le profil (Figure 2.11a).

On peut réduire ce nombre et ne conserver que les couches du profil les plus importantes (rétrodiffusion des aérosols et nuages) en vérifiant l'importance de la différence de signal  $S(r)$  entre un couple de minimum/maximum (base/peak) par rapport au bruit instrumental. Les couches qui seront conservées sont celles pour lesquelles la condition suivante est vérifiée :

$$S(r_{peak_i}) - S(r_{base_i}) \geq Thr_1 \cdot N(r_{base_i}) \quad (2.11)$$

où  $N(r)$  est une fonction représentant la variation du bruit instrumental avec l'altitude. On ne peut en effet utiliser de seuil constant le long du profil car le bruit augmente avec l'altitude (de moins en moins de photons sont propagés et peuvent potentiellement être rétrodiffusés, avec l'altitude). Des valeurs de dérivées importantes au niveau des hautes altitudes pourraient être interprétées, alors, à tort comme des couches physiques. Le calcul de  $N(r)$  se fait par l'intermédiaire d'un fit polynomial du second degré de l'écart-type du signal au niveau de chaque base (et sur les 8 portes inférieures). Dans notre étude, le seuil de  $Thr_1 = 10$  a été utilisé. Cette valeur permet d'éliminer la plupart des minimums et maximums associés au bruit, sans pour autant risquer de supprimer des couches d'aérosols ou de nuages. Il est à noter qu'une valeur unique du seuil a été considérée (indépendamment de la période et du site d'observation). Étant basé sur le bruit du signal, ce critère de sélection s'adapte en effet à chaque configuration instrumentale.

Le sommet des couches (top) est détecté pour chaque couple base/peak et doit remplir la condition d'atténuation atmosphérique :

$$S(r_{top_i}) < S(r_{base_i}) \quad (2.12)$$

L'altitude du sommet de la couche est évidemment sous-estimé lorsque le faisceau lidar ne traverse pas la couche nuageuse.

Pour les situations multi-couches, on considère deux couches successives, comme faisant partie de la même couche lorsque la condition suivante n'est pas vérifiée :

$$S(r_{base_{i+1}}) \leq S(r_{base_i}) \quad (2.13)$$

Finalement, afin de ne conserver que les couches nuageuses, le couple base/peak doit satisfaire la relation :

$$\frac{S(r_{peak_i})}{S(r_{top_i})} \geq Thr_2 \quad (2.14)$$

Après une étude statistique basée sur les résultats issus d'observations correspondant à des conditions atmosphériques très variées (nuages hauts, bas, couches d'aérosols élevées, ...) sur les deux sites instrumentés, le seuil de  $Thr_2 = 4$  a été utilisé pour les traitements de

l'ensemble des observations. Il semble en effet permettre le meilleur rapport de détection des couches nuageuses vis-à-vis des couches d'aérosols élevées, fréquemment observées pour le site africain.

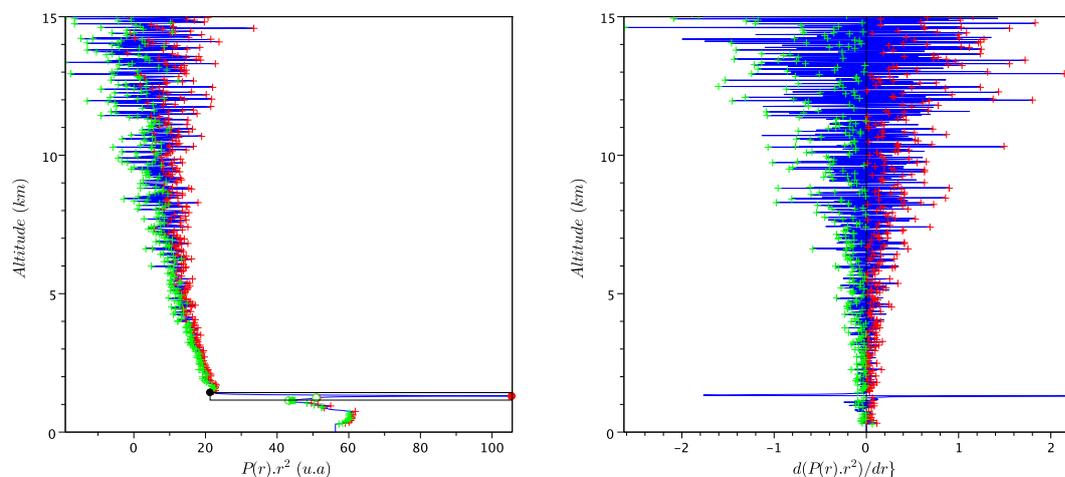
### 2.3.4.3 Hauteur des couches

La couche limite planétaire (ou couche de mélanges) représente la couche turbulente de la troposphère qui est directement influencée par la surface terrestre et au dessus de laquelle se situe la troposphère libre. La notion de hauteur de couche limite permet de décrire de manière simple la répartition verticale des aérosols. Celle-ci est utilisée couramment dans le domaine de la modélisation et de la qualité de l'air puisqu'elle est directement impliquée dans la concentration des particules au niveau du sol. Elle conditionne en effet la dispersion des particules qui peut, dans le cas où celle-ci s'avère insuffisante, conduire à une stagnation des aérosols et à une mauvaise qualité de l'air. Son sommet (BL : Boundary Layer) est souvent matérialisé par de forts gradients de température, d'humidité, d'aérosols ou de polluants gazeux (Delmas et al. (2005)). Ces différentes caractéristiques permettent sa détermination par diverses techniques (radiosondages, sodars, profileurs de vents, ...) résumées par Seibert et al. (2000). Les lidars permettent également la détection de la couche limite en se basant sur les traceurs que sont les aérosols, et leur fort gradient de concentration au sommet de la couche limite.

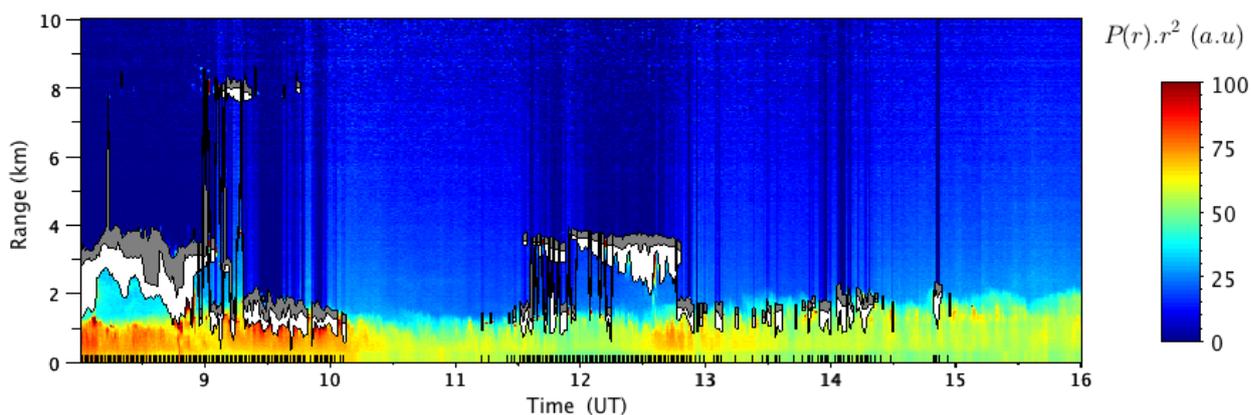
L'épaisseur de la couche limite est conditionnée principalement par les mouvements de turbulence (mécanique et thermique) qui s'y produisent. Elle présente donc une évolution diurne, avec un maximum observé autour du midi solaire, alors que le Soleil réchauffe au maximum le sol qui va alors réchauffer à son tour l'air environnant et déclenche la convection. La hauteur de couche limite dépend des conditions spatiales et atmosphériques et peut varier de quelques dizaines de mètres à quelques kilomètres.

À Mbour, la répartition verticale des aérosols est complexe. La seule hauteur de couche limite est insuffisante pour décrire la distribution des particules. Pendant la saison humide (de mars à novembre), les poussières désertiques sont transportées depuis le Sahara dans la couche dite saharienne, à une altitude comprise entre 2 et 5 km (Prospero et Carlson (1981), Pelon et al. (2008) et Tsamalis et al. (2013)) . Nous avons donc développé, dans le cadre de cette étude, un algorithme de détermination de cette hauteur de couche (TL : Top Layer) en se basant sur la définition de Léon et al. (2009).

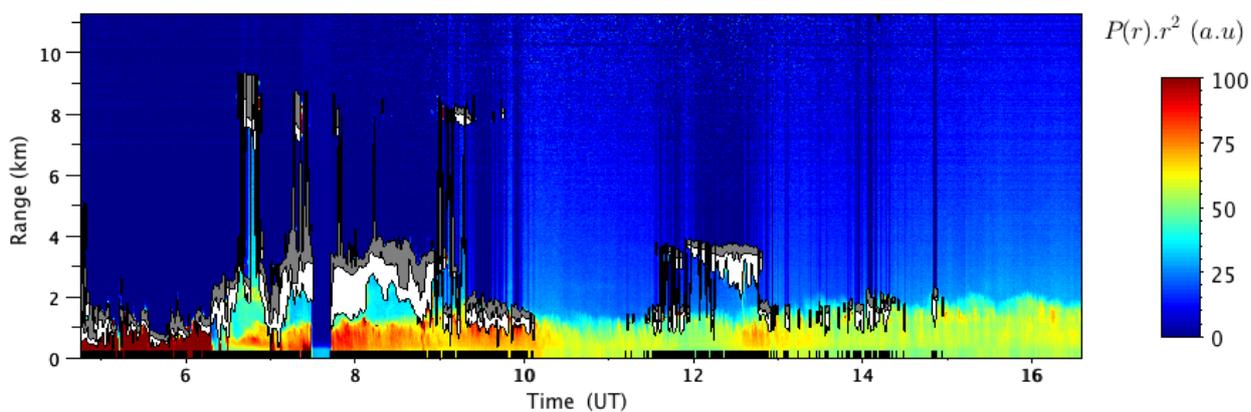
Ils existent plusieurs techniques de détermination de la hauteur de couches, à partir du lidar. Celles-ci sont, soit basées sur la variabilité verticale des signaux (fort gradient vertical de concentration) avec une détection par méthode de gradient (Flamant et al. (1997), Menut et al. (1999)) ou par ondelettes (Brooks (2003), Baars et al. (2008)), soit sur la forte variabilité temporelle due aux échanges avec la troposphère libre (Piironen et



(a) Le signal lidar (à gauche) et sa dérivée verticale (à droite). Les croix vertes et rouges représentent respectivement les bases et maximums des couches. Après les différents tests de sélection, les bases, maximums et sommets des couches nuageuses restantes sont représentées par les cercles pleins (et le cadre noir).



(b) Quick Look lidar avec détection nuageuse - Lille, 07/12/2011. Les nuages sont représentés en blanc (de la base au maximum) et gris (du maximum au sommet).



(c) Cette détection nuageuse n'est pas contrainte par la durée du jour et peut s'appliquer de nuit.

FIGURE 2.11 – Détection nuageuse basée sur la variabilité verticale des profils.

Eloranta (2012)).

Nous avons utilisé au cours de ce travail une détection de couches basée sur la convolution  $W_f(a, b)$  du signal lidar corrigé du carré de l'altitude  $S(z)$  avec une ondelette de Haar  $h(z)$

$$W_f(a, b) = \frac{1}{a} \int_{z_{min}}^{z_{max}} S(z) h\left(\frac{z-b}{a}\right) dz \quad (2.15)$$

où  $z_{min}$  et  $z_{max}$  représentent les hauteurs minimales et maximales de recherche de BL de  $S(z)$  (respectivement 300 et 3000 m dans notre étude) et la fonction de Haar définie comme :

$$h\left(\frac{z-b}{a}\right) = \begin{cases} +1 & \text{pour } b - \frac{a}{2} \leq z \leq b \\ -1 & \text{pour } b \leq z \leq b + \frac{a}{2} \\ 0 & \text{ailleurs} \end{cases} \quad (2.16)$$

où  $a$  et  $b$  représentent respectivement la dilatation et la position de l'ondelette selon l'axe  $z$  (Figure 2.12 (b)). De part la forme de  $S(z)$  (forte variation à proximité de la couche limite et plus grande stabilité ailleurs : Figure 2.12 (a)), la corrélation des deux fonctions doit donner un pic de corrélation au niveau de la couche limite et une faible corrélation ailleurs. Afin de mettre en évidence cette corrélation, le choix de la dilatation de l'ondelette, exprimée en fonction de la résolution verticale du lidar  $\Delta z$ , est primordial. La Figure 2.12 (c) met en évidence le fait qu'une ondelette trop fine ( $2\Delta z$ ) donne une convolution trop bruitée. Au contraire, une ondelette trop large ( $48\Delta z$ ) poserait problème dans le cas de couches multiples d'aérosols. Nous avons utilisé pour notre étude une largeur fixe d'ondelette de  $14\Delta z$ , soit 210 m, qui a donné les meilleurs résultats pour les tests effectués sur des journées diverses d'un point de vue de contenu et distribution verticale en aérosols.

La détection de TL est réalisée à l'aide d'un seuil sur la corrélation  $W_f(a, b)$  pour des altitudes comprises entre BL et 5000 m. Le test réalisé est :

$$W_f(a, b) \geq Thr_3 \left( \overline{W_f(a, b)} + \sigma_{W_f(a, b)} \right) \quad (2.17)$$

avec  $\overline{W_f(a, b)}$  et  $\sigma_{W_f(a, b)}$  la moyenne et l'écart-type de la corrélation entre 6500 et 7000 m. Pratiquement, nous débutons ce test avec un seuil de  $Thr_3 = 3$ . Si aucune valeur ne remplit la condition requise, nous diminuons le seuil par pas de  $\Delta Thr_3 = 0,05$  jusqu'à la valeur limite de 2,5 en-deçà de laquelle aucune valeur de TL ne sera délivrée.

## 2.4 Synergies instrumentales

Le but de la synergie instrumentale est de profiter de la complémentarité des instruments. Le photomètre permet d'accéder aux propriétés optiques et microphysiques des

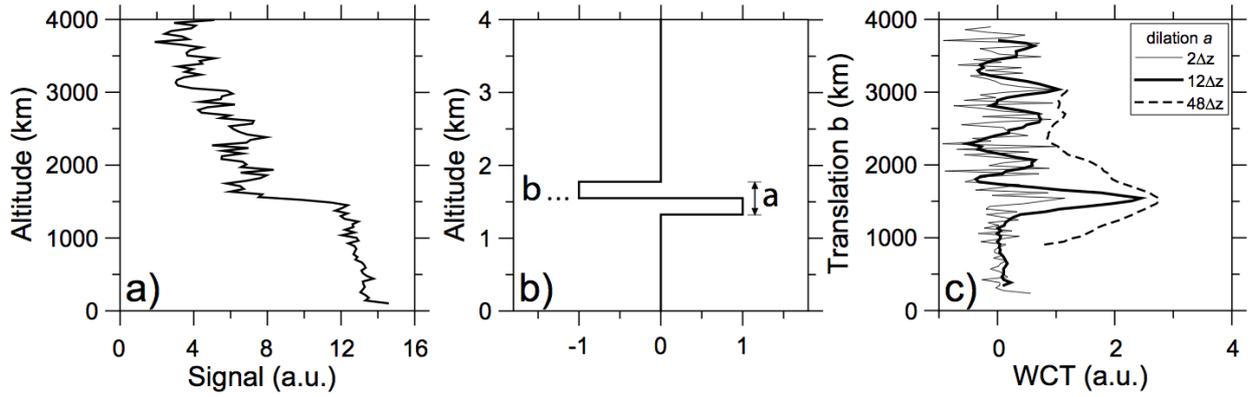


FIGURE 2.12 – La corrélation entre le signal lidar (a) et une ondelette de Haar (b) donne un pic de corrélation au niveau de la hauteur de la couche limite (c). La corrélation dépend de la dilatation de l’ondelette. (Source : Baars et al. (2008)).

aérosols de manière précise, mais intégrées sur la colonne atmosphérique. Le lidar fournit l’information sur la distribution verticale des aérosols, cependant moins précisément au niveau du sol (Overlap, After-Pulse), niveau auquel sont effectuées, en général, les mesures in-situ.

## 2.4.1 Synergie des mesures lidar/photomètre

La première synergie utilisée au cours de cette étude est celle des mesures photométriques et lidar.

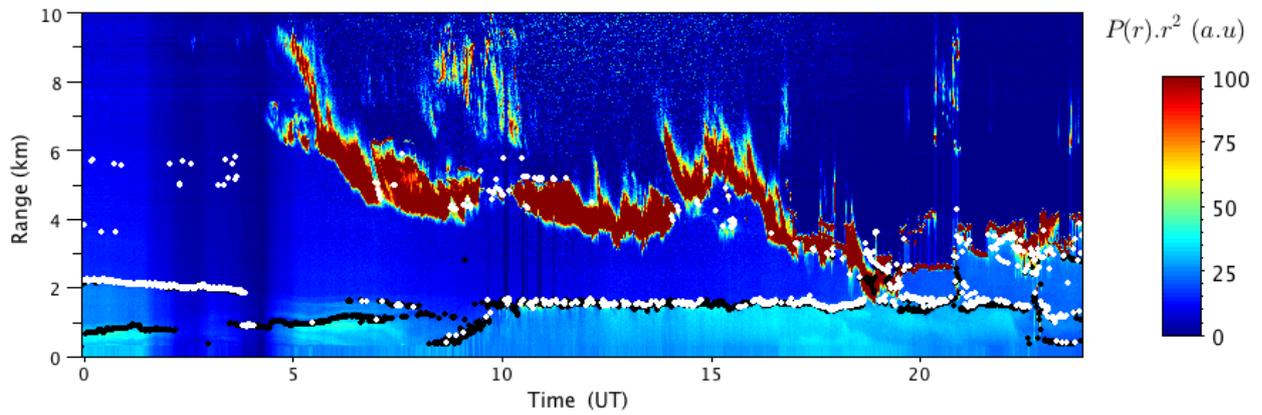
### 2.4.1.1 Méthode de Klett

L’équation lidar décrit un problème physique mal conditionné. Elle relie en effet une équation à deux inconnues, qui sont les termes de rétrodiffusion et d’extinction aérosols  $\beta_{aer}(z)$  et  $\sigma_{aer}(z)$  (Équation 2.3). L’introduction du rapport lidar  $S_{aer}$  (Extinction to Backscatter Ratio en anglais) exprimé en stéradians (sr) et défini comme

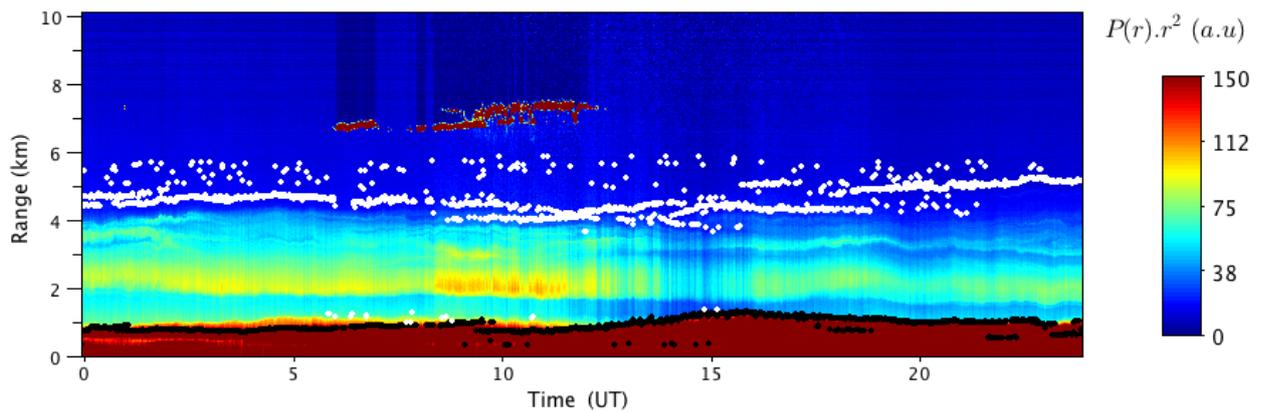
$$S_{aer,\lambda} = \frac{\sigma_{aer,\lambda}}{\beta_{aer,\lambda}} \quad (2.18)$$

permet de ramener le problème à une inconnue, dans l’hypothèse où ce rapport est connu. Si celui-ci est constant dans le cas des molécules (Équation 2.4), c’est loin d’être le cas pour les aérosols. En effet,  $S_{aer}$  dépend de la taille, de la forme et de la nature des particules (Tableau 2.2).

James D. Klett a proposé en 1981 puis en 1985 une méthode (puis une amélioration) de résolution de l’équation lidar (Klett (1981) et Klett (1985)). Celle-ci s’appuie sur la



(a) Lille, 17/05/2012



(b) Mbour, 15/03/2011

FIGURE 2.13 – Couche limite (points noirs) et sommet de la couche (points blancs) pour les deux sites d'observation. Si ces deux paramètres sont souvent confondus, la journée, pour Lille, lors de la nuit ceux-ci sont séparés. Le sommet de la couche suit dans ce cas le sommet de la couche résiduelle. À Mbour, la couche limite ( $\sim 1$  km) est bien inférieure au sommet de la couche d'aérosols ( $\sim 5$  km).

Types d'aérosols	$S_{a_{532}}$ (sr)
urbains	70
désertiques	40
désertiques pollués	65
maritimes	20
biomasse	70

TABLE 2.2 – Rapports lidar  $S_a$  à 532 nm des principaux types d'aérosols utilisés par CALIOP (Winker et al. (2009)).

résolution stable d'une équation différentielle de Bernoulli du 1<sup>er</sup> ordre. L'équation lidar peut en effet s'écrire sous une telle forme en considérant  $S_{ln}(r) = \ln(S(r)) = \ln(P(r).r^2)$  :

$$\frac{dS_{ln}(r)}{dr} = \frac{1}{\beta(r)} \frac{d\beta(r)}{dr} - 2 \left( \frac{\beta_{mol}(r)}{S_{mol}} + \frac{\beta_{aer}(r)}{S_{aer}} \right) \quad (2.19)$$

La solution de cette équation est donnée par la relation :

$$\beta(r) = \frac{S(r) \exp \left\{ -2 \int_{r_0}^r [S_{aer}(r') - S_{mol}] \beta_{mol}(r') dr' \right\}}{\frac{S(r_0)}{\beta_{aer}(r_0) + \beta_{mol}(r_0)} - 2 \int_{r_0}^r S_{aer}(r') S(r') \exp \left\{ -2 \int_{r_0}^{r'} [S_{aer}(r'') - S_{mol}] \beta_{mol}(r'') dr'' \right\} dr'} \quad (2.20)$$

(notation d'après Weitkamp (2005)).

$r_0$  représente l'altitude de référence, pour laquelle on suppose la quantité d'aérosols nulle ou négligeable. La résolution de cette équation est possible à condition d'imposer le rapport lidar  $S_{aer}$ . Celui-ci sera supposé, en général, constant le long du profil.

C'est ici qu'intervient la synergie avec le photomètre. L'utilisation d'un rapport lidar non cohérent avec la nature des particules introduirait un biais dans la restitution de  $\beta_{aer}(r)$  et donc de l'extinction  $\sigma_{aer}(r)$ . La technique consiste alors à contraindre l'inversion par l'épaisseur optique aérosol mesurée par le photomètre  $\tau_{532}$  avec une précision de  $\pm 0,01$ . On inverse tout d'abord l'équation lidar avec une valeur moyenne de rapport lidar (50 sr). On calcule ensuite l'épaisseur optique lidar par intégration du profil d'extinction :

$$\tau_{lid} = \int_0^{z_0} \sigma_{aer}(z) dz \quad (2.21)$$

Si  $\tau_{lid}$  est inférieure (ou supérieure) à l'épaisseur optique photométrique  $\tau_{532}$ , on augmente (ou diminue) le rapport lidar, jusqu'à ce que les deux grandeurs convergent, dans les bornes limites de  $s_{aer}$  ( $S_{aer} \in [5, 150] sr$ ). L'utilisation de la dichotomie permet une convergence plus rapide des valeurs et un gain conséquent de temps de calcul.

Afin de ne pas biaiser  $\tau_{lid}$  à cause des valeurs manquantes de signal dans les premières portes de réception (After-Pulse), on extrapole préalablement le signal corrigé de l'altitude de manière constante de 270 m jusqu'au niveau du sol.

#### 2.4.1.2 Choix de l'altitude de référence

Le choix de l'altitude de référence  $z_0$  est un critère capital dont dépend la qualité de l'inversion. Une initialisation de l'inversion à trop faible altitude pourrait entraîner l'interprétation d'un signal incomplet. Puisque l'inversion est contrainte par l'épaisseur optique photométrique, cela entraînerait alors une surestimation du rapport lidar, et donc de l'extinction de la portion de signal inversée. À l'inverse, puisque le bruit augmente avec l'altitude, un choix d'altitude de référence à trop haute altitude pourrait entraîner une initialisation de l'inversion sur un pic important de bruit (négatif ou positif), et décaler en conséquence tout le profil d'extinction.

La Figure 2.14 montre bien la sensibilité de l'inversion à l'altitude de référence. Nous avons réalisé l'inversion des données avec  $S_{aer}$  imposé pour  $z_0$  variant de 1 à 10 km par pas de 15 m. Pour chaque profil inversé, nous avons calculé l'épaisseur optique lidar selon la formule 2.21. De  $z_0$  variant de 1 à 6 km,  $\tau_{lid}$  croît puisqu'on interprète un profil de plus en plus complet. Au-delà de l'altitude à partir de laquelle la concentration en particules devient négligeable, on s'attend à priori à avoir une convergence de  $\tau_{lid}$ . Cette convergence est en réalité fortement affectée par un bruit qui traduit les initialisations sur des pics de bruit du signal lidar. Deux inversions initialisées à 15 m de différence peuvent ainsi impliquer une différence de  $\tau_{lid}$  de plus de 0,2 et donc d'importantes erreurs sur  $\sigma_{aer}(z)$  et  $\beta_{aer}(z)$ .

Nous avons développé au cours de notre travail un algorithme de sélection de l'altitude de référence  $z_0$  optimale (Figure 2.15). Une moyenne glissante du signal corrigé de l'altitude est effectuée sur 10 portes entre  $z_1$  et  $z_2$  qui sont les bornes minimale et maximale de  $z_0$  (respectivement 5 et 8 km dans notre travail). On recherche alors le minimum de la moyenne glissante dans l'intervalle considéré. Autour de ce minimum ( $\pm 5$  portes), on recherche l'altitude pour laquelle le signal lidar est le plus proche de la valeur de la moyenne glissante. Ce simple algorithme permet premièrement de débiter l'inversion le plus haut possible (par recherche du minimum) afin de ne pas inverser qu'une seule portion du signal utile. Deuxièmement, il permet d'éviter d'initialiser l'inversion sur un pic de bruit qui biaiserait les profils restitués.

#### 2.4.1.3 Incertitudes

Les différentes sources d'incertitude intervenant dans celle de l'inversion des données lidar sont : la quantité initiale d'aérosols à l'altitude  $z_0$ , les incertitudes sur la fonction de recouvrement, l'extrapolation des premières portes de détection et le bruit instrumental. Si la première source d'incertitude citée ne semble pas avoir un effet majeur sur l'inversion

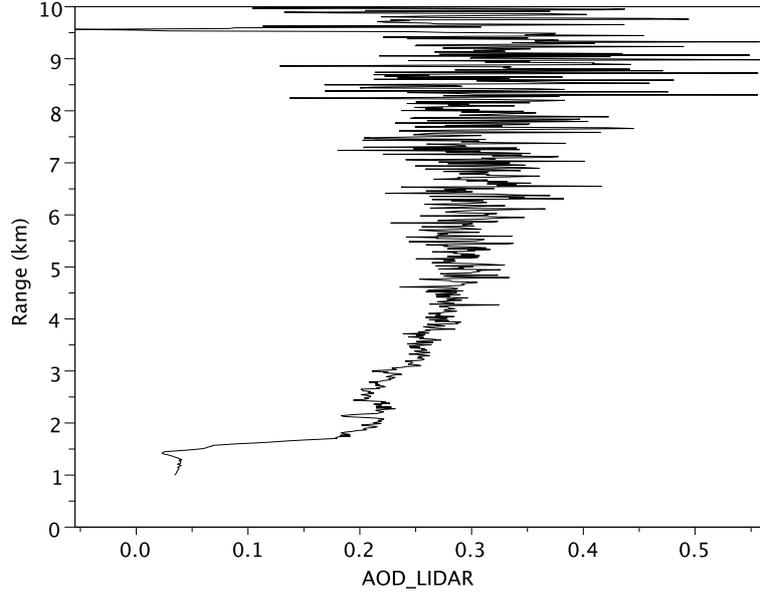


FIGURE 2.14 – Épaisseur optique lidar en fonction de l'altitude de référence.

lorsque l'altitude de référence est correctement choisie, il n'en n'est pas de même de la fonction de recouvrement, dont l'effet reste néanmoins difficile à quantifier.

Afin d'essayer d'estimer son impact, nous avons tout d'abord jugé de la variabilité de la fonction de recouvrement lors de tirs horizontaux effectués pendant plusieurs heures. Des différentes fonctions de recouvrement obtenues, nous avons défini une fonction de recouvrement et son incertitude (d'après un intervalle de confiance de 90 %), soit un jeu de 3 fonctions de recouvrement. La plus grande variabilité est observée entre 1 et 3km.

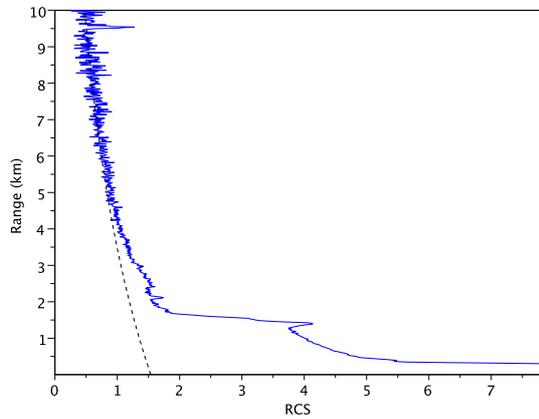
L'erreur introduite par le bruit a été estimée à partir de simulations selon le schéma suivant

$$[\sigma_{ext}(z), s_{aer}(z)]_{simulé} \longrightarrow [P(z) + N(z)] \longrightarrow [\sigma_{ext}(z), s_{aer}(z)]_{inversé}$$

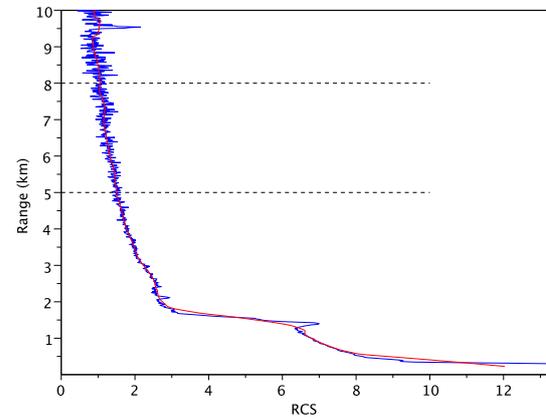
où  $N(z)$  est un bruit aléatoire de moyenne nulle et dont l'amplitude est similaire à celui des données instrumentales. Après une centaine de répétitions du schéma, l'erreur sur le rapport lidar introduite par le bruit a été estimée à  $\pm 3$  sr.

Les inversions lidar sont finalement réalisées avec les 3 fonctions de recouvrement et avec l'erreur additionnelle de  $\pm 3$  sr, ce qui nous permet de mettre en évidence les impacts respectifs de l'incertitude de la fonction de recouvrement et du bruit instrumental sur les profils d'extinction  $\sigma_{ext}(z)$  et le rapport lidar  $s_{aer}(z)$  (Figure 2.16a et 2.16b). L'erreur totale sur l'extinction et le rapport lidar est de l'ordre de 15 % (au maximum) et 20 %.

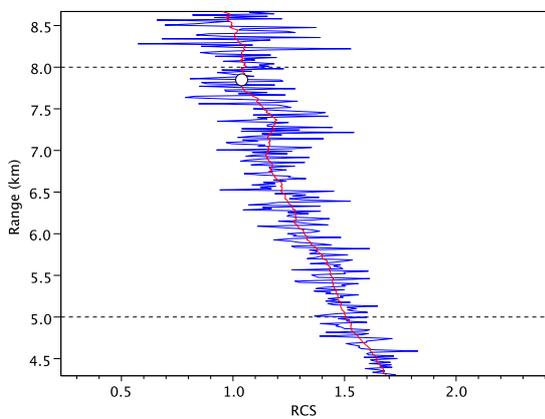
L'erreur commise de part l'extrapolation des premières portes de détection dépend de la différence entre le profil extrapolé et le profil réel. Ce dernier n'étant pas accessible,



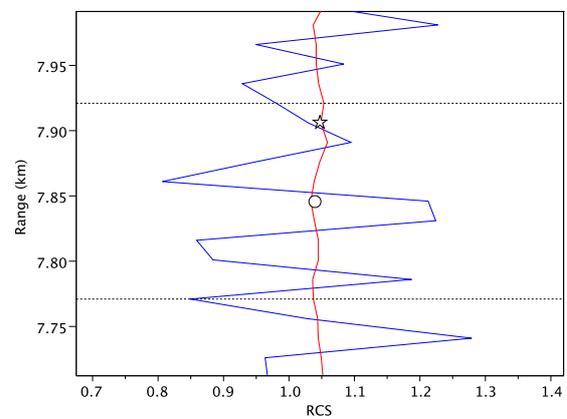
(a) L'altitude de référence correspond à une zone où la concentration en aérosols est nulle ou négligeable. En bleu, le signal lidar corrigé de l'altitude (RCS) et en pointillés noirs un profil moléculaire simulé.



(b) Nous définissons des bornes de recherche de  $z_0$ , ici entre 5 et 8 km (pointillés) et effectuons une moyenne glissante (rouge) du RCS (bleu) sur 10 portes.



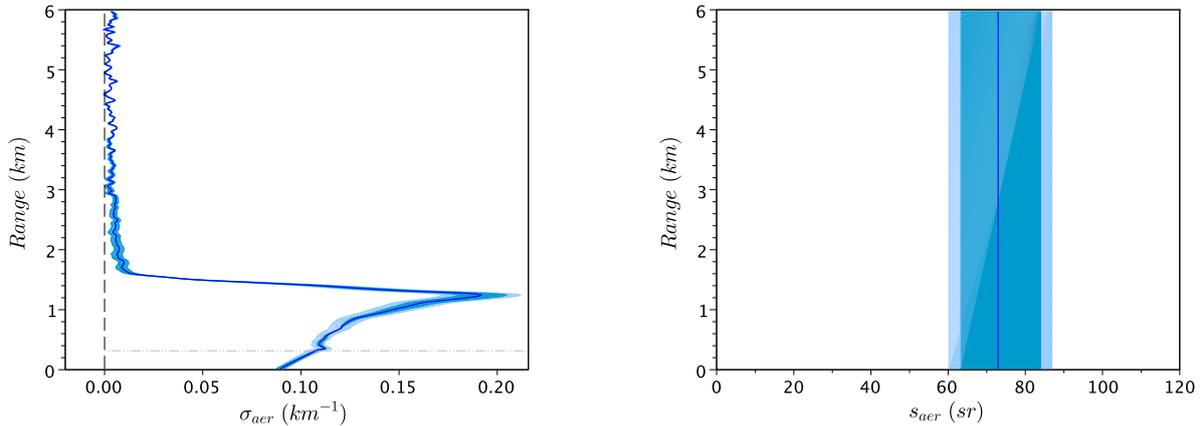
(c) Dans l'intervalle considéré, nous recherchons le minimum de la moyenne glissante (cercle blanc).



(d) Nous recherchons, autour du minimum, l'altitude pour laquelle le signal est le plus proche de la valeur moyenne.

FIGURE 2.15 – Détection de l'altitude optimale de référence  $z_0$ .

l'estimation quantitative de l'incertitude engendré par ce point nous est impossible. De manière plus qualitative, on peut raisonnablement supposer que le profil de concentration en aérosols est peu variable dans les premiers 270 mètres de l'atmosphère. Dans cette configuration, l'extrapolation du signal corrigé de l'altitude ne doit pas grandement influencer les résultats de l'inversion.



(a) Profil d'extinction. En bleu foncé, les erreurs dues aux incertitudes sur la fonction de recouvrement. En bleu clair, l'erreur due au bruit aléatoire instrumental. Le maximum d'incertitude, observé pour le pic d'extinction à 1200 m est de 15%.

(b) Profil de rapport lidar. La fonction de recouvrement et le bruit instrumental impliquent respectivement une incertitude de  $\pm 12$  et  $\pm 3$  sr.

FIGURE 2.16 – Incertitudes sur les inversions, Lille 06/04/2010.

## 2.4.2 Synergie des inversions LiDAR/Photomètre

L'extinction des aérosols est proportionnelle à leur concentration (1.1.2.2). L'utilisation conjointe des inversions lidar et inversions photométriques permet d'accéder à une estimation de cette grandeur, qui pourra être comparée aux mesures in situ ainsi qu'aux profils de concentration issus des modèles.

### 2.4.2.1 Estimation de la concentration

L'indice de réfraction complexe issu des inversions AERONET permet de calculer le facteur d'extinction  $Q_{ext}(m, r, \lambda)$  défini en (1.1.2.2) grâce à la théorie de Mie pour différents rayons de particules à la longueur d'onde du lidar  $\lambda = 532$  nm. La distribution (bimodale) en volume est également restituée depuis les inversions du photomètre

$$\frac{dV}{d \ln r} = \frac{4\pi}{3} r^4 n(r) \quad (2.22)$$

avec la distribution en nombre  $n(r)$  que l'on décompose suivant

$$n(r) = n_0 n_1(r) \quad (2.23)$$

où  $n_0$  représente l'amplitude du mode fin de la distribution et  $n_1(r)$  la distribution normalisée caractérisée par les rayons modaux ( $r_{mf}, r_{mc}$ ), les largeurs ( $\sigma_f, \sigma_c$ ) des modes fins et grossiers et le rapport d'amplitude des deux modes.

On introduit la distribution en masse  $c(r)$  ( $\text{g.m}^{-3}.\text{m}^{-1}$ ) définie comme

$$c(r) = \frac{4\pi}{3} r^3 \rho(r) n(r) \quad (2.24)$$

où  $\rho(r)$  représente la densité des particules ( $\text{kg.m}^{-3}$ ).

La combinaison des équations (1.14, 2.23 et 2.24) conduit à la concentration massique en aérosols  $AMC = \int_{r_{min}}^{r_{max}} c(r) dr$

$$AMC = \frac{4}{3} \sigma_{aer} \int_{r_{min}}^{r_{max}} \frac{\rho(r) r^3 n_1(r)}{\int_{r_{min}}^{r_{max}} Q_{ext}(m, r, \lambda) n_1(r) r^2 dr} dr \quad (2.25)$$

(d'après Mortier et al. (2013)).

### 2.4.2.2 Incertitudes

Une discussion concernant les incertitudes de la méthode d'estimation de la concentration a été présentée par Mortier et al. (2013). Les résultats figurant dans le Tableau 2.3 sont issus des observations du panache de cendres du volcan islandais à Lille. Bien que les incertitudes des différents paramètres soient spécifiques à cet évènement, nous pouvons néanmoins juger de la sensibilité de chacun d'eux. Nous observons d'abord que l'AMC est directement proportionnel à  $\sigma_{aer}$  ainsi qu'à la densité  $\rho$ . L'estimation est également sensible à la distribution en taille (rayons modaux et largeur des modes), puisque une erreur de rayon modal du mode grossier de 15% entraîne par exemple une erreur sur l'AMC de l'ordre de 20%. Les erreurs dues à l'indice de réfraction sont de moindre importance : une erreur absolue de 0,05 implique une erreur de moins de 2% sur l'AMC. En effet, nous avons vu précédemment qu'une modification de la partie réelle (imaginaire) entraînait une translation (atténuation) des ondulations du facteur d'extinction (voir Figure 1.12). Or le calcul de l'AMC implique une intégration sur une gamme de rayon de la distribution. Cette intégration n'est que peu sensible au décalage ou à l'amplitude des oscillations.

La Figure 2.17 représente la sensibilité de l'estimation de la concentration (via le coefficient,  $\eta$  ( $\text{g.m}^{-2}$ ), reliant l'extinction à la concentration) au rapport d'amplitude des

Source	Incertitude	Impact sur l'AMC
$r_{mc}$	15 %	20 %
$\sigma_c$	10 %	8 %
$m$	0,05	<2 %
$\rho$	20 %	20 %
Forme	Sphéricité	<10 %
$\sigma_{aer}$	15 %	15 %
Total	-	35 %

TABLE 2.3 – Sources d'incertitudes et impact sur l'estimation de l'AMC. L'erreur totale est calculée dans le cas d'erreurs indépendantes.

modes grossier et fin  $\frac{n_{0,c}}{n_{0,f}}$ . La variation est très importante lorsque l'on passe d'une distribution constituée d'un seul mode fin à une distribution bimodale. Un phénomène de saturation apparaît pour les grands rapports d'amplitude puisqu'au delà, l'augmentation de l'amplitude du mode grossier n'affecte que peu la distribution en taille, alors toujours dominée par ce dernier.

### 2.4.3 Automatisation

La base de données s'accroît de jour en jour pour chacun des sites d'observation et le nombre de sites est susceptible de s'accroître. Avec aujourd'hui respectivement plus de 6 et 5 années de données pour les sites africain et lillois, l'automatisation des traitements de données s'avère indispensable.

Plusieurs niveaux d'automatisation existent pour les différents traitements.

Les données brutes sont envoyées automatiquement tous les quarts d'heure (par mail ou ftp). Les différentes corrections de base (fond radiatif, altitude) et instrumentales (non linéarité des détecteurs, fonction de recouvrement) leur sont appliquées. Les profils corrigés sont alors visualisables en ligne en quasi temps-réel sous forme de Quick-Look dynamique (zoom, changement d'échelle de couleur). Les traitements de détection de couches et de nuages sont lancés simultanément et sont donc également visualisables (fenêtre activable/désactivable superposée au Quick-Look initial).

Toutes les heures, un programme vient scanner la base de données photométriques. Dès qu'une nouvelle épaisseur optique est détectée (de jour, comme de nuit), l'inversion lidar est réalisée. L'utilisateur a alors accès en quasi temps-réel aux profils d'extinction, à leur rapport lidar associé ainsi qu'à un flag traduisant la présence de nuages. L'estimation de la concentration a été automatisée, mais n'est pas disponible actuellement en quasi-temps réel.

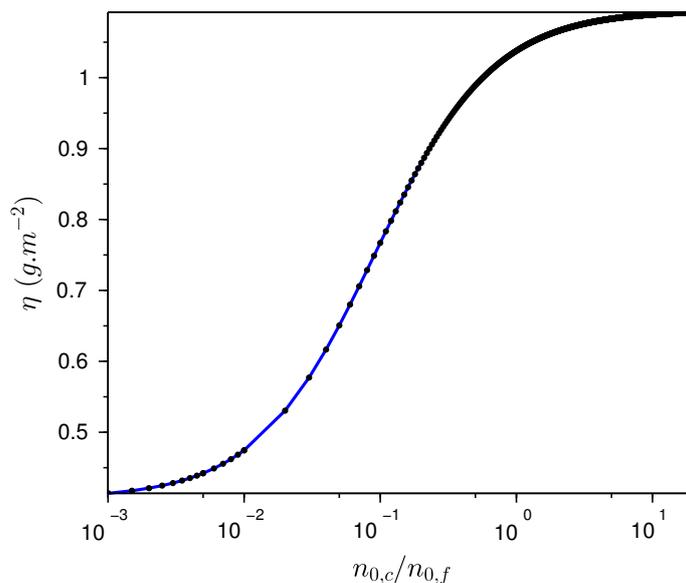


FIGURE 2.17 – Sensibilité du coefficient,  $\eta$ , reliant l’extinction à la concentration massique, au rapport d’amplitude du mode grossier,  $n_{0,c}$ , et du mode fin,  $n_{0,f}$ . Les autres paramètres sont fixés :  $r_{m,f} = 0,15 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_f = 0,05 \mu\text{m}$ ,  $r_{m,c} = 1,5 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_c = 0,15 \mu\text{m}$ ,  $m = 1,5$ ,  $\rho = 2,6 \text{ kg.m}^{-3}$ .

L’inversion automatisée est l’inversion de Klett contrainte par l’AOD AERONET et qui utilise un rapport lidar constant verticalement. Dans le cadre d’évènements particuliers (couche d’aérosols séparée de la couche limite), ce traitement peut s’avérer peu adapté. Nous avons développé un outil en ligne permettant à l’utilisateur de « rejouer » les inversions manuellement en ajustant certains paramètres, et en ayant la possibilité d’utiliser un profil vertical de rapport lidar (2 rapports lidars différents, dont un choisi a priori).

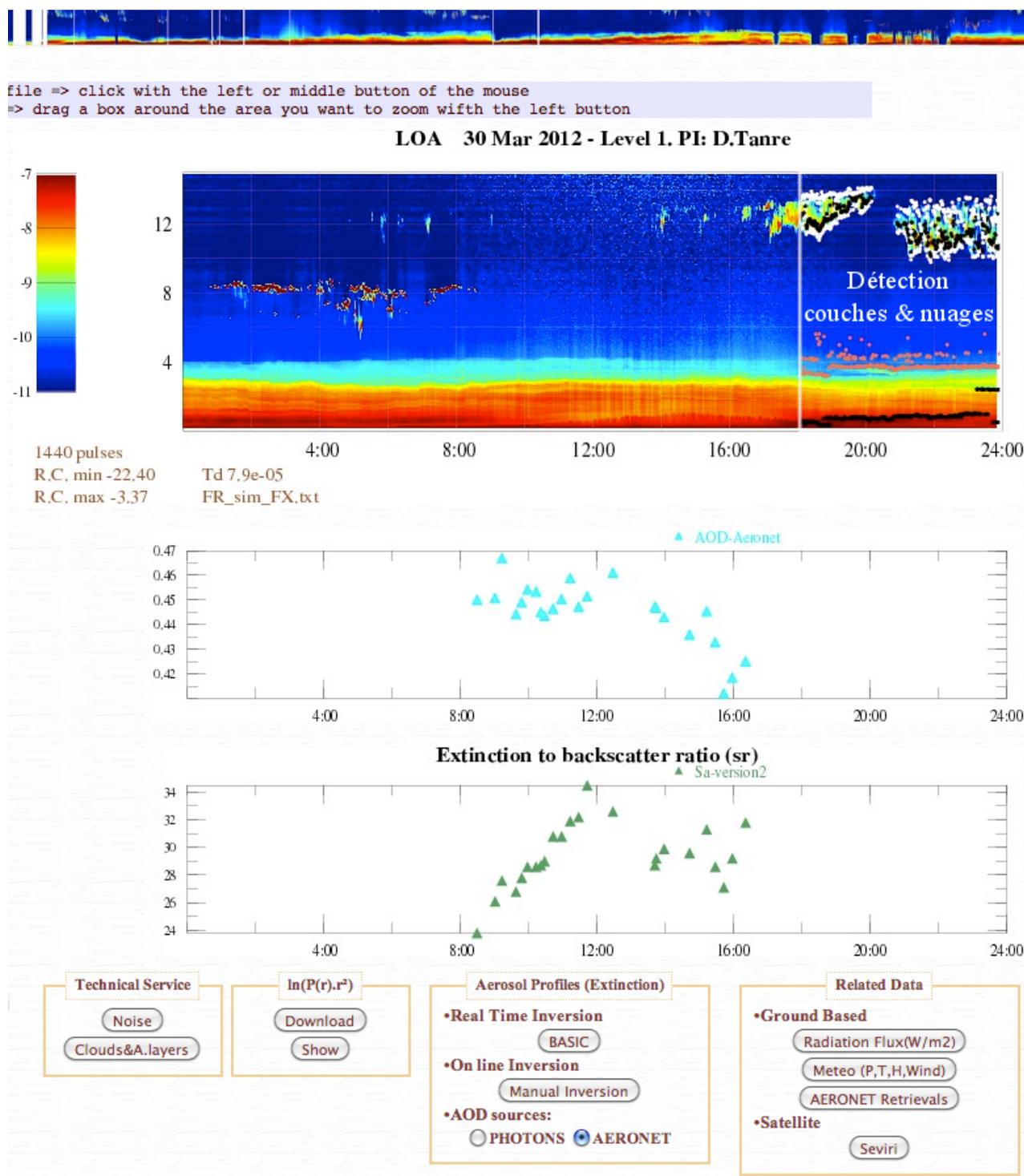


FIGURE 2.18 – Interface web lidar du LOA - <http://www-loa.univ-lille1.fr/Instruments/lidar/>



Le *chapitre 3* est consacré à la présentation et l'analyse de l'observation des aérosols sur le site de Lille.

Après avoir établi le contexte des observations en présentant une climatologie des masses d'air et de la couverture nuageuse, nous présentons les propriétés intégrées verticales issues de l'observation du photomètre et du lidar pour différentes échelles temporelles, afin de mettre en évidence les variabilités et de dégager d'éventuelles tendances. Le lidar permet d'accéder, par combinaison au photomètre, aux profils verticaux d'extinction des aérosols et aux hauteurs de couches caractéristiques. Après avoir présenté ces résultats, nous nous intéresserons à l'estimation de la concentration en particules, au niveau du sol, à partir de la synergie des inversions du lidar et du photomètre présentée dans la section 2.4.2 page 70. Les résultats de cette estimation seront comparés aux mesures in-situ ( $PM_{10}$ ) effectuées à proximité du site. Une observation continue permet également de détecter l'intrusion d'aérosols de nature différente de celle des aérosols locaux. Après avoir estimé la fréquence de tels évènements, nous nous intéresserons à trois d'entre eux : une intrusion de poussières désertiques, d'aérosols issus de feux de biomasse et particulièrement à l'épisode de l'éruption volcanique d'avril/mai 2010. Finalement, les propriétés micro-physiques et optiques des aérosols obtenus par télédétection permettent une meilleure estimation du forçage radiatif. Ces résultats seront présentés dans la dernière partie du chapitre.

# Chapitre 3

## Variabilités, tendances et événements extrêmes - Lille

Les aérosols observés sur un site peuvent provenir de sources locales (émissions urbaines et industrielles dans le cas de Lille) ou encore du transport des particules émises à distance. Afin de constater quelle contribution est apportée par les aérosols locaux ou transportés, nous débutons notre travail par une étude de l’histoire des masses d’air observables à Lille. Nous utilisons pour cela le modèle HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory). Ce dernier permet de simuler l’évolution spatio-temporelle d’une masse d’air en s’appuyant sur les données GDAS (Global Data Assimilation System) du NCEP (National Weather Service’s National Centers for Environmental Prediction) qui combinent observations météorologiques terrestres et spatiales. Nous utiliserons ce modèle dans le sens anti-chronologique, afin de restituer l’histoire d’une masse d’air observée en un point de l’espace (latitude, longitude, altitude) à un moment donné.

### 3.1 Climatologie des masses d’air

Les rétro-trajectoires sont effectuées pour l’ensemble de notre base de données d’observation (2006-2012) toutes les 6 heures et pour 3 niveaux de pression donnés correspondant à des altitudes avoisinant le niveau du sol, 3000 m et 5000 m. La durée des rétro-trajectoires est fixée à 72h00. Nous présentons sur la Figure 3.1 les moyennes saisonnières de l’année 2008 (aucune différence remarquable n’ayant été observée entre les différentes années).

Le découpage saisonnier d’une année  $A$ , adopté dans notre travail, est le suivant :

- Hiver : [*décembre*  $A - 1$   $\rightarrow$  *février*  $A$ ]
- Printemps : [*mars*  $A$   $\rightarrow$  *mai*  $A$ ]
- Été : [*juin*  $A$   $\rightarrow$  *août*  $A$ ]

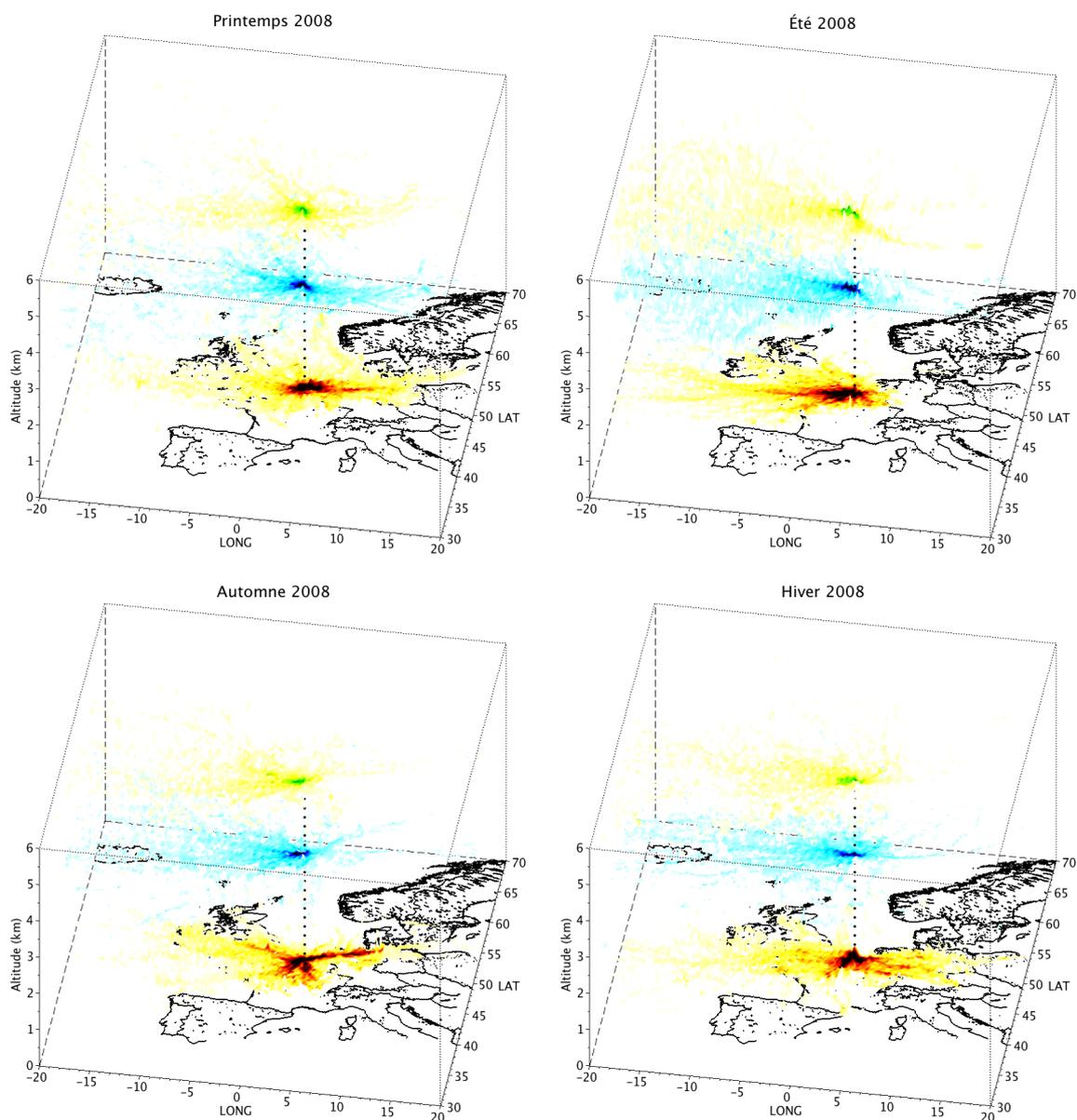


FIGURE 3.1 – Moyennes saisonnières des rétro-trajectoires d’une durée de 72h00 se terminant à Lille au niveau du sol (rouge), à 3000 m (bleu) et 5000 m (vert). L’intensité de la couleur est proportionnelle au nombre de rétro-trajectoires comprises dans le pixel considéré. La ligne en pointillés noirs correspond à la verticale au niveau de l’observatoire.

– Automne : [*septembre A* → *octobre A*]

L'ensemble des rétro-trajectoires indique que les masses d'air âgées de 3 jours proviennent d'une zone d'un rayon d'environ 1000 km autour de Lille. La direction privilégiée suit la ligne Ouest / Est, ce qui est en accord avec la circulation atmosphérique globale. Avec une latitude de 50° 39'N, Lille est en effet sous l'influence des courants tempérés d'Ouest. Cette tendance est particulièrement visible en été, où la quasi-totalité des masses d'air proviennent de l'Ouest. En automne et en hiver, nous constatons également, pour les masses d'air à proximité du sol, une provenance du Sud et surtout de l'Ouest. Hormis cette période, il n'y a globalement pas de grande différence d'origine des masses d'air, selon leur altitude (même à plus fine échelle temporelle).

Cette étude portant sur l'origine des masses d'air nous permet d'affirmer que Lille est sous l'influence de zones urbanisées/industrielles et océanique.

La Figure 3.2 représentant la rose des vents (direction et vitesse du vent en coordonnées polaires) précise les caractéristiques des vents au niveau du sol. Deux portions de cercle ressortent de cette rose des vents. La première, comprise entre 180° (Sud) et 300° associée à des vitesses de vent allant de 1 m.s<sup>-1</sup> à 7 m.s<sup>-1</sup>, et la deuxième, plus restreinte, comprise entre 30° et 90° (Est) et pour des vitesses n'excédant que rarement 5 m.s<sup>-1</sup>. Le découpage saisonnier de la rose des vents (non représenté ici) donne lieu à des tendances similaires, pour l'hiver et l'automne, à celles observées lorsque l'on considère l'ensemble des données. Au printemps, le maximum d'occurrence est rencontré pour des vitesses de vent comprises entre 2 et 6 m.s<sup>-1</sup> de direction Nord-Est (30-80°). Pendant l'été, les vents proviennent essentiellement du Sud-Ouest (200-280°) pour des vitesses de vents semblables à la saison précédente.

Dans ce travail, l'observation des aérosols depuis le photomètre et le lidar est exploitée en l'absence de nuages. La représentativité des données est donc liée à la couverture nuageuse du site. Des saisons plus nuageuses que d'autres pourraient limiter le nombre d'observations exploitables et leur interprétation pourrait alors biaiser la tendance saisonnière. Afin de s'assurer de cette représentativité, nous avons étudié la fraction nuageuse déterminée à partir du module de détection nuageuse présenté en 2.3.4.2 page 57 et appliqué à l'ensemble de la base de données lidar.

## 3.2 Couverture nuageuse

Sur la Figure 3.3, nous présentons les fractions nuageuses journalières. Selon l'état de fonctionnement du lidar, un cycle annuel plus ou moins marqué suivant les années est constaté, avec un maximum se produisant l'été (environ 50 %) et un minimum durant l'hiver (20-30 %). En 2010 et 2012, nous observons également un pic de fraction nua-

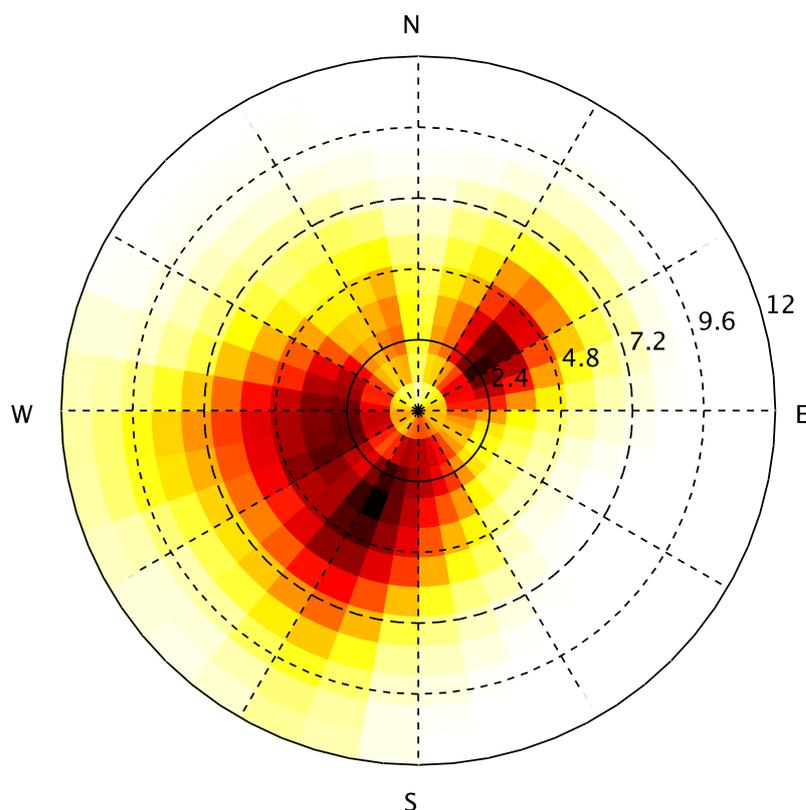


FIGURE 3.2 – Rose des vents (rayon : vitesse ( $\text{m.s}^{-1}$ ), angle : direction ( $^{\circ}$ )) issues de mesures horaires à 10 m du sol à proximité de l’observatoire de Lille pour la période 2006-2012 (données MétéoFrance). L’intensité de la couleur est proportionnelle à la fréquence des occurrences. Les maximum (noir) et minimum (blanc) correspondent respectivement à 611 et 3193 occurrences.

geuse en février-mars (50-60%). Les moyennes saisonnières répertoriées dans le Tableau 3.1 confirment ce cycle annuel. Les moyennes saisonnières extrêmes se produisent en été et en hiver pour des valeurs respectives de 45,5 % et 32,6 %. Au printemps et en automne, ces dernières sont intermédiaires (36,6 % et 38,6 %).

La méthode de détection nuageuse employée permet une détection des nuages de jour comme de nuit. De part la latitude du site, la nuit hivernale peut durer au maximum 16 heures. Si cette saison est la plus favorable pour réunir les conditions de ciel clair, la durée du jour (8 heures) limite cependant la durée d’observation réalisée à partir du photomètre solaire (le lidar fonctionne en continu, 24 heures sur 24).

Depuis juin 2013, un photomètre lunaire est en fonctionnement automatique à l’ob-

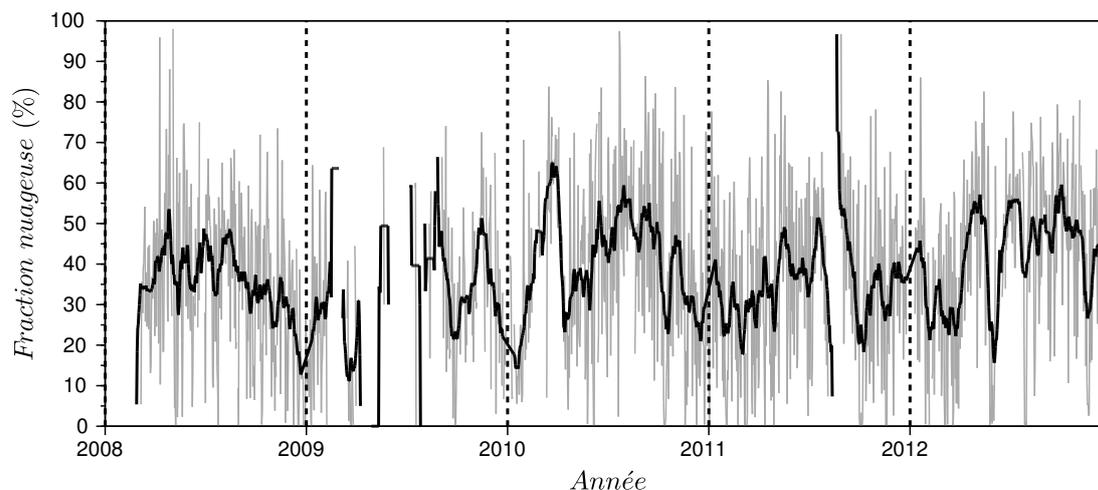


FIGURE 3.3 – Fraction nuageuse pour la période 2008 - 2012. Les moyennes journalières sont représentées en gris. La moyenne glissante sur  $\pm 8$  jours est représentée par la ligne noire.

servatoire de Lille. Ce dernier est capable de fournir une mesure de l'épaisseur optique aérosol lorsque la Lune est suffisamment éclairée, ce qui correspond à une période d'environ deux semaines par mois. La séparation de la couverture nuageuse diurne et nocturne permet de juger du potentiel d'observation d'un tel instrument sur le site Lillois.

Nous présentons, sur la Figure 3.4, la fraction nuageuse avec distinction jour/nuit. La portion de la journée la plus couverte par les nuages, lors du printemps et de l'été, est le jour. Cela s'explique par la durée du jour, plus importante, pendant ces saisons. Si l'on normalise la fraction nuageuse à la durée totale respective du jour et de la nuit (ligne noire), nous constatons que la couverture nuageuse est très semblable le jour et la nuit (fluctuations autour de 50 %). Il n'y a donc pas d'effet diurne notable, quant à la présence de nuages, sur le site de Lille.

Fort de ce résultat, nous pouvons estimer à plus de 10 heures par journée, la durée d'observation que l'utilisation de la photométrie lunaire permettrait de gagner, en hiver. Cela augmenterait de manière significative le nombre d'inversions lidar/photomètre pendant cette saison.

Lorsqu'un nuage est détecté dans le profil, ce dernier est considéré comme nuageux et est donc exclu du processus d'inversion. Cependant, si sa base est supérieure à l'altitude de référence (zone moléculaire disponible), l'inversion des données lidar pourrait être réalisée. La détection nuageuse à partir des données lidar permet d'accéder à l'altitude de la base des nuages. La Figure 3.5 représente les fractions nuageuses en fonction de la gamme

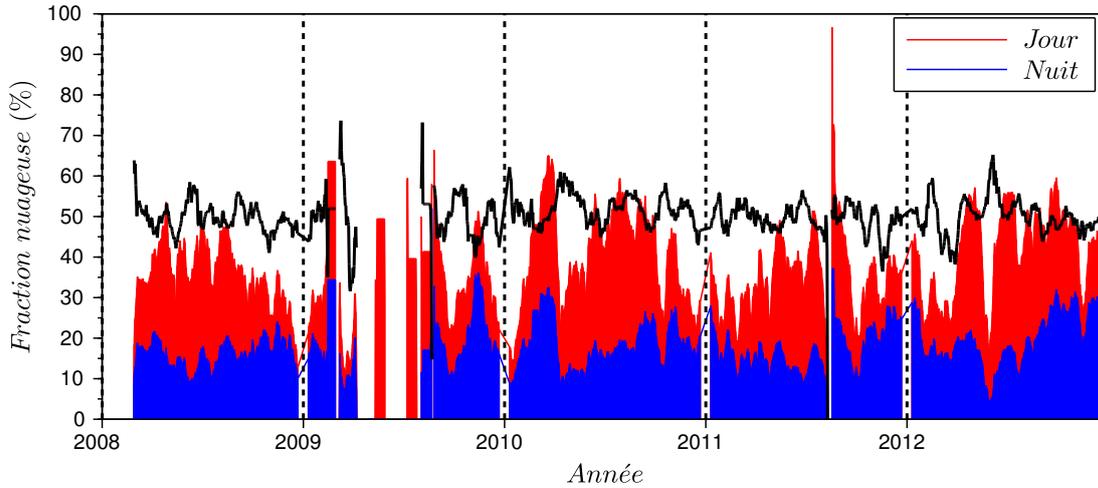


FIGURE 3.4 – Fraction nuageuse journalière de 2008 à 2012 avec distinction jour/nuit (cumulatives). La ligne noire représente le rapport entre la fraction nuageuse de jour et la fraction nuageuse de la journée totale normalisé à la durée du jour (suppression de l'effet de variation de la durée du jour en fonction de la saison).

d'altitude des nuages. Nous avons utilisé la classification de l'ISCCP (International Satellite Cloud Climatology Project), qui distingue 3 types de nuages selon l'altitude de leur base :

- basse altitude : base inférieure à 2 km.
- moyenne altitude : base comprise entre 2 et 5 km.
- haute altitude : base supérieure à 5 km (maximum de 15 km).

Le Tableau 3.1 page 84 synthétise la couverture nuageuse saisonnière en fonction de ces classes d'altitude. La proportion de nuages bas est maximale pendant l'hiver et minimale pendant l'été puisqu'ils représentent respectivement 64 % et moins de 43 % de la totalité des nuages détectés. Des valeurs intermédiaires de 48 % sont obtenues pendant le printemps et l'automne. La tendance est inversée pour les nuages de moyenne altitude, le maximum d'occurrence ayant lieu pendant l'été (32 %) et le minimum pendant l'hiver (18 %). Les nuages de haute altitude sont les plus fréquents pendant le printemps et l'automne (29 %), minimums pendant l'hiver (18 %) et en proportion intermédiaire pendant l'été (25 %). Globalement, quelle que soit la saison, ce sont les nuages bas qui sont les plus fréquents<sup>1</sup>. La généralisation n'est plus vraie pour les deux autres classes de nuages, puisqu'au printemps et en automne, il y a plus de nuages élevés que de moyenne altitude,

1. Les nuages bas sont en général denses et ne permettent pas toujours la propagation du faisceau laser en leur sein et au delà. Les nuages moyens ou élevés au dessus de ces types de nuages bas ne sont donc, dans ce cas, pas détectés par le lidar.

et inversement pendant la saison estivale.

La base de données nuageuse créée pourra servir l'étude des interactions entre aérosols et nuages. L'altitude des nuages, en déterminant leur température, conditionne la phase des hydrométéores qui les composent. Une analyse des données pourrait donc permettre d'étudier l'influence des aérosols sur la formation des nuages de glace et d'eau liquide.

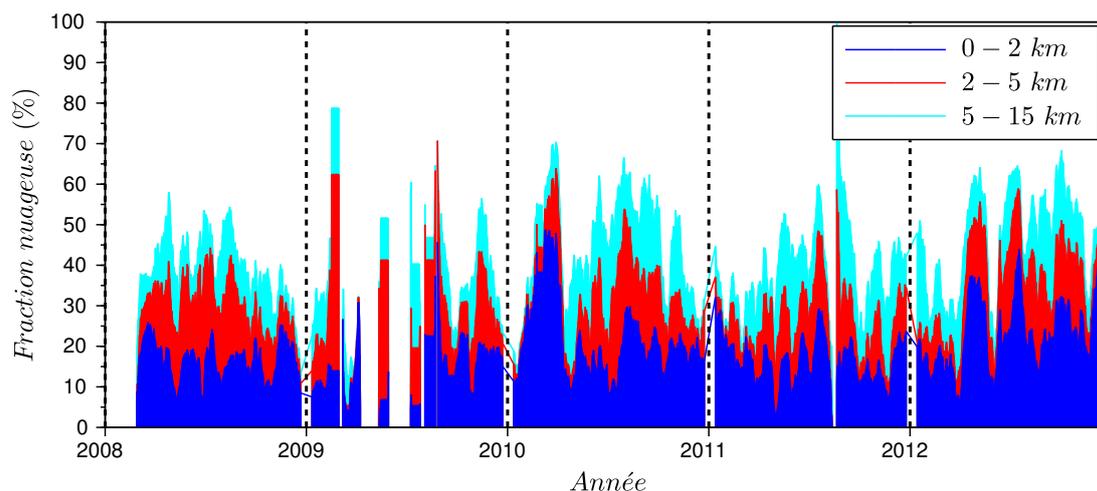


FIGURE 3.5 – Fraction nuageuse (cumulative) journalière de 2008 à 2012 en fonction des classes d'altitude des nuages distinguées par l'ISCCP.

Les mesures photométriques qui composent la base de données utilisée dans ce travail sont, finalement, celles réalisées de jour (photomètre solaire) et en l'absence totale de nuage dans la direction du Soleil (visée directe du photomètre). Nous avons donc calculé le taux d'ensoleillement journalier en combinant la durée du jour à la fraction nuageuse afin d'obtenir la durée potentielle d'observation photométrique (sans tenir compte ici du seuil maximal sur l'angle solaire zénithal imposé par le photomètre). Les résultats, présentés sur la Figure 3.6 indiquent une durée d'ensoleillement plus importante pendant le printemps et l'été, en moyenne (8-9) heures par jour, lorsque celle-ci est de 6 à 7 heures par jour en automne et en hiver. Pour l'année 2010 (première année de mesure complète), c'est un total de plus de 2300 heures d'ensoleillement que nous mesurons avec le lidar. À titre de comparaison, MétéoFrance comptabilise pour cette même année environ 1600 heures d'ensoleillement. L'écart peut-être expliqué par les différences entre les méthodologies employées. La mesure météorologique de l'ensoleillement (insolation) est réalisée à l'aide de mesures de flux direct. Au delà de  $120 \text{ W.m}^{-2}$ , la mesure est considérée comme ensoleillée. L'utilisation de ce seuil ne permet pas de distinguer la présence de nuages 30 minutes avant (et après) le lever (et le coucher) du Soleil, ce qui pourrait engendrer une

sous-estimation d'environ 100 heures d'ensoleillement par an. De plus, un découpage en dixième d'heures est utilisé par la Météo. L'utilisation de cette discrimination temporelle associée à un seuil déterminant la fraction nuageuse du dixième d'heure à partir duquel ce dernier est considéré comme nuageux ou non, peut ramener les valeurs d'ensoleillement (mesurées par le lidar) à des valeurs similaires de celles des mesures météorologiques. Nous retrouvons ainsi environ 1700 heures d'ensoleillement lorsqu'un dixième d'heure est considéré comme étant nuageux lorsque plus d'un quart de ce celui-ci contient des profils nuageux.

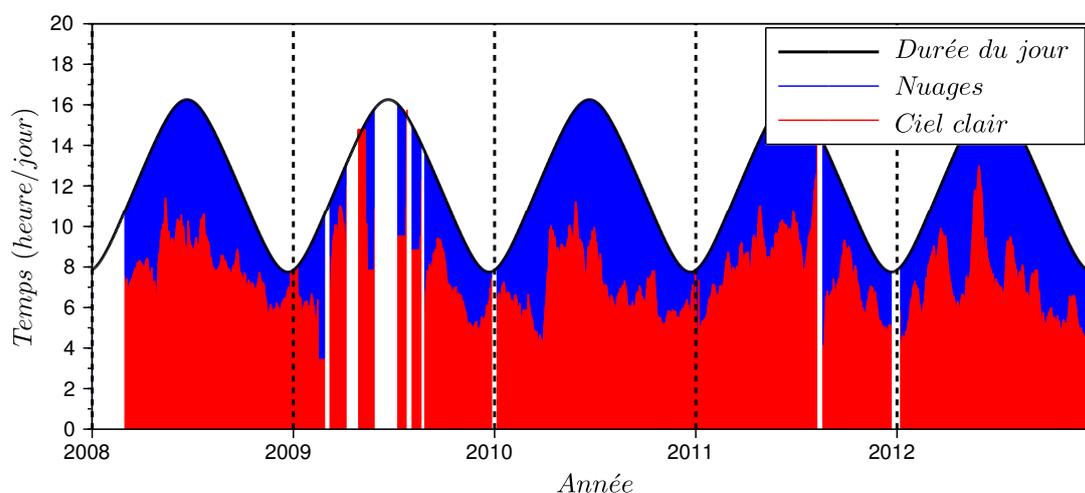


FIGURE 3.6 – Taux d'ensoleillement de 2008 à 2012.

	Hiver	Printemps	Été	Automne
Fraction nuageuse	32,6	36,6	45,5	38,6
de jour	49,6	49,2	51,4	49,1
de nuit	50,4	50,8	48,6	50,9
nuages de basse altitude	64,1	48,4	42,8	48,0
nuages de moyenne altitude	17,5	22,8	31,8	23,1
nuages de haute altitude	18,4	28,8	25,4	28,9
Ensoleillement (heure/jour)	5,9	8,7	8,5	6,7

TABLE 3.1 – Couverture nuageuse Lilloise (%) basée sur la détection depuis les données lidar.

Finalement, c'est en hiver que le nombre d'observations est minimum, à cause de la

plus faible durée d'ensoleillement. Le nombre d'observations est cependant jugé suffisant afin d'être représentatif de cette saison.

Le nombre saisonnier de mesures photométriques (données AERONET level 2.0) varie de manière similaire à l'ensoleillement. Depuis 1999, on totalise respectivement 4600, 12035, 11420 et 8410 mesures d'épaisseur optique, pour chacune des saisons (de l'hiver à l'automne). Le nombre d'inversions est bien sûr moins important, étant donné que les mesures de luminances du ciel sont moins fréquentes que les mesures d'épaisseur optique (2.2.3 page 47). De l'hiver à l'automne, on dénombre ainsi respectivement 327, 877, 722 et 418 inversions AERONET.

### 3.3 Propriétés intégrées sur la colonne

Nous présentons dans un premier temps la variation des différents paramètres aérosols intégrés sur la colonne, issus des mesures photométriques et lidar, pour différentes échelles temporelles. Nous tenterons par la suite d'interpréter les tendances observées en analysant en parallèle les différents paramètres et en s'appuyant sur les données in situ et météorologiques disponibles.

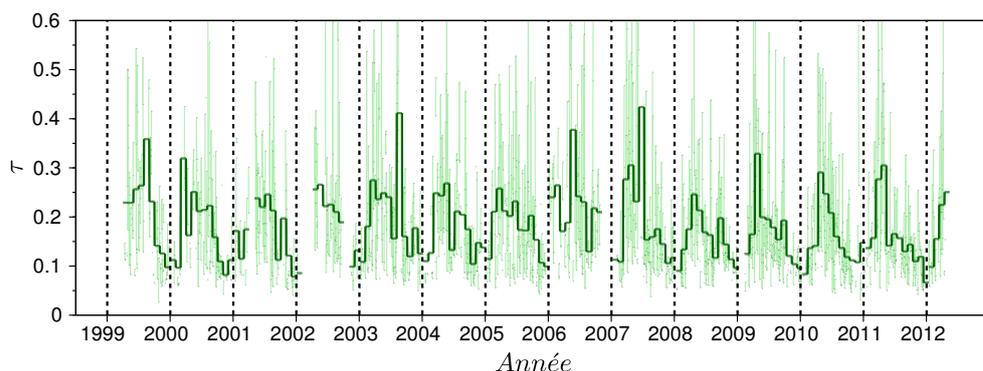
#### 3.3.1 Épaisseur optique $\tau$

Nous présentons sur la Figure 3.7 les mesures d'épaisseur optique AERONET  $\tau$  à 532nm, représentatives de la charge totale en aérosols sur la colonne.

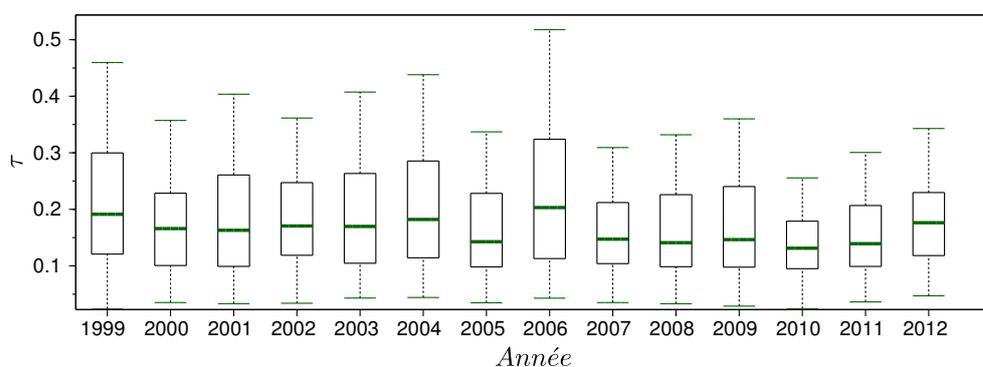
La moyenne d'épaisseur optique sur toute la période d'observation (et sur plus de 36000 observations) est de 0,19 avec un écart-type de 0,13, ce qui fait de Lille un site « moyennement » chargé en particules, au regard d'autres sites sous influence anthropique : Mexico City (0,34), Beijing (0,76), New-York City (0,18). La moyenne annuelle de Lille est proche de celle (peu dispersée) de la plupart des villes d'Europe : Munich (0,17), Rome (0,19), Kiev (0,20) et Paris (0,19). On peut néanmoins noter, dans la série temporelle, quelques pics d'AOD. On dénombre ainsi, à titre d'illustration, 23 journées pour lesquelles  $\bar{\tau} > 0,6$  (où  $\bar{\tau}$  est la moyenne journalière d'épaisseur optique) et 6 pour  $\bar{\tau} > 0,8$ . Au contraire, des journées très claires sont également rencontrées, puisqu'on recense près d'une vingtaine de journées pour lesquelles  $\bar{\tau} < 0,05$ .

La Figure 3.7a met en évidence, pour les années complètes, un cycle annuel présentant un maximum au printemps (moyenne saisonnière de 0,23) et un minimum en hiver pour une moyenne saisonnière de 0,14 (Tableau 3.2 page 100). Le maximum mensuel est bien visible sur la Figure 3.7c ; il est atteint au mois d'avril pour une valeur médiane de 0,21, lorsque celle-ci est de 0,10 en janvier.

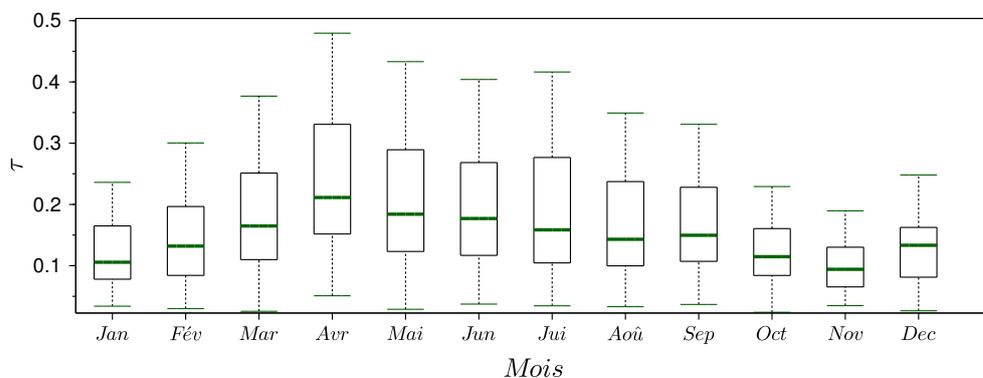
Afin de dégager une éventuelle tendance sur le long terme, nous utilisons le test non-paramétrique de Mann-Kendall (Mann (1945); Kendall (1975)) avec découpage saisonnier



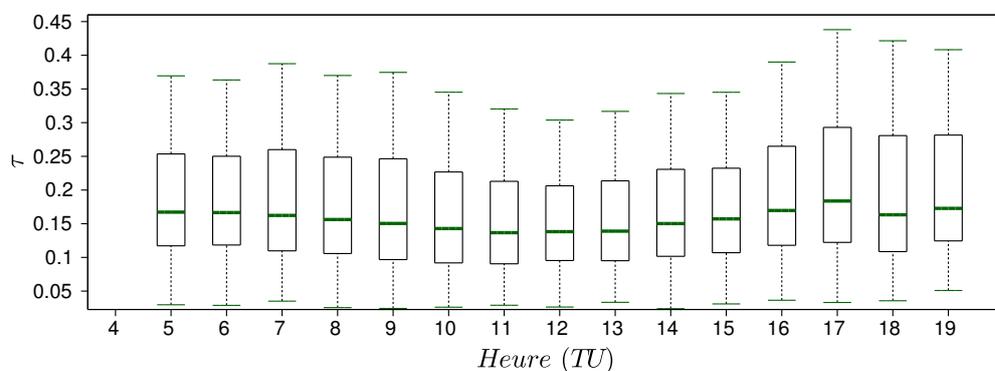
(a) Série temporelle.



(b) Variation annuelle.



(c) Variation mensuelle.



(d) Variation journalière.

FIGURE 3.7 – Épaisseur optique  $\tau$  mesurée à Lille à 532 nm. La série temporelle (a) représente les moyennes journalières (vert clair) et mensuelles (vert foncé) du paramètre. Les boîtes des autres figures représentent les premiers et troisièmes quartiles (de hauteur IQR). Le trait coloré qu'elles contiennent est la médiane. Les moustaches, les valeurs maximales et minimales obtenues dans l'intervalle  $[médiane - 1,5 IQR; médiane + 1,5 IQR]$ .

(Gilbert (1987)), afin de s'affranchir du cycle annuel observé. L'application de ce dernier nous permet d'affirmer qu'une tendance à la diminution existe pour l'été, avec un seuil de signification de 0,05 (correspondant à 5 % de chance de rejeter l'hypothèse nulle alors que celle-ci est avérée). Il ne nous permet pas en revanche de rejeter l'hypothèse d'une tendance nulle pour les autres saisons avec ce même seuil de signification. Les moyennes saisonnières de  $\tau$  en fonction de l'année confortent les résultats du test de Mann-Kendall (voir Figure 3.8) : une diminution notable de  $\tau$  lors de l'été et des tendances moins prononcées pour les autres saisons. La régression linéaire effectuée sur les données estivales indique une baisse de près de 0,009 par an, soit de 1999 à 2012 une diminution de  $\tau$  de 0,11 (soit -55 %).

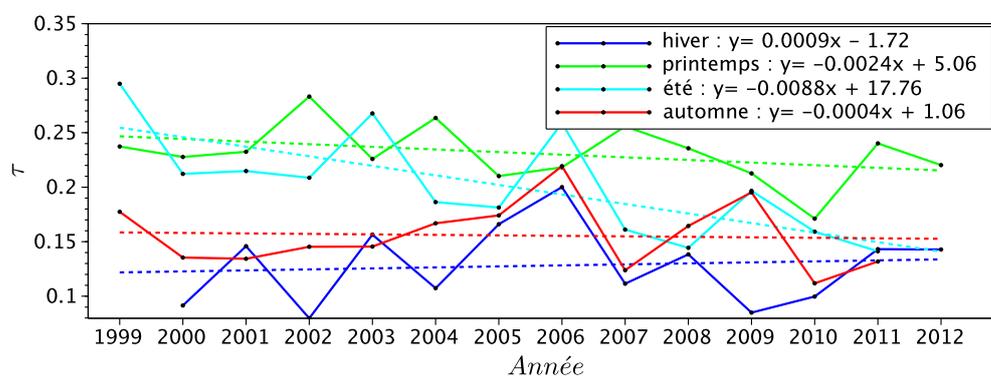
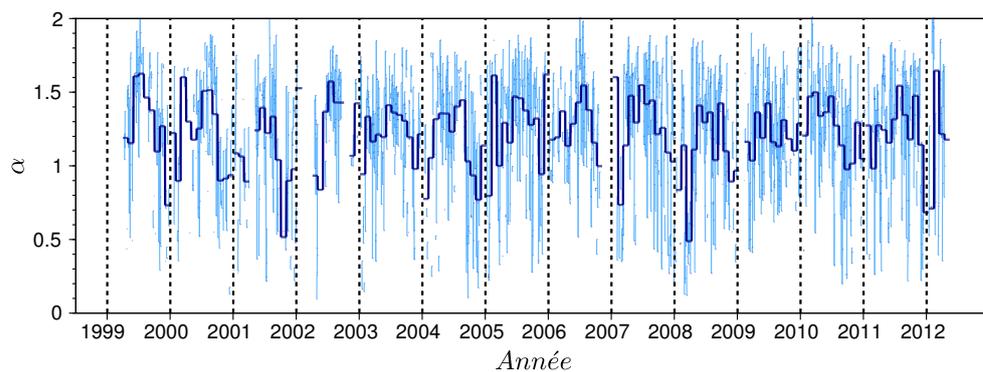


FIGURE 3.8 – Moyennes saisonnières d'épaisseur optique  $\tau$  en fonction de l'année. En pointillés, la régression linéaire obtenue pour chacune des séries saisonnières (méthode des moindres carrés).

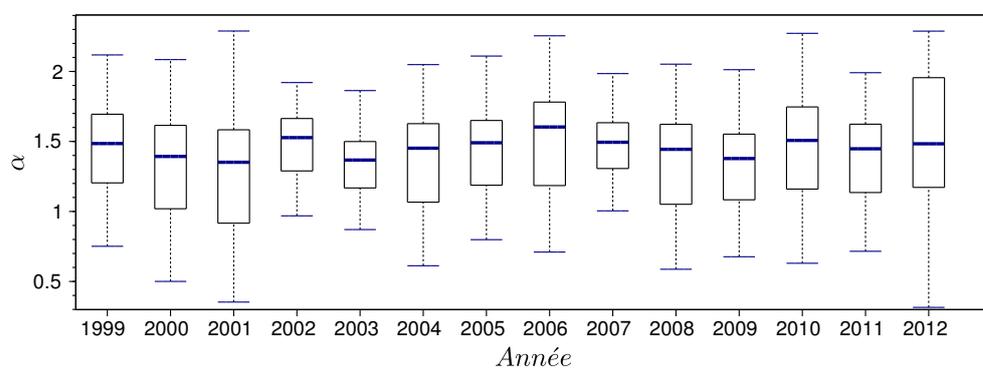
La variation horaire de l'épaisseur optique met en évidence un cycle journalier. Le minimum est atteint à 12h00 (TU) pour une médiane de 0,14 lorsque celle-ci vaut, à 06h00 et 19h00, 0,17, soit une variation relative de plus de 20%.

### 3.3.2 Coefficient d'Angström $\alpha$

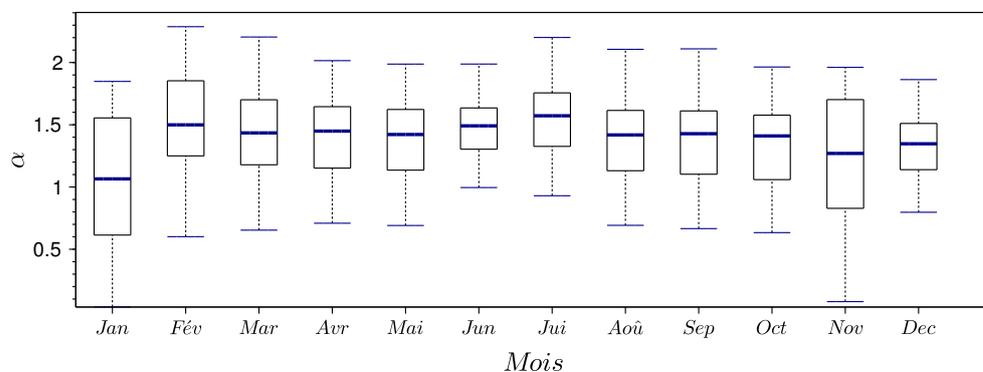
Avec un coefficient d'Angström (calculé entre 440 nm et 870 nm) dont la moyenne multi-annuelle est de  $1,21 \pm 0,14$ , les aérosols Lillois sont majoritairement composés de fines particules. Pour rappel, les poussières désertiques et particules issues de la combustion de biomasse sont respectivement associées à des valeurs de  $\alpha \leq 0,4$  et de  $\alpha \geq 1,7$  (Tableau 1.2 page 31). La valeur moyenne multi-annuelle de Lille est légèrement inférieure à celle d'autres sites sous influence anthropique : Mexico City (1,48), New-York City (1,45). Pour Beijing, la moyenne annuelle plus faible (1,07) s'explique par le mélange de poussières désertiques aux autres particules d'origine anthropique. En Europe, les valeurs



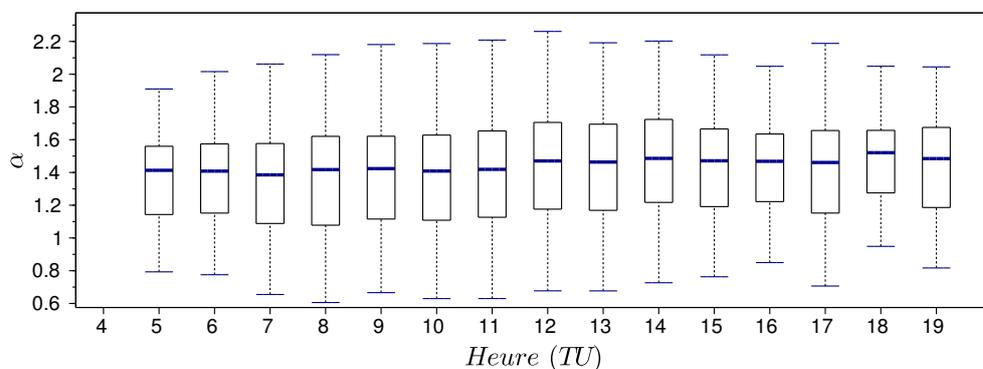
(a) Série temporelle.



(b) Variation annuelle.



(c) Variation mensuelle.



(d) Variation journalière.

FIGURE 3.9 – Coefficient d'Angström  $\alpha$  mesuré à Lille. (Schéma de figures identique à la Figure 3.7)

du coefficient d'Angström sont assez proches de celles observées à Lille : Munich (1,42), Rome (1,30), Kiev (1,39) et Paris (1,26), mais souvent supérieures. Cela pourrait s'expliquer par la proximité de la mer, génératrice d'aérosols marins pouvant être transportés au-dessus de la métropole Lilloise lorsque les vents sont originaires de l'Ouest.

Tout comme pour  $\tau$ , on note une variation saisonnière (Figures 3.9a et 3.9c) : le minimum se produit l'hiver (en janvier :  $\alpha \approx 1,10$ ) et le maximum l'été (en juin :  $\alpha \approx 1,57$ ), soit une variation de l'ordre de 30%. La variation relative est donc de plus faible amplitude que celle de  $\tau$  et les deux cycles ne sont pas, non plus, en phase.

L'application du test saisonnier de Mann-Kendall sur la série ne permet de dégager aucune tendance pour aucune des quatre saisons. Les moyennes annuelles (Figure 3.9b) permettent de constater, si l'on se focalise sur les années complètes, de légères augmentations et diminutions successives, de l'ordre de 10 %.

Au niveau de la variation journalière (Figure 3.9d), nous notons une faible augmentation, relativement uniforme, qui implique des particules de plus en plus fines au cours de la journée. À 6h00 et 18h00, la médiane est respectivement de 1,41 et 1,52 (+8%). Nous constatons également une plus grande dispersion de  $\alpha$  vers 12h00.

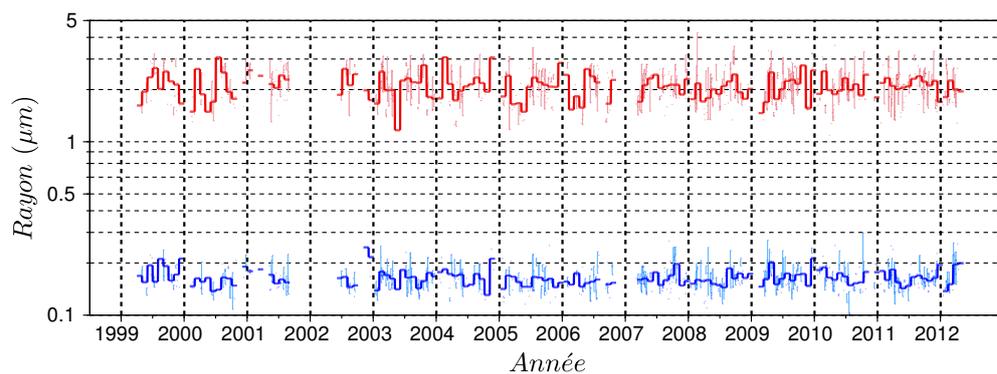
Les paramètres que nous présentons par la suite étant issus des inversions AERONET, et non des mesures directes d'épaisseur optiques plus fréquentes, les effectifs sont moins importants. Ils sont en particulier faibles pour les heures correspondant à un angle azimutal faible (autour de 12h00) et maximums à 8h00 et 16h00 (TU).

### 3.3.3 Distribution en taille

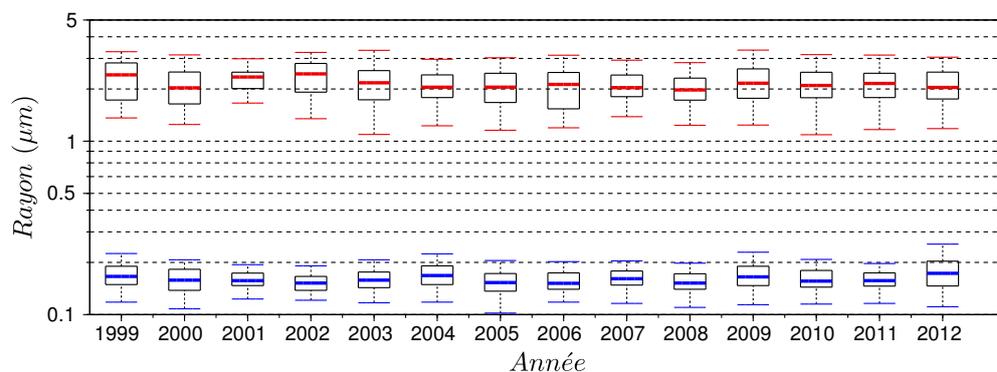
Afin de mettre en évidence les variations et éventuelles tendances de la distribution en taille, nous nous focaliserons sur 3 paramètres permettant de la caractériser : les deux rayons effectifs des modes fins  $r_{fine}$  et grossiers  $r_{coarse}$  (distribution bi-modale) ainsi que le rapport de l'amplitude de ces deux modes  $n_{0,c}/n_{0,f}$  où  $n_{0,c}$  et  $n_{0,f}$  représentent respectivement les amplitudes du mode grossier et du mode fin. Ce dernier paramètre n'est pas directement fourni par AERONET mais calculé à partir de la recherche des maximums de part et d'autre du point d'inflexion de la distribution en taille.

#### 3.3.3.1 Rayons effectifs

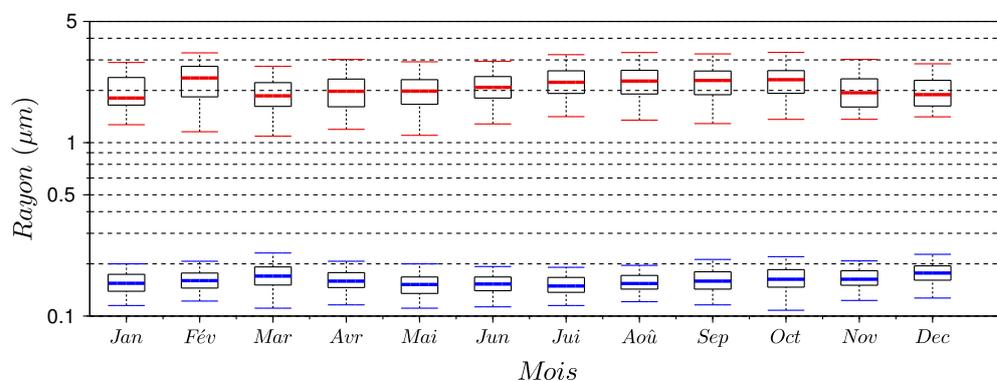
Les rayons effectifs ne présentent pas de cycle saisonnier clair. Nous notons néanmoins de mars à octobre une augmentation de  $r_{coarse}$  de l'ordre de 20% (de 1,86 à 2,30  $\mu\text{m}$ ) qui précède des valeurs plus faibles de novembre à janvier (Figure 3.10c). C'est en février que la plus forte valeur est observée (2,36  $\mu\text{m}$ ). La variation saisonnière est de faible amplitude pour le mode fin  $r_{fine}$ . Elle est, de manière générale, opposée à celle du mode



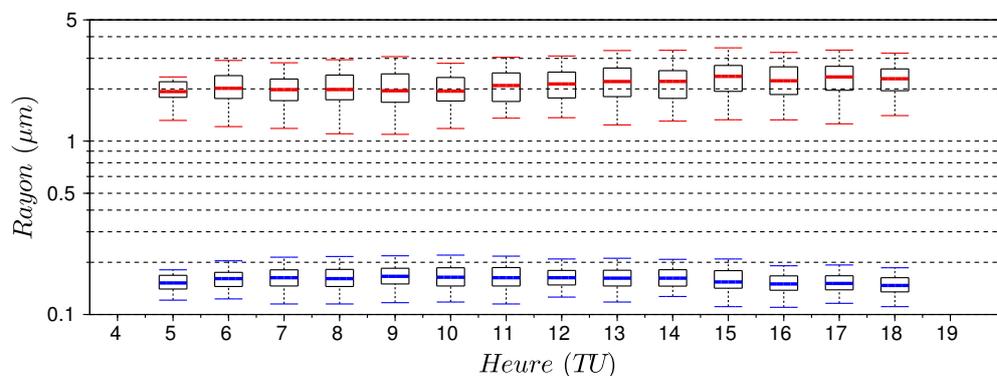
(a) Série temporelle.



(b) Variation annuelle.



(c) Variation mensuelle.



(d) Variation journalière.

FIGURE 3.10 – Rayons effectifs  $r_{fine}$  (en bleu) et  $r_{coarse}$  (en rouge) des modes fin et grossier de la distribution en taille.

grossier : les plus faibles valeurs de  $r_{fine}$  sont obtenues pour les plus fortes valeurs de  $r_{coarse}$  et inversement.

Aucune tendance sur le long terme n'a pu être dégagée des résultats du test saisonnier de Mann-Kendall pour  $r_{fine}$ . Pour le rayon effectif du mode grossier,  $r_{coarse}$ , nous observons une diminution pendant l'été (seulement). Les moyennes saisonnières par année (Figure 3.11) indiquent que cette baisse se concentre surtout entre 1999 et 2008. La régression linéaire effectuée pour cette période met ainsi en évidence une diminution de  $0,03 \mu\text{m}/\text{an}$  ( $2,50 \mu\text{m}$  en 1999 et  $2,06 \mu\text{m}$  en 2008).

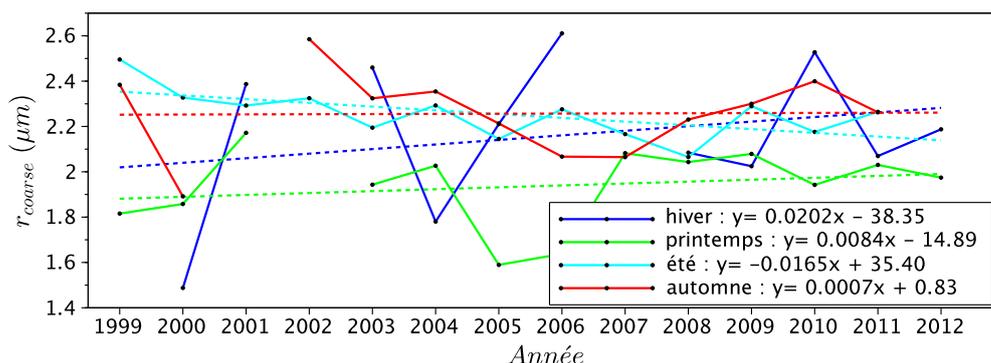


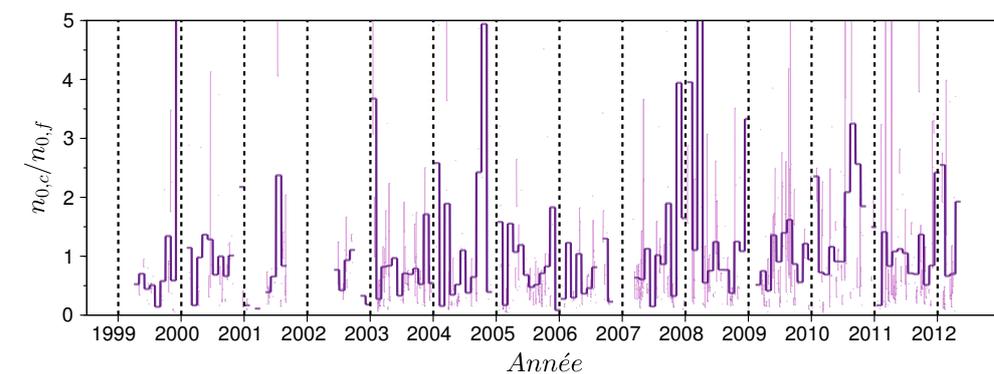
FIGURE 3.11 – Moyennes saisonnières du rayon effectif du mode grossier  $r_{coarse}$ . En pointillés, la régression linéaire obtenue pour chacune des séries saisonnières (méthode des moindres carrés).

S'agissant de la variation journalière (Figure 3.10d), nous notons une augmentation de  $r_{coarse}$  à partir de 10h00 ( $1,94 \mu\text{m}$ ) jusqu'en fin de journée ( $2,30 \mu\text{m}$ ) de l'ordre de 15%. Pour le mode fin, un cycle d'amplitude moins élevée ( $\approx 10\%$ ) est également observé : les minimums sont atteints en début et fin de journée ( $0,150 \mu\text{m}$  et  $0,146 \mu\text{m}$ ) et le maximum autour de 12h00 ( $0,163$ ).

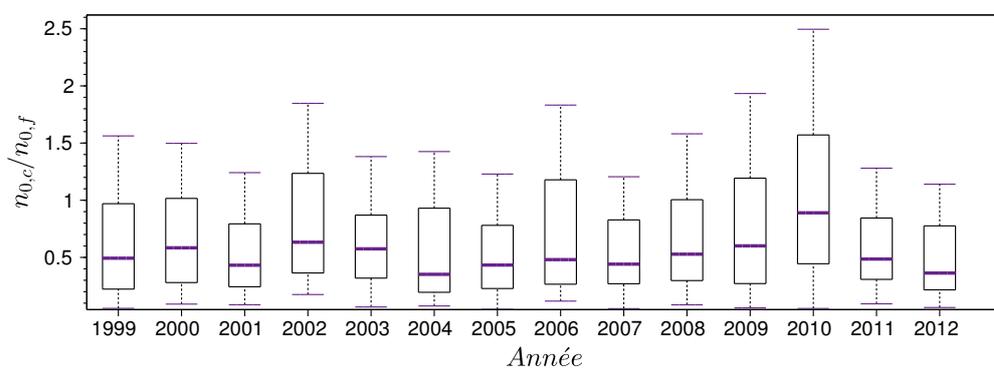
### Proportion des modes

En accord avec la valeur du coefficient d'Angström  $\alpha$ , le rapport médian  $n_{0,c}/n_{0,f}$  de 50% indique que les particules fines sont prédominantes sur le site de Lille.

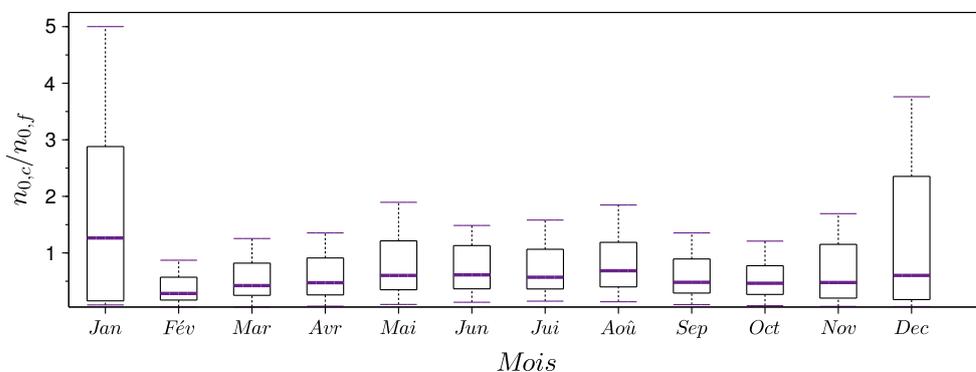
La Figure 3.12c met en évidence un cycle saisonnier complexe. La proportion du mode grossier est minimale en février et novembre (28% et 48%) et atteint 62% pour la saison estivale, en passant par des valeurs intermédiaires pour le printemps et l'automne. Nous constatons en revanche, de manière récurrente, des valeurs élevées du rapport en décembre et janvier. Le paramètre  $n_{0,c}/n_{0,f}$  y atteint respectivement des médianes de 0,60 et 1,30 pour l'ensemble de la base de données.



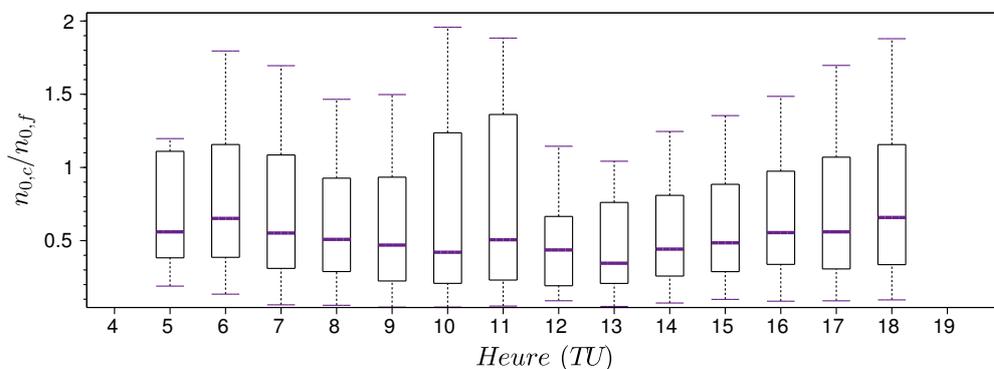
(a) Série temporelle.



(b) Variation annuelle.



(c) Variation mensuelle.



(d) Variation horaire.

FIGURE 3.12 – Rapport des amplitudes du modes grossier  $n_{0,c}$  et du mode fin  $n_{0,f}$  de la distribution en taille.

Le test de Mann-Kendall ne permet pas de mettre en évidence une tendance multi-annuelle, quels que soit la saison ou le mois considéré.

Un cycle journalier est en revanche observé, comme pour les rayons effectifs (Figure 3.12d). Le mode grossier est en proportion maximale à 06h00 et 18h00 (0,65) et minimale à 13h00 (0,35), soit une variation relative de plus de 30%.

L'inversion de l'albédo de diffusion  $\varpi_0$  et de l'indice de réfraction complexe  $m$  depuis le photomètre nécessite une épaisseur optique minimale  $\tau = 0,40$  à 440 nm (Dubovik et King (2000)). Les effectifs des deux prochains paramètres présentés sont donc de nouveau réduits, et restreints aux journées plutôt chargées en aérosols. Pour les mois de décembre et janvier (épaisseur optique  $\tau$  minimale), aucune inversion de ces deux paramètres n'a ainsi pu être réalisée sur l'ensemble de la base de données.

### 3.3.4 Albédo de diffusion $\varpi_0$

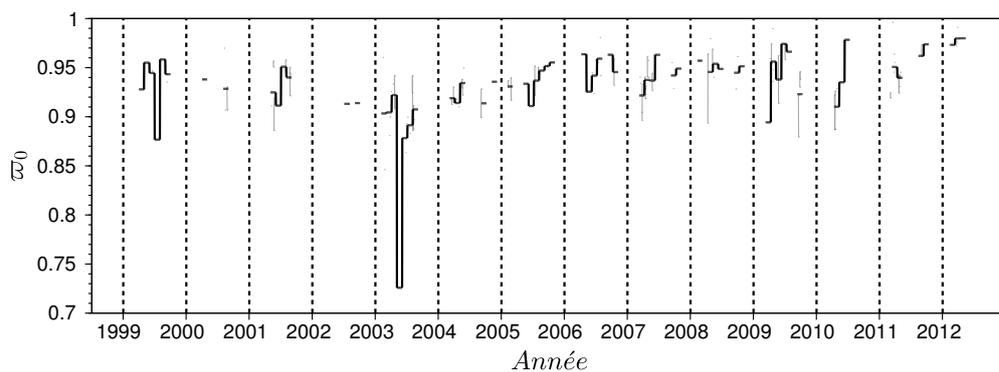
La valeur moyenne de  $\varpi_0$  sur l'ensemble de la base de données est de 0,94 et l'écart-type de 0,03 à 532 nm (interpolation entre 441 nm et 675 nm). Cette valeur élevée implique des aérosols relativement peu absorbants. Néanmoins, la série temporelle (Figure 3.13a) permet de distinguer un pic minimum de  $\varpi_0$  en mai 2003 (0,74) dont l'amplitude est bien supérieure à sa variabilité statistique. Nous reviendrons sur ce cas particulier dans l'interprétation des observations ( 3.3.7.5 page 106).

La variabilité inter-annuelle constatée sur la Figure 3.15b est causée par l'hétérogénéité temporelle des observations pour chacune des années et n'est donc pas sujette à interprétation.

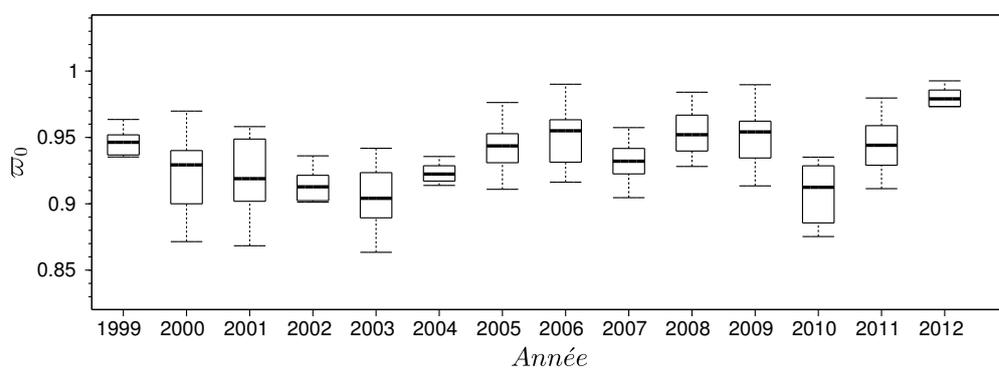
De part les effectifs, le test de Mann-Kendall n'a été appliqué que pour le printemps et l'été. Les résultats sont une tendance à l'augmentation pour la saison estivale (surtout à partir de 2002), et aucune tendance non nulle pour le printemps. La régression linéaire pour l'été indique une progression de  $\varpi_0$  de +0,008/an depuis 2002. De 2002 à 2009-2010, les moyennes saisonnières passent ainsi respectivement de 0,92 à 0,98.

À cause du faible nombre d'inversions, la variation saisonnière (Figure 4.13c page 171), ne peut-être établie que de mars à septembre où une légère augmentation est constatée (0,93 à 0,95). Le mois d'août représente une anomalie dans cette tendance puisque la valeur minimale de  $\varpi_0$  (0,91) lui est associée.

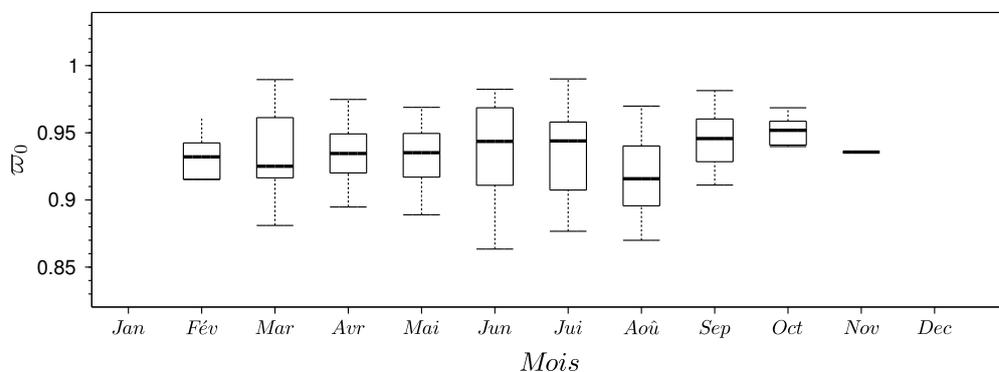
Pour la variation journalière, compte tenu des effectifs, nous nous concentrons sur les inversions matinales (de 06h00 à 09h00) et de fin d'après-midi (15h00 à 18h00). Un léger cycle journalier est alors observé avec ses maximums aux lever et coucher du Soleil ( $\varpi_0 \approx 0,95$ ) et ses minimums à 09h00 et 15h00 (inversions les plus proches de 12h00,  $\varpi_0 \approx 0,94$ ), mais compte tenu de la précision sur la restitution de ce paramètre (0,03, Dubovik et al. (2000)), celui-ci ne peut être considéré comme significatif.



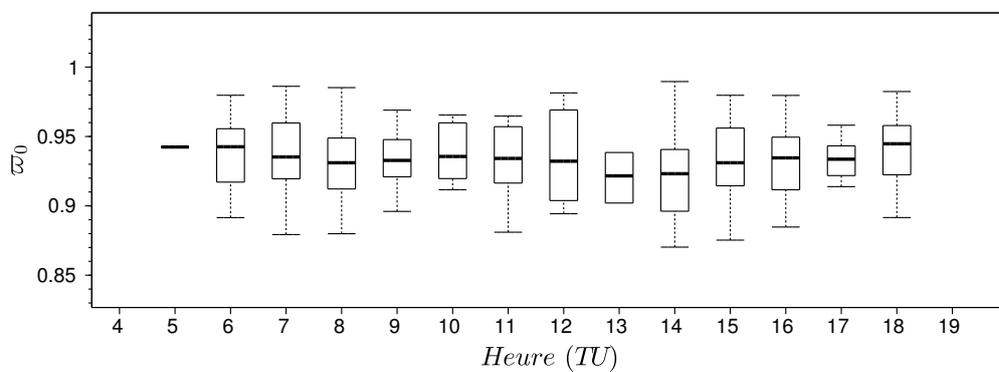
(a) Série temporelle.



(b) Variation annuelle.



(c) Variation mensuelle.



(d) Variation horaire.

FIGURE 3.13 – Albédo de diffusion simple  $\varpi_0$  interpolé à 532 nm.

### 3.3.5 Indice de réfraction $m$

La valeur moyenne de l'indice de réfraction des aérosols Lillois est de  $m = 1,42 - 0,009i$  à 532 nm (interpolation entre 441 nm et 673 nm). Comme pour l'albédo de diffusion simple, la série temporelle (Figure 3.14a page suivante) met en évidence, pour les parties réelle et imaginaire, une anomalie en mai 2003 (respectivement 1,55 et 0,056).

De même, la variabilité inter-annuelle ne peut-être interprétée du fait de l'hétérogénéité temporelle des observations pour chacune des années.

Une tendance à long-terme a pu être dégagée pour la seule partie imaginaire  $m_i$  durant l'été. Celle-ci consiste en une diminution de 0,0007/an. La médiane de ce paramètre pour les années 1999-2000 est de 0,010 alors qu'elle est de 0,003 pour la période 2009-2010, soit une importante diminution relative de l'ordre de 70%. À noter cependant que la précision sur la partie imaginaire de l'indice de réfraction est estimée à 50% dans le cas d'aérosols faiblement absorbants non dominés par le mode grossier (Dubovik et al. (2000)).

Les tendances saisonnières des deux parties de l'indice de réfraction sont différentes. Pour la partie imaginaire, nous constatons logiquement une tendance inverse de celle de  $\varpi_0$ , mais de plus forte amplitude. L'indice  $m_i$  passe ainsi en mars d'une valeur médiane de 0,010 pour le mois de mars à 0,008 pour le mois de septembre (-25%), mais un maximum est retrouvé au mois d'août (0,011). La variation saisonnière de la partie réelle consiste en une diminution de mars à juin (1,45 à 1,40) suivie d'une augmentation irrégulière jusqu'en septembre (1,41), en passant par une nouvelle anomalie pour le mois d'août (1,42).

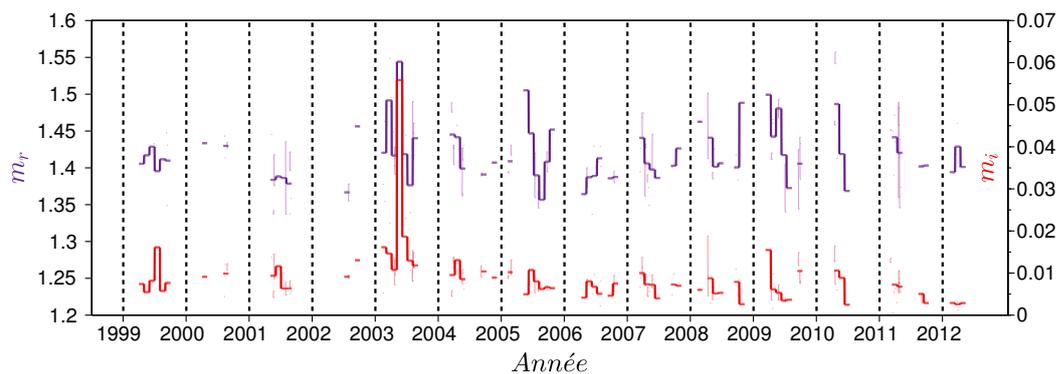
La variation journalière consiste, pour la partie réelle, à un cycle présentant ses minimums aux lever et coucher du Soleil (1,41) et ses maximums mesurés à 09h00 et 18h00 (1,43). Pour la partie imaginaire, compte tenu de la précision du paramètre, aucun cycle journalier ne peut-être clairement mis en évidence.

### 3.3.6 Rapport lidar $S_a$

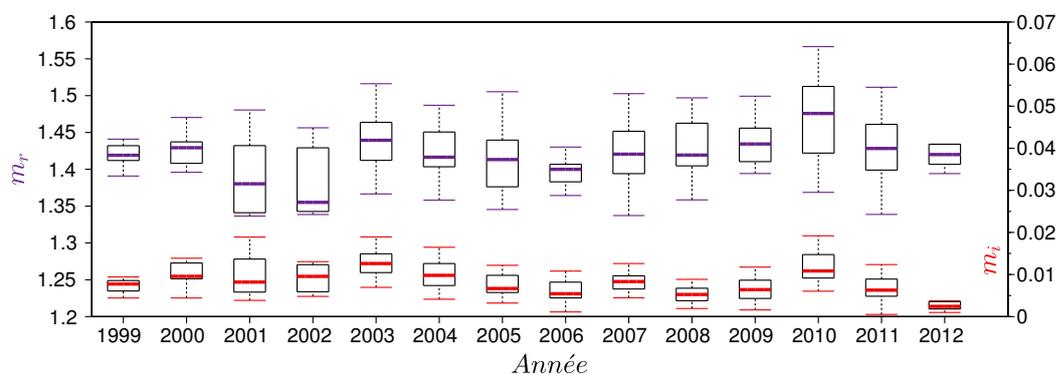
Le rapport lidar  $S_a$  est issu de l'inversion des données photomètre et lidar. Il est donc restreint aux observations simultanées des deux instruments. Entre 2008 et 2012, ce sont près de 7000 inversions qui ont passé les critères de qualité imposés par BASIC (détection nuageuse et restitution de l'épaisseur optique photométrique), dont 5000 entre 2011 et 2012 du fait des améliorations apportées aux instruments et aux procédures. Afin de pouvoir disposer de l'année 2012 complète, nous avons utilisé les mesures d'épaisseur optique AERONET de niveau 1,5.

Sur l'ensemble de la base de données, le rapport lidar moyen  $S_a$  est de  $36 \pm 18$  sr.

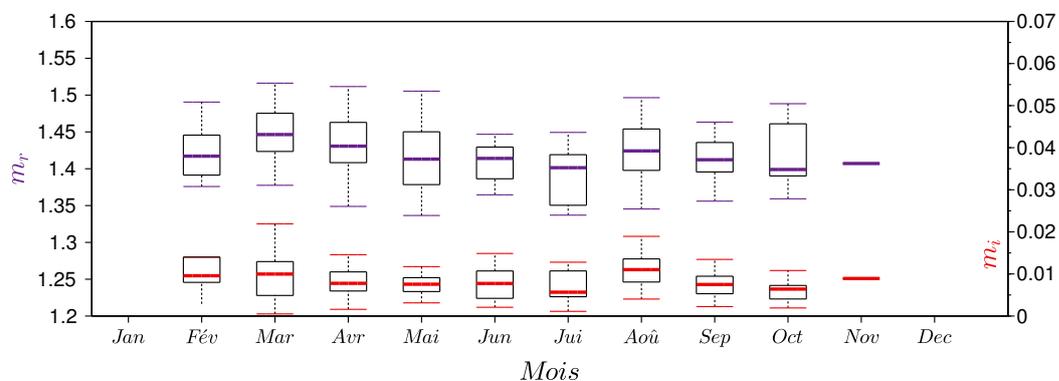
Ce paramètre peut également être calculé à partir des inversions photométriques. La combinaison des équations 1.20 et 2.18 permet en effet d'exprimer le rapport lidar comme :



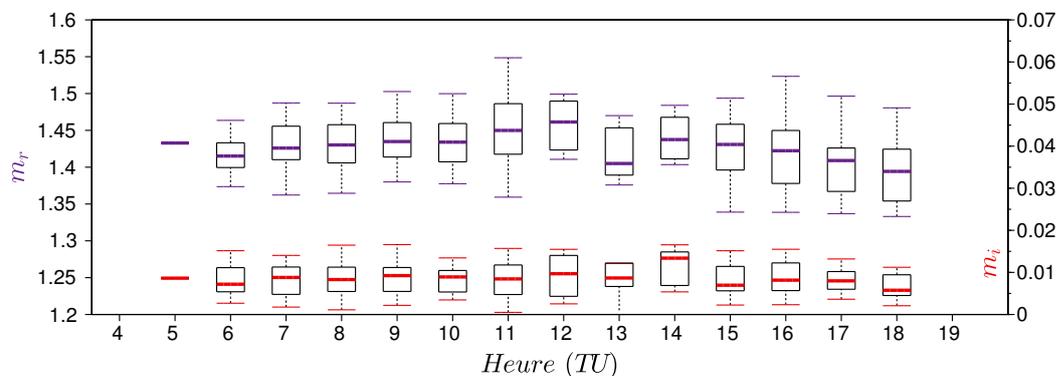
(a) Série temporelle.



(b) Variation annuelle.

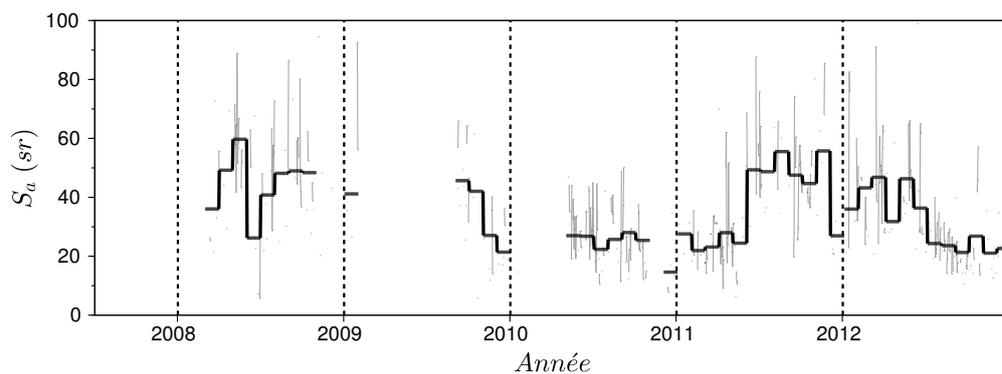


(c) Variation mensuelle.

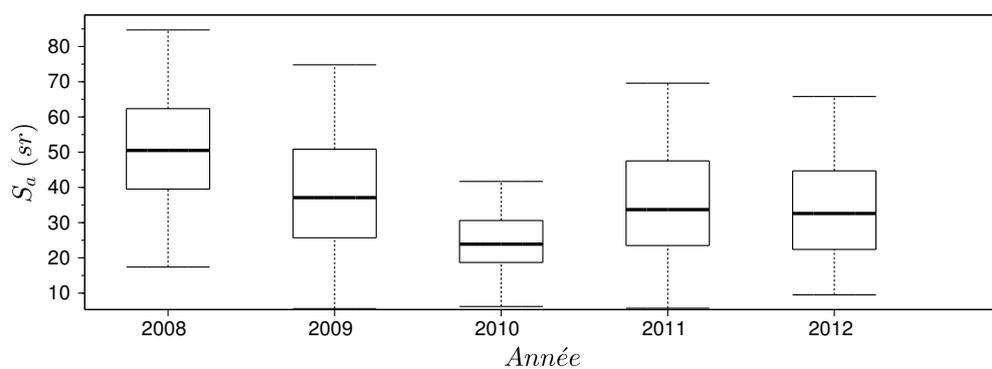


(d) Variation horaire.

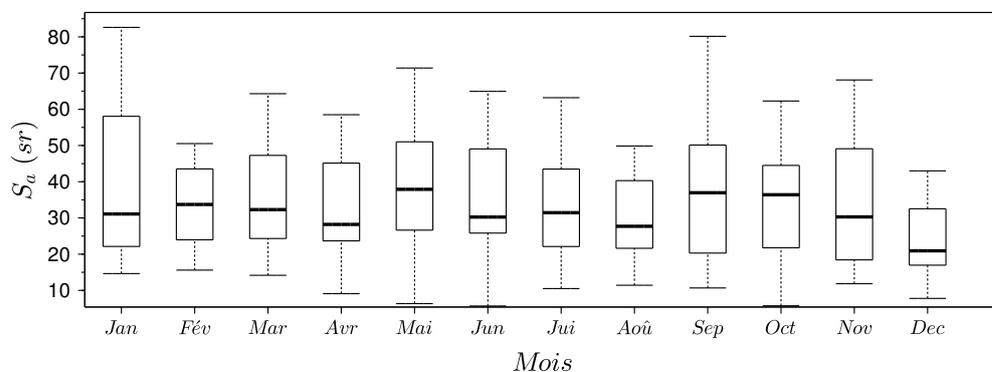
FIGURE 3.14 – Indice de réfraction complexe  $m = m_r - i m_i$  interpolé à 532 nm. Les parties réelle et imaginaire sont tracées respectivement en violet et rouge.



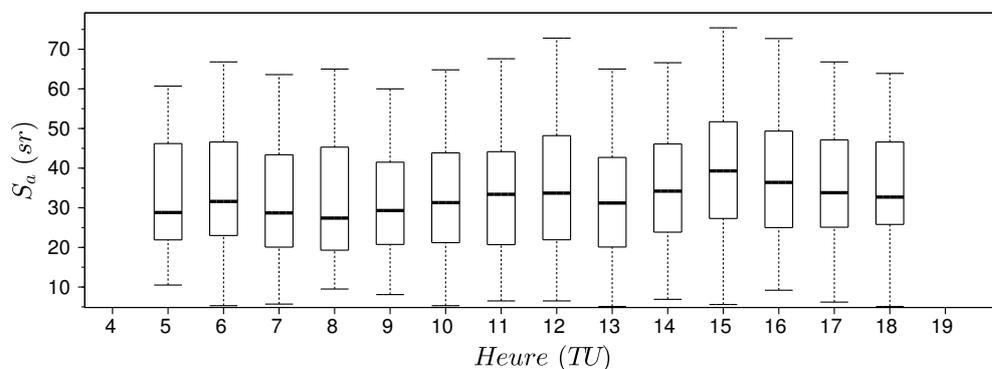
(a) Série temporelle.



(b) Variation annuelle.



(c) Variation mensuelle.



(d) Variation horaire.

FIGURE 3.15 – Rapport lidar  $S_a$  à 532 nm issu des inversions lidar/photomètre de BASIC.

$$S_{a,photo} = \frac{1}{\varpi_0} \frac{4\pi}{p(180)} \quad (3.1)$$

La fonction de phase  $p(\Theta)$  n'est pas mesurée à  $180^\circ$ , mais est recalculée à partir de la distribution en taille et de l'indice complexe de réfraction déduits des inversions. Puisque  $S_{a,photo}$  implique l'albédo de diffusion simple  $\varpi_0$ , sa restitution est limitée aux cas où  $\tau > 0,4$  à  $440 \text{ nm}$ . Si l'on ne considère que ces situations, le rapport lidar moyen  $S_a$  s'élève à  $45 \pm 20 \text{ sr}$ . Le calcul de  $S_{a,photo}$  sur l'ensemble de la base de données (165 inversions, en considérant les moyennes journalières) donne une moyenne de  $74 \pm 10 \text{ sr}$ . Cette valeur est en accord avec les climatologies effectuées à partir des données AERONET pour d'autres sites urbains/industriels. Dans leur article, Cattrall et al. (2005) ont ainsi calculé pour les sites du GSFC (banlieue de Washington DC), de Mexico-City et de Créteil des valeurs moyennes respectives de 70, 73 et 74 sr. Beijing se détache des autres villes (comme pour  $\alpha$ ), avec une moyenne plus faible, de 58 sr. Avec un écart de près de 30 sr,  $S_{a,photo}$  est en revanche bien supérieur à la valeur moyenne de  $S_a$  issu de la combinaison lidar/photomètre.

Dans leurs articles, Müller et al. (2007) et Burton et al. (2012) présentent des climatologies de  $S_a$  obtenues respectivement avec des lidars Raman et HSRL (High Spectral Resolution Lidar), qui permettent tous deux d'accéder aux profils verticaux de rapport lidar  $S_a(z)$ . Müller et al. (2007) synthétisent les résultats issus de l'observation prolongée sur différents sites, ou plus ponctuelle lors de plusieurs campagnes, pour différents types d'aérosols. Si des valeurs de  $S_a$  peuvent atteindre ponctuellement des valeurs de 70 à 80 sr en Allemagne (site urbain/industriel) dans le cas de masses d'air provenant de l'Est (et non affectées par les aérosols marins), la valeur moyenne issue des observations sur le site de Leipzig (du réseau EARLINET), depuis 2000 est de  $53 \pm 11 \text{ sr}$  pour les aérosols de la couche limite. Pour d'autres sites de type urbain/industriel, on note, pour les aérosols situés dans la troposphère libre, des valeurs encore plus faibles :  $45 \pm 9 \text{ sr}$  et  $39 \pm 10 \text{ sr}$  au Sud-Ouest de l'Europe et en Amérique du Nord. Les mesures effectuées en Italie et Grèce (sites plus influencés par les aérosols marins que ne l'est Leipzig) présentées par Bösenberg et Matthias (2003) indiquent des valeurs moyennes inférieures à 50 sr. Burton et al. (2012) présentent, dans leur article, le rapport lidar  $S_a$  issu des mesures du lidar aéroporté HSRL pour différents types d'aérosols. La moyenne pour les aérosols de type urbain est d'environ  $60 \pm 10 \text{ sr}$ .

Les valeurs mesurées par les lidars sont donc, bien que présentant une certaine variabilité, toutes en-deçà des valeurs climatologiques déterminées depuis les données photométriques seules. Plusieurs raisons peuvent expliquer ces différences (Müller et al. (2007)). En premier lieu, comme évoqué précédemment, le photomètre ne mesure pas directement la rétrodiffusion aérosol. Cette dernière est calculée à partir de modèles de particules. Une erreur sur l'indice de réfraction peut engendrer des erreurs sur la restitution de la fonction de phase et donc sur le rapport lidar  $S_{a,photo}$ . Ensuite, les lidars sont en général moins précis pour les faibles altitudes (After-Pulse, Overlap, voir 2.3.3 page 53). Dans

notre cas, nous extrapolons le signal corrigé de l'altitude pour les 270 premiers mètres. Nous ne sommes donc pas sensibles aux fines particules, produites fraîchement par les transports, auxquelles sont attribuées de fortes valeurs de coefficient d'Angström et de rapport lidar.

Finalement, l'écart entre  $S_{a,photo}$  et  $S_a$  observé à Lille (et ailleurs) montre bien l'importance de la combinaison entre le lidar et le photomètre. En effet, l'utilisation d'un rapport lidar standard pour des particules d'environnement urbain/industriel de 70 sr (d'après la climatologie AERONET) modifierait le profil d'extinction  $\sigma_{aer}(z)$  (en moyenne, une augmentation de l'ordre de 75 %), et donc l'épaisseur optique lidar (du même ordre de grandeur), sans parler des événements exceptionnels qui apportent des particules de nature et donc de rapport lidar très variables, et pour lesquels le rapport lidar typique du site d'observation ne serait pas adapté. La méthode de Klett contrainte par l'épaisseur optique mesurée par le photomètre permet de calibrer le profil d'extinction. Si une erreur a effectivement lieu sur le rapport lidar, la propagation de cette erreur se fera alors essentiellement sur profil de rétrodiffusion  $\beta_{aer}(z)$ .

Le rapport lidar dépend implicitement de la configuration instrumentale qui a évolué au cours de la vie de l'instrument. Même si des recalibrations ont été réalisées a posteriori en s'appuyant, par exemple, sur le signal moléculaire, il semble difficile de pouvoir dégager une tendance pour ce paramètre, d'autant plus que le lidar n'a pas fonctionné de manière continue lors des trois premières années de mesure (2008-2010) (Figures 3.15a page 97 et 3.15b page 97).

Nous n'observons pas, non plus, de nette tendance saisonnière, comme le montre la Figure 3.15c page 97 et les valeurs moyennes saisonnières très proches compte tenu de leur variabilité (Tableau 3.2 page suivante).

Au niveau de la variation journalière, nous constatons une augmentation de  $S_a$  au cours de la journée, entre 08h00 et 16h00 (de 29 sr à 39 sr) suivie d'une diminution, ramenant  $S_a$  à 33 sr à 18h00.

### 3.3.7 Interprétation

#### 3.3.7.1 Tendances à long-terme

Les seules tendances confirmées par le test de Mann-Kendall sont obtenues pour la saison estivale. Nous constatons une baisse significative de  $\tau$  (-55 %), de la partie imaginaire de l'indice de réfraction  $m_i$  (-70 %) associée à une légère augmentation de l'albédo de diffusion simple (+7 %) ainsi qu'une diminution de  $r_{coarse}$  de l'ordre de 20 %.

L'évolution de  $m_i$  et  $\varpi_0$  est cohérente, puisqu'une partie imaginaire (de l'indice de réfraction) plus faible implique une moins grande absorption et donc une valeur plus élevée de  $\varpi_0$ .

La diminution du rayon effectif du mode grossier  $r_{coarse}$  pourrait être reliée à l'augmentation de l'utilisation des filtres à particules pour les véhicules diesel qui ne permettent

	Hiver	Printemps	Été	Automne
$\tau$	0,14±0,07	0,23±0,14	0,20±0,14	0,15±0,10
$\alpha$	1,30±0,46	1,37±0,39	1,44±0,35	1,29±0,42
$\varpi_0$	0,92±0,05	0,94±0,03	0,93±0,03	0,94±0,02
$m_r$	1,42±0,04	1,43±0,05	1,41±0,04	1,41±0,03
$m_i$	0,013±0,009	0,009±0,005	0,009±0,004	0,008±0,003
$r_{fine}$ ( $\mu\text{m}$ )	0,17±0,03	0,17±0,03	0,16±0,02	0,17±0,03
$r_{coarse}$ ( $\mu\text{m}$ )	2,19±0,58	2,00±0,49	2,23±0,43	2,25±0,49
$n_{0,c}/n_{0,f}$	1,02±1,66	0,87±1,24	0,97±1,09	0,87±1,30
$S_a$ (sr)	35±15	38±18	33±17	37±18
$PM_{10}$ ( $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ )	29,5±21,9	33,7±22,1	23,0±13,3	27,3±16,6

TABLE 3.2 – Principales propriétés intégrées des aérosols et concentration mesurée au niveau du sol (moyenne  $\pm$  écart-type).

de retenir que les plus grosses particules. Nous ne constatons toutefois pas de différence significative au niveau du rapport des amplitudes des modes de la distribution en tailles. Nous ne disposons pas des données in situ nécessaires afin de confirmer ce changement de taille des particules, comme le rapport  $PM_{2,5}/PM_{10}$  depuis 1999 qui pourrait permettre de mettre en évidence un changement dans la concentration des particules des modes fin et grossier.

La variation de l'épaisseur optique peut être provoquée par une variation de la concentration, mais aussi par une modification des propriétés optiques des particules. La diminution constatée à Lille pourrait être en partie expliquée par la diminution de l'absorption des particules.

La concentration totale en aérosols dépend de l'équilibre entre les sources et les puits de particules. À l'exception des particules transportées sur de longues distances, les aérosols Lillois sont essentiellement issus de l'émission locale (transport, chauffage, industries). La concentration en particules ( $PM_{10}$ ) mesurée, au niveau du sol, depuis les stations de qualité de l'air (Atmo-NPDC) pourrait être utilisée comme indicateur des sources, mais la base de données in situ ne débute qu'en 2006 et l'analyse statistique saisonnière, depuis cette année, ne permet de mettre en évidence aucune tendance saisonnière (et plus particulièrement, aucune diminution de concentration massique) pendant la saison estivale.

Les conditions météorologiques peuvent moduler l'efficacité des puits de particules. Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1 (partie 1.1.1.3 page 13), la durée de vie des aérosols est limitée, entre autre, par le dépôt humide. Ainsi, une modification des précipitations pourrait expliquer une variation d'épaisseur optique. De plus, les conditions de pression (et de vents induits) conditionnent le mouvement des masses d'air et donc la dispersion des particules. L'application du test de Mann-Kendall, aux différents paramètres météorologiques (hauteur et durée des précipitations, pression, vitesse et direction

de vent) ne permet cependant pas de constater une évolution sur le long-terme corrélée à la diminution d'épaisseur optique. Aucune tendance n'est non plus constatée quant à l'humidité relative qui joue un rôle majeur sur l'extinction des particules (voir partie 1.1.2.1). Cette grandeur n'est cependant représentative que des conditions d'humidité au niveau du sol. Si l'on se concentre sur la quantité d'eau précipitable issue des mesures photométriques (dans toute la colonne atmosphérique), nous constatons une diminution pendant l'été de l'ordre de 30 % depuis 1999. Le lien entre l'eau précipitable et l'humidité relative qui affecte l'extinction des particules n'est pas direct puisque la pression de vapeur saturante (qui dépend de la température) intervient dans leur relation. Cependant, puisqu'aucune tendance n'a été constatée concernant la température en été, nous pouvons supposer que l'humidité relative a effectivement diminué, en moyenne, sur la colonne atmosphérique.

La diminution de l'épaisseur optique estivale pourrait donc être expliquée par la diminution de l'absorption des particules d'une part, et d'autre part par la diminution de la quantité d'eau précipitable qui, pour des températures constantes, abaisserait les conditions d'humidité moyennes des particules sur la colonne atmosphérique et donc leur pouvoir d'extinction (Devara et al. (2001)).

Cette diminution de la quantité d'eau précipitable pourrait également être une source de la diminution du rayon effectif du mode grossier  $r_{eff}$ .

### 3.3.7.2 Tendances saisonnières

Les variations saisonnières de l'épaisseur optique observées à Lille sont cohérentes avec d'autres études menées sur des sites de type urbain/industriel. Zhang et al. (2012) constatent ainsi, grâce aux données photométriques du réseau AERONET correspondant aux principales villes de l'Est des États-Unis, des valeurs maximales de  $\tau$  durant l'été et minimales pendant l'hiver. Ce maximum de  $\tau$  peut s'expliquer par la combinaison de la durée de l'ensoleillement plus importante pendant cette saison qui favorise la production d'aérosols secondaires sulfatés (aérosols d'origine anthropique) par processus photo-chimiques (Bian et al. (2010)) associée à des conditions météorologiques favorisant l'accumulation des particules.

À Lille, le maximum d'épaisseur optique se produit en avril. Les variations saisonnières d'humidité relative et d'eau précipitable sont déphasées par rapport au cycle de  $\tau$  et ne permettent donc pas d'expliquer ce maximum. Nous constatons en revanche un minimum de précipitations pendant ce mois (30 mm/mois contre une moyenne globale de 60 mm/mois). De manière plus générale, les cycles de précipitations et d'épaisseur optique varient de manière opposée (Figures 3.7c et 3.16a). Le lessivage, en modulant la quantité totale de particules, influence donc la variation saisonnière d'épaisseur optique. Cela est confirmé par l'étude des  $PM_{10}$ , qui ne sont pas influencés par l'humidité relative, mais dont la variation saisonnière est similaire à celle de l'épaisseur optique (Figure 3.16b).

Le cycle saisonnier de  $\alpha$  présente son maximum (minimum) en été (hiver). Les par-

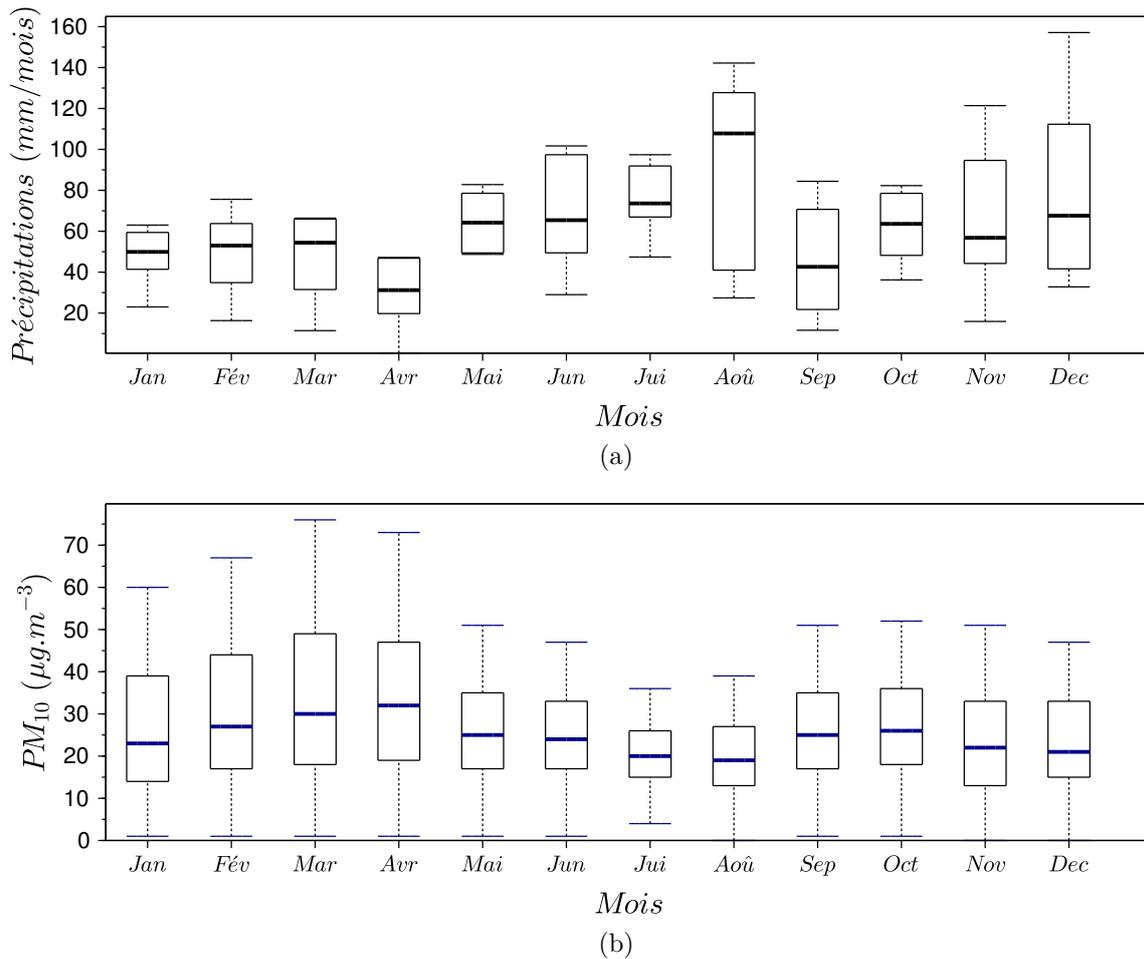


FIGURE 3.16 – Variations mensuelles de la hauteur des précipitations (a) et de la concentration en particules (de diamètre < 10 µm) mesurée au niveau du sol (b).

ticules sont donc de plus fine dimension lors de la saison estivale, ce qui coïncide avec le minimum d'humidité relative. Le changement saisonnier de taille des particules n'est cependant pas notable au niveau des paramètres caractérisant la distribution en taille et au contraire, la partie réelle de l'indice de réfraction voit son minimum apparaître en été, ce qui est plutôt significatif d'une humidification des particules dont l'indice est abaissé à des valeurs plus proches de celui de l'eau (1,33).

La Figure 3.17 met en évidence la dépendance entre les propriétés des aérosols et l'origine des masses d'air. Les plus fortes valeurs de  $\tau$  sont constatées lorsque les masses d'air sont originaires du Nord-Est et transportent les aérosols de pollution émis par les grandes villes du Benelux. À ces grandes valeurs d'épaisseur optique sont associées les plus

fortes valeurs de rapport lidar, qui, tout comme pour  $\tau$ , sont minimales pour les situations de vents d'Ouest qui apportent des masses d'air plus influencées par les aérosols marins. Pour le coefficient d'Angström, nous observons pour les masses d'air provenant du Nord-Est, des valeurs comprises entre 1,3 et 2,0. Ces dernières sont en revanche beaucoup plus dispersées pour les autres directions de vent.

À la différence de la rose des vents présentée précédemment (Figure 3.2), le nombre d'observations est ici maximal pour les masses d'air originaires du Nord-Est. Celles provenant de l'Ouest sont statistiquement plus nuageuses et donc moins représentées dans les inversions lidar et photométriques réalisées en l'absence de nuage.

### 3.3.7.3 Tendances journalières

Des variations journalières plus ou moins importantes sont constatées selon les propriétés des aérosols. Dans leurs articles, Smirnov et al. (2002) et Zhang et al. (2012) mettent en évidence, dans les villes de l'Est des États-Unis, une augmentation de l'épaisseur optique au cours de la journée de l'ordre de 15 % attribuée à la production photo-chimique d'aérosols secondaires sulfatés et à la croissance hygroscopique des particules.

Pour Lille, nous constatons un cycle journalier dont l'amplitude entre le minimum (vers 12h00) et les maximums (au lever et au coucher du Soleil) est de l'ordre de 20 %. Cette variation d'épaisseur optique est corrélée à la concentration massique en particules, présentée sur la Figure 3.18, qui met en évidence le pic de concentration matinal (08h00) suivi d'une diminution progressive jusqu'à 16h00 (-25 %), puis d'une nouvelle augmentation. Cette tendance journalière peut-être corrélée à celle du transport routier qui est une source émettrice majeure de particules de la région Lilloise (495 km d'autoroutes, de routes nationales et départementales desservent la Flandre Lilloise). La modification journalière de l'humidité relative, minimale vers 12h00 (-20 % par rapport au lever et au coucher du Soleil) pourrait également intervenir, en modifiant les propriétés d'extinction des particules, dans la tendance journalière observée de l'épaisseur optique. Nous constatons également un cycle journalier, d'amplitude importante (50 %), concernant la vitesse des vents (non représentée), dont le maximum apparaissant aux alentours de 12h00 (à environ 5 m.s<sup>-1</sup>) pourrait favoriser la dispersion des aérosols et ainsi provoquer une diminution de la concentration en particules ( $\tau$  et PM<sub>10</sub>).

Bien que d'amplitude relativement moins importante, le coefficient d'Angström suit également une tendance au cours de la journée. Il augmente, entre le lever et le coucher du Soleil, d'environ 8 %. Cette augmentation est associée à une augmentation du rapport lidar d'environ 20 %. Ces deux variations, positives, témoignent d'une diminution de la taille des particules au cours de la journée (néanmoins peu/pas confirmée lorsque l'on considère l'évolution de la distribution en taille).

À l'échelle journalière, nous observons une corrélation entre certaines propriétés intégrées des aérosols et l'émission des particules dont le cycle est directement influencé par

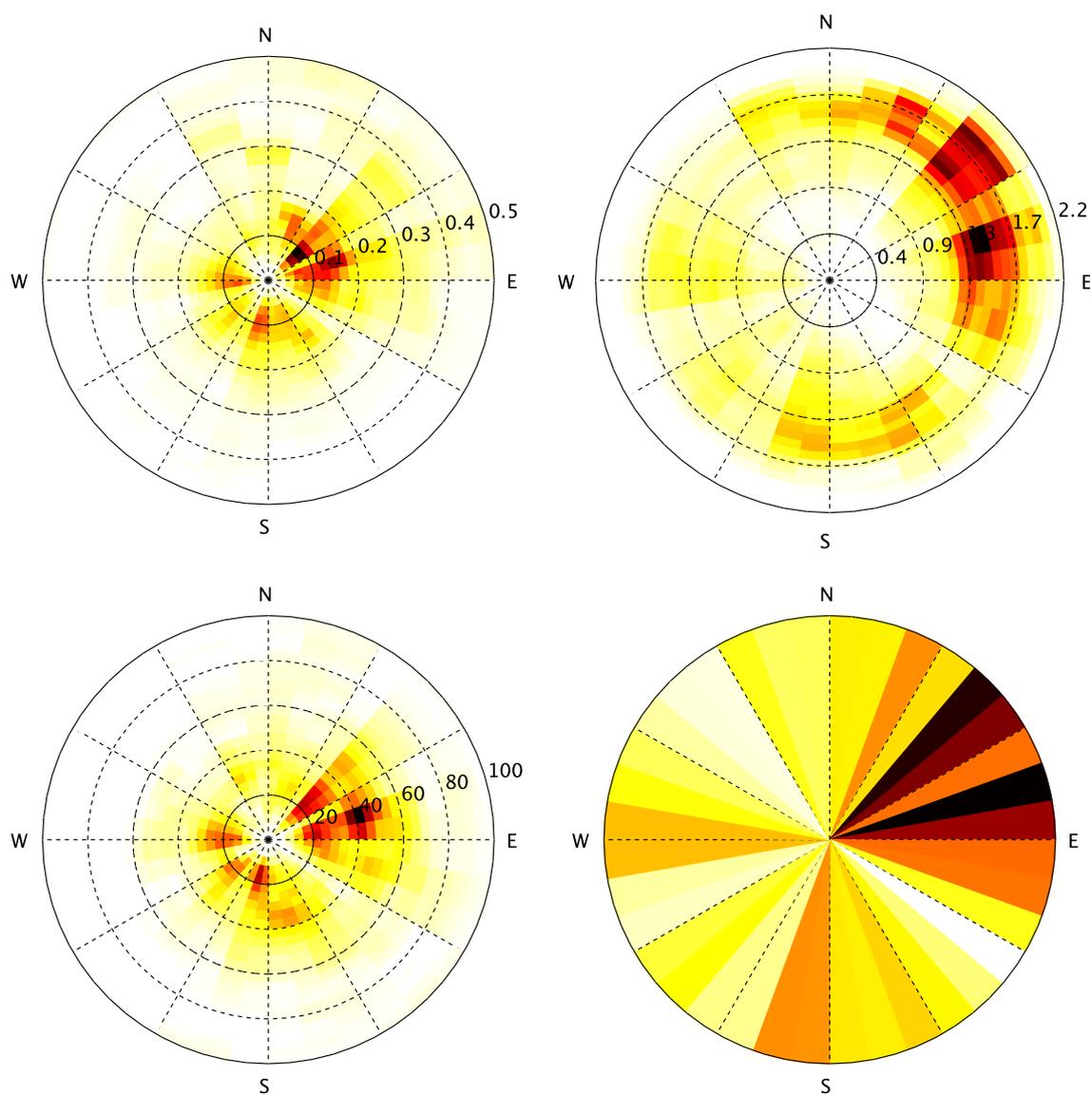
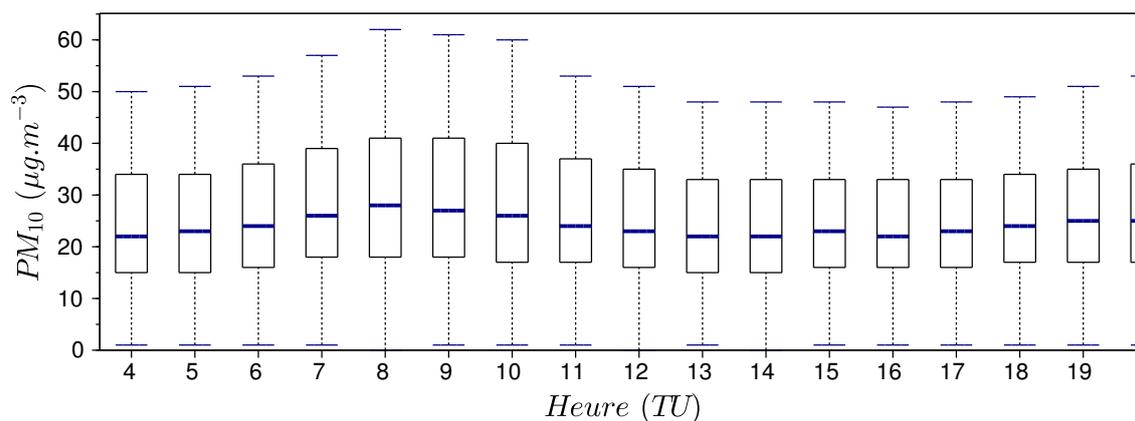


FIGURE 3.17 – De gauche à droite (et de haut en bas), les représentations polaires de l'épaisseur optique  $\tau$ , du coefficient d'Angström  $\alpha$ , du rapport lidar  $S_a$  et du nombre total d'observations en fonction de la direction du vent. L'intensité de la couleur est proportionnelle au nombre d'occurrences. Concernant le nombre total d'observations (en bas à droite), l'échelle de couleur s'étend du blanc au noir pour respectivement 0 et 2730 occurrences.

FIGURE 3.18 – Variation journalière des  $PM_{10}$ .

les activités humaines, de part la nature urbaine/industrielle du site d'observation. Ces dernières connaissent également des variations à l'échelle hebdomadaire. Afin de mettre en évidence pour cette échelle temporelle, une éventuelle corrélation similaire, nous nous intéressons dans le paragraphe suivant à la variation de certains paramètres aérosols en fonction des jours de la semaine.

### 3.3.7.4 Tendances hebdomadaires

Nous nous concentrons sur les variations d'épaisseur optique  $\tau$ , du coefficient d'Angström  $\alpha$  et de la concentration en particules  $PM_{10}$  représentés sur la Figure 3.19.

Un cycle de forte amplitude est observé quant à la concentration en particules mesurée au niveau du sol. Les valeurs de  $PM_{10}$  sont minimales du samedi au lundi, puis connaissent une forte augmentation mardi (environ 15 %) jusqu'à atteindre le maximum de concentration en milieu de semaine (jeudi), précédé d'une concentration plus faible le mercredi.

Concernant l'épaisseur optique  $\tau$ , un cycle similaire est observé pour une amplitude de 11%. Les valeurs minimales sont observées du samedi au lundi (et principalement du samedi au dimanche). Le maximum est de nouveau observé le jeudi avec une baisse préalable le mercredi.

Le coefficient d'Angström  $\alpha$  suit un cycle hebdomadaire moins marqué (d'amplitude de 6 %) mais en phase avec celui des précédents paramètres. Le week-end est ainsi la période où sont mesurées les plus faibles valeurs de  $\alpha$ . Ces dernières subissent une augmentation jusque mardi, puis une diminution mercredi (comme pour  $\tau$  et  $PM_{10}$ ). Le maximum précédemment observé le jeudi n'est, en revanche, pas constaté pour  $\alpha$ . La diminution de ce paramètre entre mardi et dimanche est cependant moins importante pour cette journée.

Ce cycle hebdomadaire est représentatif des sites urbains/industriels où les variations du trafic et des émissions industrielles (minimums le week-end) modulent l'émission des particules. Des cycles similaires (« week-end effect ») ont été observés à propos des concentrations en NOx et O<sub>3</sub> (issu de la photodissociation de NO<sub>2</sub>) en Californie (Marr et Harley (2001)) et au niveau des propriétés des aérosols à New-York City (Jin et al. (2005)) où des cycles similaires d'épaisseur optique ont pu être mis en évidence.

Le changement de concentration des particules émises au niveau ou à proximité du sol, observé à Lille, se retranscrit sur les propriétés moyennes des aérosols de la colonne totale atmosphérique. L'émission des particules affecte de manière directe la transmission atmosphérique. La taille moyenne des particules dans la colonne atmosphérique est également modifiée. Les cycles, en phase, de  $\tau$ ,  $PM_{10}$  et  $\alpha$  impliquent une émission de fines particules. La diminution des émissions, le week-end, provoque en effet une diminution de  $\alpha$ , significative d'une augmentation de la taille des particules. Ce changement de taille de particules (ou d'extinction) ne peut être expliqué par un effet d'humidité, de part l'échelle temporelle considérée (cycle hebdomadaire non naturel).

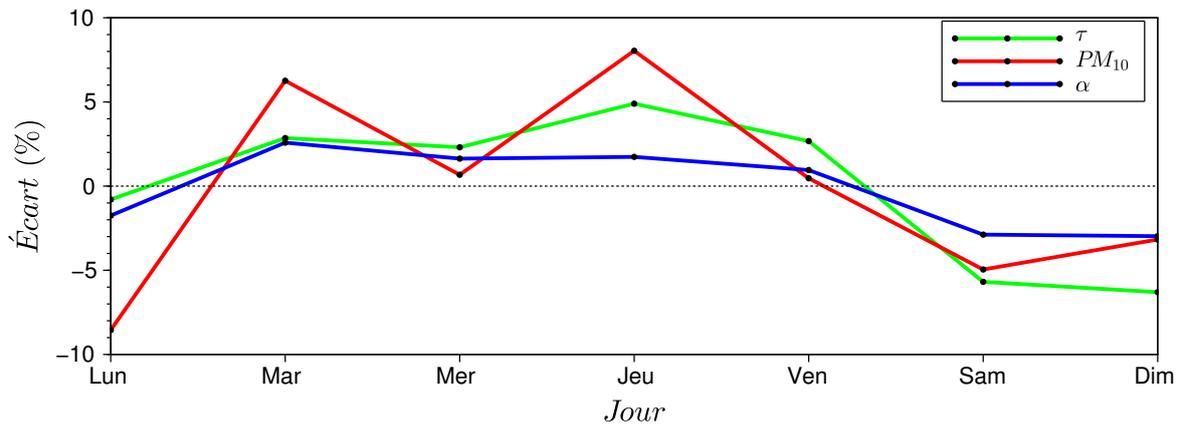
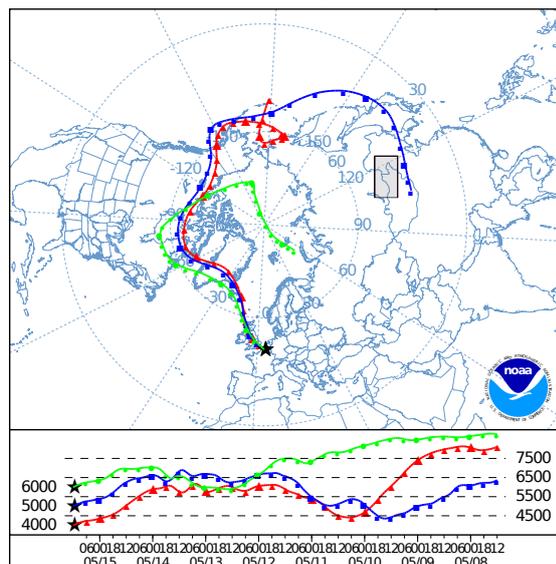


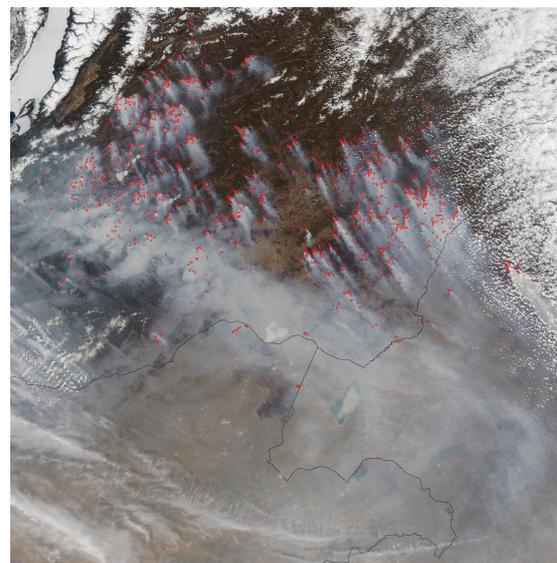
FIGURE 3.19 – Variation hebdomadaire des différences entre les paramètres aérosols (épaisseur optique  $\tau$ , concentration mesurée au niveau du sol  $PM_{10}$  et coefficient d'Angström  $\alpha$ ) et leur valeur moyenne respective.

### 3.3.7.5 Évènement : Mai 2003

Après analyse des séries temporelles des différents paramètres aérosols, et au regard des moyennes mensuelles/saisonnnières, le mois de mai 2003 se détache des autres mois. Au niveau de qualité 2 des inversions AERONET, la seule journée du 15 mai subsiste puisque le seuil de  $\tau \geq 0,4$  a été dépassé, pendant ce mois, pour cette seule journée. Les valeurs moyennes de  $\alpha$ ,  $r_{coarse}$ ,  $\varpi_0$ ,  $m_r$  et  $m_i$  respectives de 1,03, 1,17  $\mu\text{m}$ , 0,74, 1,54 et 0,056 sont bien différentes des médianes mensuelles, pour ce même mois, entre 1999 et



(a) Rétrotrajectoire (modèle HYSPLIT) d'une durée de 8 jours se terminant à Lille à des altitudes respectives de 4 km (rouge), 5 km (bleu) et 6 km (vert). La zone grisée correspond à la zone spatiale représentée dans l'image satellite ci-contre.



(b) Image satellite (Aqua MODIS, résolution 500 m) du Sud Ouest du lac Baïkal (Russie) le 7 mai 2003. Les feux actifs de forêt (points rouges) dégagent d'importantes quantités d'aérosols carbonés (traînes grisâtres) transportés vers l'Est au dessus de l'océan Pacifique. Source : Jeff Schmaltz, MODIS Rapid Response Team, NASA GSFC.

FIGURE 3.20 – Le 15 mai 2003, des aérosols fortement absorbants ont été observés au dessus de Lille.

2012 (1,49, 2,00  $\mu\text{m}$ , 0,94, 1,41 et 0,008). Ces paramètres sont indicatifs de la présence significative de grosses particules très absorbantes.

L'Europe a connu en 2003 un épisode caniculaire associé à une sécheresse importante. Cette dernière fut responsable d'importants feux de forêt dans le Sud de la France, en Espagne, au Portugal mais également en Russie où d'avril à mai, plus de 15 millions d'hectares de forêt ont été consumés (Damoah et al. (2004)), principalement à l'Est du pays. Tous ces incendies ont dégagé dans l'atmosphère d'importantes quantités d'aérosols carbonés, visibles sur l'image satellite présentée sur la Figure 3.20b. Les rétro-trajectoires effectuées pour Lille le 15 mai 2003 (Figure 3.20a), indiquent que les masses d'air à 4, 5 et 6 km d'altitude proviennent du Nord-Ouest. Au bout de 96 heures, les rétro-trajectoires des deux dernières masses d'air semblent diverger. Celle initialement à 6 km a sensiblement changé de latitude au cours de son transport et est, en fait, originaire du Pôle Nord. L'autre semble provenir de Mongolie, à proximité de la zone impliquée par les feux de forêts, où elle s'y serait chargée en aérosols issus de ces combustions. La modification des

propriétés moyennes des aérosols observés à Lille serait donc la signature de la présence de ces aérosols carbonés ayant traversé les océans Pacifique et Atlantique. Damoah et al. (2004) a constaté ce transport à longue distance avec l'utilisation d'un autre modèle Lagrangien de dispersion (FLEXPART) pour les feux du 10 au 31 mai et dont les aérosols issus ont pu être observés le 29 mai par le lidar Raman du réseau EARLINET situé à Leipzig, dans une couche située entre 5 km et 6 km d'altitude.

La détection de cet événement a été permise par la comparaison des différents paramètres aérosols à leurs valeurs saisonnières moyennes. Le prérequis est une observation à long-terme qui permet d'établir la signature moyenne des aérosols au niveau du site d'observation. La détection est, bien sûr, facilitée lorsque les événements considérés sont significatifs, puisqu'un plus grand nombre de paramètres (et une meilleure précision) sont accessibles. Les paramètres optiques retrouvés correspondent aux aérosols compris dans la colonne atmosphérique totale. En apportant une information sur la distribution verticale des aérosols, le lidar permet une meilleure caractérisation des particules.

## 3.4 Distribution verticale

La connaissance de la distribution verticale des particules est essentielle puisqu'elle conditionne le transport (et donc la durée de vie) des aérosols, la qualité de l'air et même leur impact radiatif.

### 3.4.1 Profils d'extinction et hauteurs de couches

Les paramètres suivants sont des produits de l'algorithme BASIC, développé au cours de ce travail.

Les profils d'extinction sont obtenus par la combinaison des profils de rétrodiffusion lidar et de l'épaisseur optique du photomètre selon la méthode détaillée dans le chapitre 2 (2.4.1.1 page 64), lorsqu'aucun nuage n'est détecté dans le champ des deux instruments.

La détection de hauteur de couches (couche limite, BL et sommet de couche, TL) présentée dans le chapitre 2 (2.3.4.3 page 61) est réalisée pour chacun des profils, de jour comme de nuit. Un filtre des données nuageuses est également appliqué, en particulier pour les nuages dont la base est inférieure à 4 km et qui sont donc compris dans la zone de recherche des hauteurs de couches. Le fort gradient vertical de signal rétrodiffusé, induit par la présence de nuages, fausse en effet la détection de couche limite.

#### 3.4.1.1 Tendances saisonnières

Les moyennes mensuelles des profils d'extinction et hauteurs de couche sont présentées sur la Figure 3.21. Les valeurs significatives du coefficient d'extinction sont situées, en

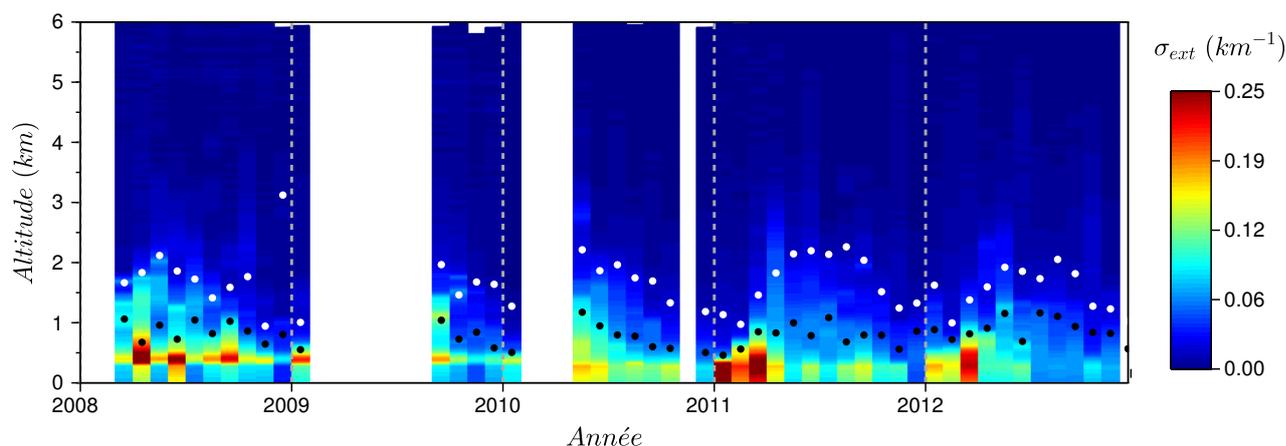


FIGURE 3.21 – Série temporelle des profils verticaux d’extinction mensuels. Les points blancs et noirs correspondent respectivement aux hauteurs de couche limite ( $BL$ ) et de sommet de couche ( $TL$ ).

général, au-dessous de 2 km. Les plus fortes valeurs sont mesurées au niveau du sol, excepté pour 2008 et 2009 où un maximum d’extinction est observé à 500 m. Cela peut être dû à une fonction de recouvrement non monotone provoquant alors une surestimation relative du signal autour cette altitude.

Si nous nous concentrons sur les données postérieures à avril 2010, une tendance saisonnière est identifiable. Les valeurs moyennes (et écart-types) des coefficients d’extinction au niveau du sol, de l’hiver au printemps, sont respectivement de  $0,13 \pm 0,10 \text{ km}^{-1}$ ,  $0,15 \pm 0,09 \text{ km}^{-1}$ ,  $0,10 \pm 0,05 \text{ km}^{-1}$  et  $0,10 \pm 0,06 \text{ km}^{-1}$ . La décroissance relativement uniforme (pour chaque saison) de l’extinction avec l’altitude fait que la même variation saisonnière à une altitude de 1 km est observée, pour des valeurs d’extinction plus faibles (se reporter au Tableau 3.3 pour les valeurs numériques et à la Figure 3.22 pour les profils verticaux par saison).

Si le maximum d’extinction au niveau du sol est atteint au printemps, comme pour l’épaisseur optique  $\tau$ , celui-ci se produit néanmoins un mois plus tôt, en avril, pour  $\sigma_{ext}(z_0) = 0,21 \pm 0,11 \text{ km}^{-1}$ . Nous observons en été et en automne, pour ce paramètre, des valeurs similaires, alors qu’une baisse d’épaisseur optique  $\tau$  de l’ordre de 25 % a lieu entre ces deux saisons. L’épaisseur optique et l’extinction au niveau du sol ne sont donc pas pleinement corrélées. Ceci s’explique par la variation de la distribution verticale des particules, qui peut être décrite, en partie, par les hauteurs de couches  $BL$  et  $TL$  estimées. De l’été à l’automne, la couche limite et le sommet de la couche diminuent respectivement d’environ 170 m et 280 m, soit près de 15% chacun. Bien qu’en quantité moins importante, le fait que les particules soient concentrées dans les plus basses couches, lors de l’automne, permet de conserver des niveaux d’extinction similaires à ceux retrouvés, au niveau du sol, lors de la saison estivale. C’est d’ailleurs pendant l’été que nous observons les plus

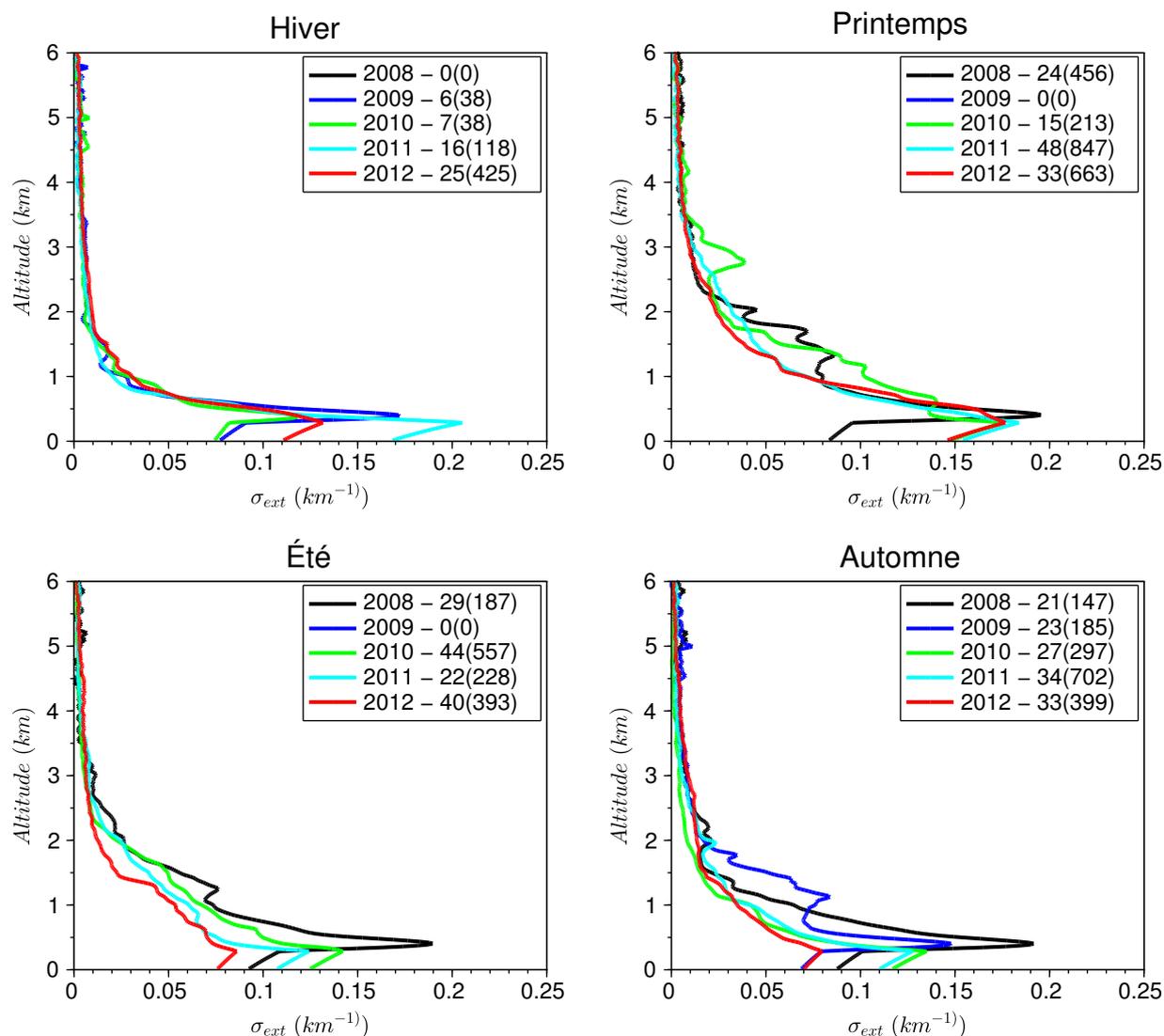


FIGURE 3.22 – Profils verticaux d’extinction saisonniers, par année. Pour chaque année, le nombre de jours différents coïncidant avec la saison spécifique, ainsi que le nombre total d’inversions pour cette même période (entre parenthèses). La couche d’aérosols entre 2,5 et 3 km observée au printemps 2010 est la signature des aérosols volcaniques issus de l’éruption de l’Eyjafjöll (voir partie 3.5.4 page 129).

grandes hauteurs de couche, le minimum étant atteint en hiver. Les températures plus élevées permettent, en effet, des mouvements de convection plus importants qui, à leur tour, vont pouvoir faciliter le développement de la couche limite. La différence de hauteur entre ces deux saisons est d'environ 300 m pour la couche limite et de 600 m pour le sommet de la couche soit des variations relatives de plus de 40 %.

	Hiver	Printemps	Été	Automne
$\sigma_{ext}(z_0)$ (km <sup>-1</sup> )	0,13±0,10	0,15±0,09	0,10±0,05	0,10±0,06
$\sigma_{ext}(1 \text{ km})$ (km <sup>-1</sup> )	0,03±0,02	0,08±0,07	0,06±0,05	0,04±0,04
$BL$ (m)	740±550	940±620	1050±660	880±590
$TL$ (m)	1480±1470	1840±1420	2110±1390	1830±1460

TABLE 3.3 – Moyennes saisonnières et écarts types des coefficients d'extinction au niveau du sol  $\sigma_{ext}(z_0)$  et à 1 km d'altitude et des hauteurs de couche limite ( $BL$ ) et sommet de couche ( $TL$ ).

### 3.4.1.2 Tendances journalières

Puisque les hauteurs de couches sont fortement influencées par la température, l'étude de leur évolution journalière est réalisée selon un découpage saisonnier, les variations diurnes de température étant en effet très contrastées en fonction des saisons.

La hauteur de couche limite  $BL$  présente des cycles plus ou moins marqués selon les saisons (Figure 3.23b). Entre 22h00 et 09h00, l'altitude de son sommet est relativement stable. En été et au printemps, une faible diminution est néanmoins observée pendant cette tranche horaire, corrélée avec de faibles diminutions de température. À partir de 09h00-10h00 et jusque 15h00 (maximum des cycles),  $BL$  augmente significativement, du printemps à l'automne, proportionnellement à l'augmentation de température de la saison considérée. En automne, l'augmentation de température de 5,4° induit une élévation de la couche limite de 170 m. Cette dernière est de plus de 560 m en été, lorsque la différence de température maximale observée au cours de la journée est en moyenne de 7,7 ° (Tableau 3.4). Les températures diminuent pour chacune des saisons à partir de 15h00, de manière relativement symétrique par rapport au réchauffement de la première partie de journée. Cela induit, pour la couche limite, un affaissement opposé à l'élévation qu'elle subit de 10h00 à 15h00. Pour l'hiver, on ne constate pas de net cycle diurne. La différence de température entre le jour et la nuit de 1,7° n'est pas suffisante pour mettre en place, de manière significative, les mouvements de convection responsables de l'expansion verticale de la couche limite.

Concernant la hauteur du sommet de couche  $TL$ , l'évolution diurne est similaire pour toutes les saisons, mais pour des amplitudes de cycle différentes (Figure 3.23c). Pendant la journée, à partir de 08h00-11h00 (selon les saisons), le sommet de la couche d'aérosols

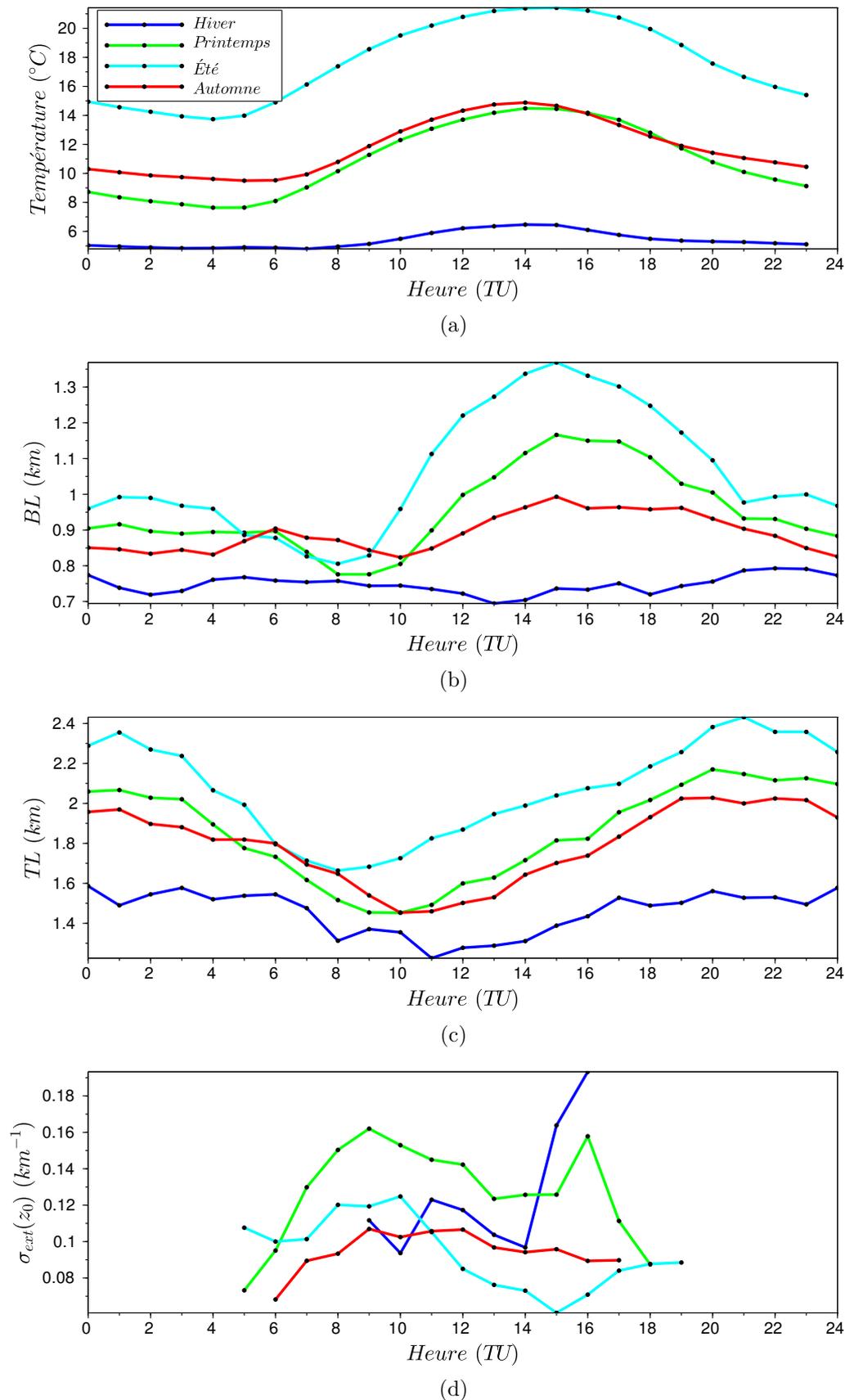


FIGURE 3.23 – Évolutions journalières de la température mesurée au niveau du sol (a), des hauteurs de couche limite (b), de sommet de couche (c) et du coefficient d'extinction au niveau du sol (d).

passé de sa valeur minimale (1200 m en hiver, 1650 m en été) à sa valeur maximale atteinte vers 20h00-21h00 (1600 m en hiver, 2400 m en été). Si l'ascension de la couche débute de manière similaire à celle de la couche limite, celle-ci n'est en revanche pas stoppée lorsque les températures commencent à chuter à partir de 15h00, mais se poursuit de manière relativement linéaire jusqu'à la tombée de la nuit. Le sommet de la couche redescend finalement, pendant la nuit, jusqu'à retrouver sa valeur minimale qui précède l'ascension de la couche.

L'évolution de  $BL$  a un impact sur l'extinction au niveau du sol  $\sigma_{ext}(z_0)$  en été et au printemps, saisons pour lesquelles le développement de la couche limite est le plus important (respectivement 560 m et 390 m). En début de matinée (05h00 à 09h00), alors que  $BL$  diminue d'environ 20 %,  $\sigma_{ext}(z_0)$  augmente de près de 20 % pendant l'été et fait plus que doubler au printemps. Par la suite, le développement de la couche limite correspond à une diminution du coefficient d'extinction de l'ordre de 25 %. Finalement, après 15h00 (affaïssement de la couche limite), nous constatons pendant l'été une nouvelle croissance du coefficient d'extinction. Cette dernière n'est pas observable pendant le printemps puisque  $\sigma_{ext}(z_0)$  diminue entre 16h00 et 18h00. Cependant, un des principaux facteurs d'évolution de l'extinction est la concentration en particules. Celle-ci n'est pas constante au cours de la journée et module donc également l'évolution diurne de l'extinction. Pour l'automne et le printemps, les variations journalières de  $BL$  moins importantes ne semblent pas influencer sur l'extinction au niveau du sol. Pendant l'hiver (couche limite très stable), nous constatons une importante augmentation de  $\sigma_{ext}(z_0)$  qui démontre certainement l'accumulation des particules au cours de la journée.

	Hiver	Printemps	Été	Automne
$\Delta T$ (°C)	1,7	6,8	7,7	5,4
$\Delta BL$ (m)	100	390	560	170
$\Delta TL$ (m)	360	720	770	570

TABLE 3.4 – Variations moyennes journalières de température et des hauteurs de couches  $BL$  et  $TL$  par saison.

### 3.4.2 Estimation de la concentration

Nous présentons dans le chapitre 2 ( 2.4.2 page 70) une méthode d'estimation de la concentration issue de l'exploitation des profils d'extinction et des paramètres AERONET tels que l'indice de réfraction  $m$  et la distribution en taille  $dV/d\ln r$ . D'autres méthodes, plus simples, permettent une estimation plus ou moins précise de cette concentration. Boyouk et al. (2010) présente dans son article la corrélation entre épaisseur optique  $\tau$  et  $PM_{2,5}$  à partir de données effectuées à Lille pendant près d'un mois. Cette corrélation ( $R^2=0,61$ ) est renforcée lorsque l'on prend en compte la hauteur de couche limite

( $R^2=0,73$ ). Avant de présenter la comparaison entre la concentration estimée au niveau du sol, à partir de la méthode basée sur la synergie des inversions lidar-photomètre, aux mesures in situ  $PM_{10}$  effectuées à proximité du site d'observation, nous débutons cette étude par une comparaison des différentes méthodes d'estimation de concentration. Ces méthodes, à la différence de celle présentée dans le chapitre 2, sont empiriques puisqu'elles utilisent des coefficients de régression déterminés a posteriori.

La corrélation entre épaisseur optique et concentration en particules au niveau du sol implique l'hypothèse d'une relation entre cette concentration et le contenu en particules dans l'ensemble de la colonne atmosphérique :

$$PM_{\tau} = \tau/k_1 \quad (3.2)$$

avec  $k_1 = 0,0043 \text{ m}^3 \cdot \mu\text{g}^{-1}$  (déterminé d'après la régression linéaire de  $PM_{10} = f(\tau)$ )

La prise en compte de l'altitude de la couche limite implique une hypothèse moins stricte puisqu'elle permet de tenir compte du fait que les particules sont concentrées (de manière homogène) dans une couche plus ou moins étendue verticalement :

$$PM_{\tau_{BL}} = \frac{\tau}{k_2 BL} \quad (3.3)$$

avec  $BL$  la hauteur de couche limite (m) et la constante  $k_2 = 4,75 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$  (issu de Boyouk et al. (2010)).

L'utilisation du lidar permet de prendre en compte la répartition des particules dans la couche limite et, par conséquent, de lever la dernière hypothèse de répartition homogène en son sein :

$$PM_{\sigma_{ext}} = \sigma_{ext}(z_0)/k_3 \quad (3.4)$$

avec  $k_3 = 0,0031 \text{ km}^{-1} \cdot \text{m}^3 \cdot \mu\text{g}^{-1}$  (déterminé d'après la régression linéaire de  $PM_{10} = f(\sigma_{ext})$ ).

Pour la méthode basée sur la synergie des inversions lidar/photomètre ( 2.4.2 page 70), nous avons contraint les distributions en taille bi-modales de manière à ce qu'elles soient toujours dominées par le mode fin. Dans les cas d'intrusions de grosses particules, nous supposons en effet que ces dernières sont transportées en altitude et n'affectent que peu les propriétés des aérosols au niveau du sol. Cela implique donc que la proportion entre mode fin et grossier au niveau du sol est moins variable que celle correspondant à la colonne atmosphérique. Pour le site de Lille, le nombre de cas associés à  $\tau > 0,4$  à 440 nm est relativement faible. Nous considérons donc, lorsque cette condition n'est pas vérifiée, un indice de réfraction standard  $m = 1,4 - 0,005i$ . Une masse volumique de  $\rho = 1,7$

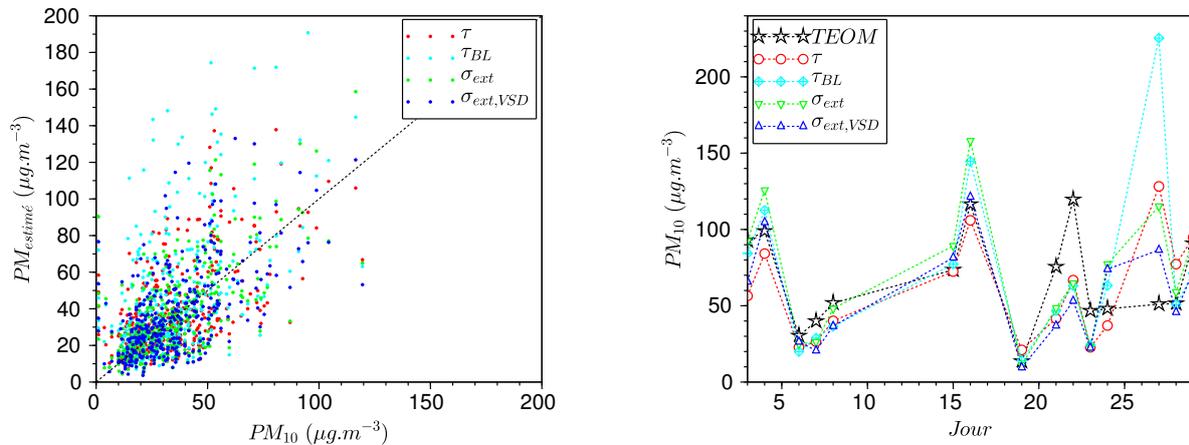
$\text{g.cm}^{-3}$ , typique des aérosols urbains/de pollution (Sloane (1984); Royer et al. (2011)), a été utilisée pour le calcul de la concentration massique.

Les résultats pour l'ensemble de la base de donnée sont présentés sur la Figure 3.24a et pour le mois de mars 2011 (série temporelle) sur la Figure 3.24b. Les coefficients de corrélation  $R^2$  et RMSE (Root Mean Square Error) sont reportés dans le Tableau 3.5. Les corrélations sont moins fortes que celles reportées par Boyouk et al. (2010), même pour la simple corrélation  $\tau$ - $PM$  qui ne fait intervenir aucun traitement de données. La base de données considérée ici est en fait beaucoup plus importante et aucune sélection de cas n'a préalablement été réalisée. La plus forte corrélation est celle obtenue avec l'utilisation seule du coefficient d'extinction au niveau du sol  $\sigma_{ext}(z_0)$ . Ainsi, la méthode non empirique ( $\sigma_{ext,VSD}$ ) ne donne pas, dans ce cas, la meilleure corrélation. Une explication possible est que les variations de la distribution en taille prises en compte par la méthode ne sont pas représentatives des propriétés des particules au niveau du sol. En effet, en considérant une distribution en taille unique (et un indice de réfraction constant, qui affecte cependant peu l'estimation de la concentration), le coefficient reliant la concentration à l'extinction devient constant et on se ramène à une équation du type 3.4 pour laquelle la plus forte corrélation est obtenue. Néanmoins, avec la méthode  $\sigma_{ext,VSD}$ , l'erreur sur l'estimation de la concentration est inférieure à  $5 \mu\text{g.m}^{-3}$  dans près de 30 % des cas. Si l'on considère une erreur maximale de  $25 \mu\text{g.m}^{-3}$ , le pourcentage de restitution atteint près de 80 %.

La série temporelle du mois de mars 2011 représentée sur la Figure 3.24b permet de mettre en évidence, pour des journées très contrastées d'un point de vue de la concentration en particules (16 mars :  $PM_{10} \approx 115 \mu\text{g.m}^{-3}$ , 19 mars :  $PM_{10} \approx 20 \mu\text{g.m}^{-3}$ ), les différences entre les méthodes d'estimation de concentration. Certaines méthodes surestiment, certains jours, la concentration mesurée par le TEOM lorsque d'autres la sous-estiment, et inversement pour d'autres journées. Le 27 mars, les 4 méthodes donnent lieu à des concentrations trop fortes. La méthode  $\tau_{BL}$  est responsable de la plus grande différence avec les mesures in situ. La couche limite de cette journée est très basse (environ 400 m) mais de fortes valeurs d'extinction sont encore mesurées jusqu'au sommet de la couche (1200 m). Le coefficient de relation  $k_3$  déterminé a posteriori sur l'ensemble des journées de la base de données (pour lesquelles la majorité des aérosols est souvent concentrée dans la couche limite) n'est donc pas adapté à cette journée particulière.

Sur la Figure 3.25, nous représentons l'estimation de la concentration en particules au niveau du sol (méthode  $\sigma_{ext,VSD}$ ), comparée aux mesures in situ pour différentes échelles temporelles.

Malgré les doutes préalablement émis quant à la fonction de recouvrement pour 2008 et 2009, l'estimation de la concentration est de bonne qualité pour ces premières années de mesures lidar. Les différences entre l'estimation lidar-photomètre et les mesures in situ ne



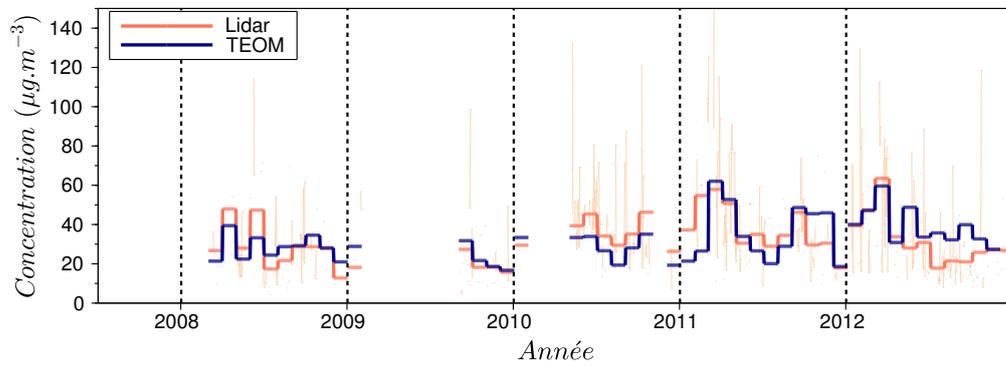
(a)  $PM_{10}$  mesurés par le TEOM (en abscisse) en fonction des concentrations estimées par les différentes méthodes.

(b) Série temporelle de l'estimation de la concentration au niveau du sol pour le mois de mars 2011.

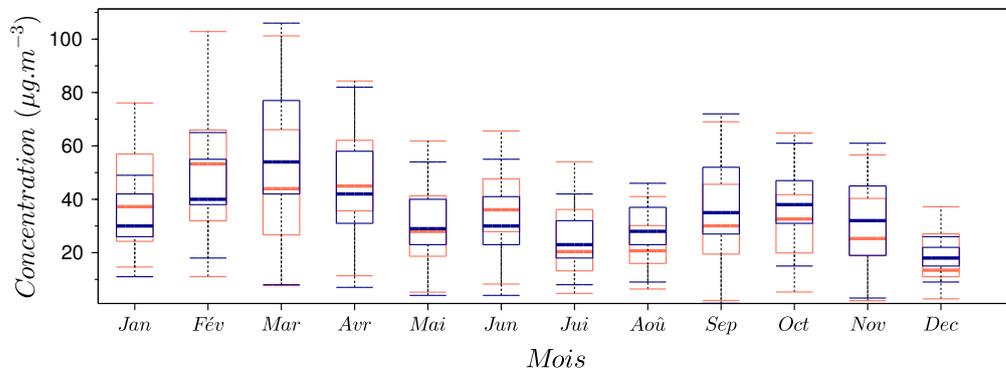
FIGURE 3.24 – Comparaison des méthodes d'estimation de concentration : corrélation avec l'épaisseur optique  $\tau$ , épaisseur optique corrigée de l'altitude de la couche limite  $\tau_{BL}$ , extinction au niveau du sol  $\sigma_{ext}$ , et extinction utilisant la distribution en taille AERONET  $\sigma_{ext,VSD}$ .

semblent pas dépendre de la saison considérée. Nous constatons ainsi en janvier et février 2011 une surestimation de la concentration estimée à partir du lidar-photomètre, alors que la correspondance est excellente l'année suivante pour ces mêmes mois. La variation saisonnière est bien reproduite : les maximums de concentration sont observés en mars ( $40-50 \mu g.m^{-3}$ ), et les deux minimums en juin et décembre ( $\approx 20 \mu g.m^{-3}$ ). La dynamique journalière est également relativement bien représentée : les plus faibles valeurs sont observées, en accord avec les mesures in situ, en début et fin de journée (05h00 et 18h00) et les pics d'émission vers 08h00 et 16h00.

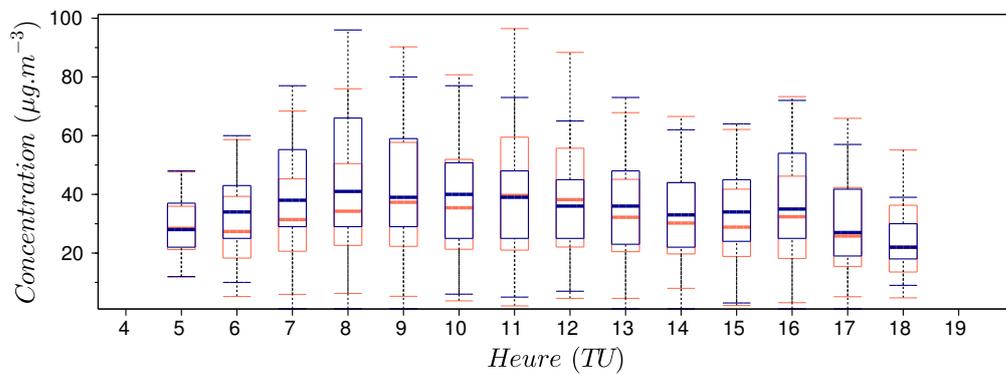
Les concentrations estimées à partir du lidar-photomètre ne sont ici représentées qu'au niveau du sol, pour les comparaisons avec les mesures in situ. L'estimation est, en fait, permise pour tout le profil d'extinction (sous certaines conditions) et permet, par exemple, d'évaluer de manière quantitative des événements aérosols issus du transport des masses d'air, chargées en particules, à plus ou moins longue distance.



(a) Série temporelle.



(b) Variation mensuelle.



(c) Variation horaire.

FIGURE 3.25 – Estimation de la concentration massique au niveau du sol à partir des inversions lidar-photomètre (orange) et mesures in situ (PM<sub>10</sub>) effectuées à l'aide d'un TEOM (bleu).

Méthode	R <sup>2</sup>	RMSE	$\Delta < 5$ $\mu g.m^{-3}$	$\Delta < 10$ $\mu g.m^{-3}$	$\Delta < 25$ $\mu g.m^{-3}$	$\Delta < 50$ $\mu g.m^{-3}$	$\Delta < 100$ $\mu g.m^{-3}$
$\tau$	0,33	20	27,9 %	49,6 %	74,3 %	90,2 %	97,1 %
$\tau_{BL}$	0,32	33	23,3 %	46,2 %	69,5 %	80,6 %	89,4 %
$\sigma_{ext}$	0,51	17	29,4 %	54,4 %	80,4 %	92,0 %	98,9 %
$\sigma_{ext,VSD}$	0,39	20	29,0 %	50,1 %	78,8 %	90,0 %	96,8 %

TABLE 3.5 – Paramètres statistiques et erreurs sur l’estimation de la concentration au niveau du sol à partir des différentes méthodes. L’effectif est de 377 moyennes journalières.

## 3.5 Évènements

La notion d’évènements fait référence, en sciences, au changement d’état ou de contexte, lié à une modification substantielle de la valeur d’un paramètre mesurable, dans un intervalle de temps bref à l’échelle de l’expérience. Du point de vue de la qualité de l’air, nous parlons d’évènements (de pollution), dans ce travail, pour les cas associés à de fortes valeurs de concentration en particules mesurées au niveau du sol. Les évènements aérosols ne se limitent cependant pas à ce niveau. L’intrusion de particules de nature différente de celle des aérosols locaux, éventuellement transportés en altitude, répond également à la définition précédente. Si l’intérêt sanitaire du premier type d’évènement est évident, la présence de couches d’aérosols en altitude peut également constituer un risque, notamment dans le domaine de l’aviation. L’observation de ce genre d’évènements permet, de plus, de caractériser des aérosols « âgés » et ainsi d’étudier les effets du transport sur leurs propriétés optiques.

### 3.5.1 Quantification des évènements

#### 3.5.1.1 Évènements de pollution particulaire et qualité de l’air

La concentration en particules au niveau du sol affecte directement la qualité de l’air. Deux seuils de concentration moyenne journalière, définissent, selon la législation française, les limites au delà desquelles les procédures d’information à la population d’une part et d’alerte d’autre part sont respectivement déclenchées.

- Seuil de recommandation et d’information (SRI) : un niveau de concentration de substances polluantes dans l’atmosphère au-delà duquel la concentration en polluants a des effets limités et transitoires sur la santé de catégories de la population particulièrement sensibles en cas d’exposition de courte durée.
- Seuil d’alerte (SA) : un niveau de concentration de substances polluantes dans l’atmosphère au-delà duquel une exposition de courte durée présente un risque pour la santé humaine ou de dégradation de l’environnement à partir duquel des mesures d’urgence doivent être prises.

Tout d'abord fixés à  $80 \mu\text{g.m}^{-3}$  (SRI) et  $125 \mu\text{g.m}^{-3}$  (SA), ces valeurs ont récemment été revues à la baisse pour des valeurs respectives de  $50 \mu\text{g.m}^{-3}$  et  $80 \mu\text{g.m}^{-3}$  (de la Santé Publique (2012)). Selon ces nouvelles normes, nous recensons entre 2008 et 2012, 79 évènements de pollution (pour un total de 166 jours) pour lesquels la concentration en  $\text{PM}_{10}$  est supérieure au seuil de recommandation et d'information. Pour le seuil d'alerte, nous comptabilisons sur cette même période 14 évènements de pollution (21 jours) (Figure 3.26 et Tableau 3.6). L'objectif annuel de qualité de l'air de  $25 \mu\text{g.m}^{-3}$  n'est pas, non plus, respecté. Nous observons, au contraire, une augmentation de cette moyenne passant de  $26,5 \mu\text{g.m}^{-3}$  en 2008 à  $30 \mu\text{g.m}^{-3}$  en 2012.

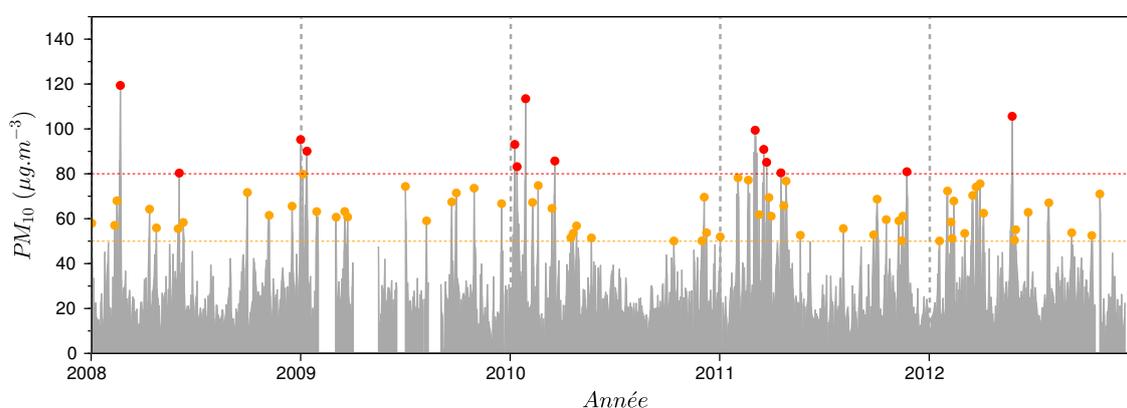


FIGURE 3.26 – Moyennes journalières de  $\text{PM}_{10}$  mesurées à proximité de l'observatoire de Lille. Les points oranges et rouges représentent respectivement les maximums de concentration des évènements dont les niveaux de  $\text{PM}_{10}$  sont supérieurs au seuil de recommandation et d'information (SRI,  $50 \mu\text{g.m}^{-3}$ ) et au seuil d'alerte (SA,  $80 \mu\text{g.m}^{-3}$ ).

	2008	2009	2010	2011	2012
Évènements (Jours) > SRI	13 (24)	12 (24)	15 (28)	21 (53)	18 (37)
Évènements (Jours) > SA	3 (4)	1 (2)	4 (4)	5 (10)	1 (1)
Moyenne annuelle ( $\mu\text{g.m}^{-3}$ )	26,5	27,5	27,5	29,5	30

TABLE 3.6 – Évènements (et nombre de jours) pour lesquels les moyennes journalières de  $\text{PM}_{10}$  sont supérieures aux seuils SRI et SA ainsi que leur moyenne annuelle. L'objectif de qualité de l'air annuel est de  $25 \mu\text{g.m}^{-3}$ .

### 3.5.1.2 Évènements aérosols observés par télédétection

La détection d'évènements aérosols par télédétection est permise, d'une part, depuis l'interprétation des données photométriques, lorsqu'un changement des propriétés standards, des aérosols, est observé. Les aérosols lillois sont en général constitués de fines particules peu absorbantes. L'intrusion de grosses particules, et/ou absorbantes produit alors un contraste avec les aérosols locaux et peut ainsi être détectée, plus ou moins facilement, selon l'importance de l'évènement et la sensibilité des instruments. L'information verticale apportée par le lidar permet, d'autre part, de mettre en évidence les couches d'aérosols inhabituelles dans la troposphère libre. Les rétro-trajectoires des masses d'air aux altitudes considérées peuvent alors être réalisées afin d'aider à identifier la nature des aérosols qu'elles contiennent.

Une statistique des évènements aérosols sur une base de données aussi conséquente implique une première détection automatisée. Celle-ci est basée sur le changement des propriétés intégrées verticalement des aérosols, qui varie selon la nature des particules présentes lors de l'évènement.

Le coefficient d'Angström moyen lillois est d'environ 1,21. Une baisse de ce paramètre révèle la présence de particules de plus grande dimension (poussières désertiques, volcaniques). Un simple seuillage ne peut cependant pas être effectué sur ce paramètre qui connaît une variation saisonnière importante ( $\approx 30\%$ ). Nous comparons donc chacune des mesures  $\alpha$  à la valeur moyenne mensuelle correspondante  $\alpha_m$  tout en considérant la variabilité naturelle du paramètre. L'évènement passe la première étape de sélection si  $\alpha \leq \overline{\alpha_m} - 1,5\sigma_{\alpha_m}$  où  $\sigma_{\alpha_m}$  représente l'écart-type du coefficient d'Angström pour le mois considéré.

Une augmentation du paramètre de « non sphéricité », habituellement très proche de 0 % à Lille<sup>2</sup>, est indicateur de la présence de particules non sphériques (poussières désertiques, volcaniques). Nous identifions, à partir de ce paramètre, tous les cas associés à une sphéricité inférieure à 70 %.

L'intrusion de particules absorbantes (aérosols de combustion de biomasse) peut être mise en évidence, lorsque  $\tau \geq 0,4$  à 440 nm, depuis l'étude de l'albédo de diffusion simple  $\varpi_0$  à 532 nm. Nous conservons les cas pour lesquels  $\varpi_0 \leq 0,9$ .

La seconde étape de validation des évènements pré-détectés consiste en une vérification visuelle des profils lidar correspondants. L'évènement est validé lorsqu'une couche d'aérosols est, par exemple, identifiable en dehors de la couche limite. Cette vérification est nécessaire puisque le premier filtre de sélection, basé sur le coefficient d'Angström, donne lieu à environ 50 % de fausses détections résultantes d'une contamination nuageuse résiduelle (en général, provenant de cirrus « fins »), même au niveau 2 de qualité

---

2. Les aérosols urbains sont qualifiés de sphériques au vue du rapport entre la longueur d'onde utilisée et la taille des particules.

des données AERONET (version 2). Un algorithme de détection des couches aérosols a été développé au cours de ce travail de thèse, et permettra, par la suite, une détection automatique des couches d'aérosols dans la troposphère libre.

Pour chacune des couches détectées, la rétro-trajectoire nous a permis d'identifier l'origine des aérosols ainsi que leur nature, en considérant le contexte spatio-temporel. Les résultats sont reportés dans le Tableau 3.7 page suivante.

De 2008 à 2013, nous avons observé 7 événements aérosols impliquant des particules issues de feux de biomasse. La majorité d'entre eux proviennent du Canada pendant la saison des feux de forêt (généralement d'avril à septembre), lors de laquelle, plus de 8000 feux détruisent plus de 2 millions d'hectares de végétation, en moyenne, chaque année. La circulation atmosphérique générale dominée par les vents d'Ouest, à cette latitude, permet le transport des masses d'air chargées en aérosols issus de ces combustions au dessus de l'océan Atlantique, jusqu'en Europe (Fiebig et al. (2002); Wandinger et al. (2002)).

Lorsque les vents proviennent du Sud, il arrive que des poussières désertiques sahariennes soient observées à Lille. On comptabilise ainsi 9 événements de ce type depuis 2008. Pour certains d'entre eux, la couche d'aérosols désertique est détectée, selon les conditions d'observations, pendant plusieurs jours consécutifs.

Finalement, des événements extrêmes, tels que des éruptions volcaniques peuvent émettre ponctuellement de grandes quantités d'aérosols ensuite transportés au gré des courants atmosphériques. Ce fut le cas de l'éruption du volcan islandais Eyjafjöll (ou Eyjafjallajökull, du nom de la calotte glaciaire qui le recouvre) ayant débutée en avril 2010 et dont les cendres, transportées vers l'Est et observables pendant près d'un mois à Lille, ont provoqué la paralysie de nombreux aéroports européens.

La combinaison du lidar et du photomètre permet une caractérisation plus fine des aérosols. Nous présentons dans les sous-sections suivantes les résultats de cette synergie pour 3 événements majeurs impliquant des aérosols issus de feux de biomasse, des poussières désertiques ainsi que les cendres issues de l'éruption du volcan islandais et dont les résultats ont fait l'objet de deux articles (Mortier et al. (2013); Derimian et al. (2012)).

### 3.5.2 Feux de biomasse (Juin-Juillet 2013)

Parmi les 8 événements impliquant des aérosols issus de feux de biomasse observés à Lille, le plus important est le dernier en date, de juin-juillet 2013. Les aérosols correspondants ont été détectés de manière discontinue (selon les conditions atmosphériques) du 25 juin au 17 juillet 2013 dans des couches d'épaisseurs (de 500 m à 4000 m) et d'altitudes (de 1 km à 9 km) variées. Le maximum de rétrodiffusion associé à cet événement est observé le 26 juin (voir Figure 3.27) dans une fine couche ( $\approx 500$  m d'épaisseur) très dense, à environ 3000 m d'altitude. Celle-ci est visible le matin, de 03h00 à 11h00, avant

	2008	2010	2011	2012	2013
Feux de biomasse	10/04 (C) 15/04 (C)	04/07 (C)	27/04 (B) 21/05 (C) 08/06 (C)	23/07 (C)	25/06-17/07 (C)
Poussières désertiques	04-05/05 (S) 25/07 (S) 13/10 (S)	10/07 (S)	07-11/04 (S)	08/02 (S) 22/03-06/04 (S)	
Cendres volcaniques		15/04-20/05 (I)			

TABLE 3.7 – Évènements aérosols observés à Lille à l’aide du lidar et du photomètre. L’origine des couches d’aérosols a été déterminée à l’aide des rétro-trajectoires. Les lettres C, B, S et I sont respectivement utilisées pour Canada, Belgique, Sahara et Islande.

l’arrivée de nuages bas perturbant l’observation. Nous observons également, au-dessus cette dernière, une couche moins dense, mais beaucoup plus étendue verticalement (de 4000 m à 9000 m). Cette couche est de nouveau observée aux alentours de 16h00, grâce à une éclaircie temporaire, à des altitudes inférieures (entre 3000 m et 7000 m).

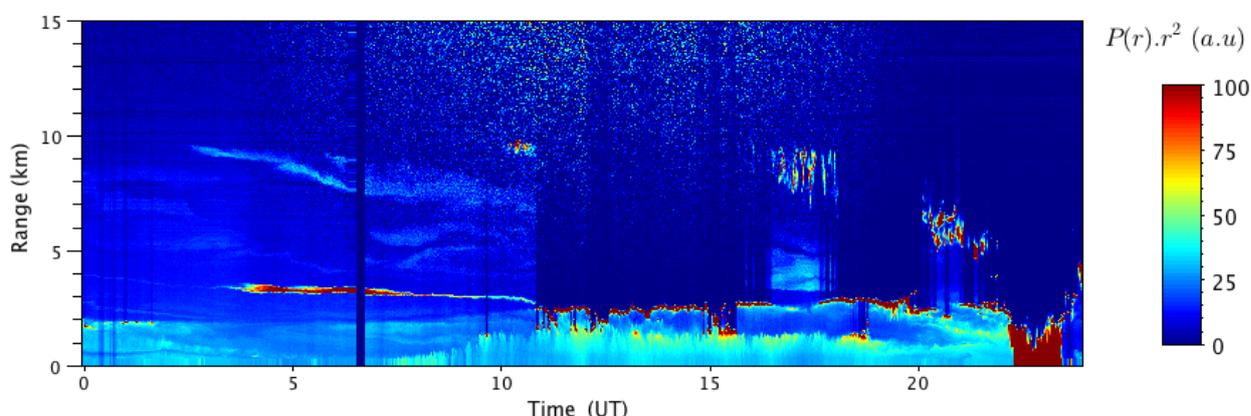


FIGURE 3.27 – Profils de rétrodiffusion à Lille le 26 juin 2013 : détection d’un panache d’aérosols issus de feux de combustion de biomasse au Canada.

L’épaisseur optique aérosol,  $\tau$ , mesurée le matin, par temps clair (avant l’arrivée des nuages) est de l’ordre de 0,50 (entre 07h00 et 08h00) à 532 nm. Le seuil minimum permettant l’inversion des données photométriques est donc atteint et nous disposons ainsi de tous les produits AERONET possibles comme la distribution en taille, l’indice de

réfraction et l'albédo de diffusion simple.

Le coefficient d'Angström,  $\alpha$ , et le paramètre de non sphéricité, valant respectivement 1,80 et 1 %, indiquent la présence de fines particules que l'on peut qualifier de sphériques. Cela est confirmé par la distribution en taille, dont les rayons effectifs des modes sont respectivement  $r_{fine} = 0,17 \pm 0,47 \mu\text{m}$  et  $r_{coarse} = 2,21 \pm 0,81 \mu\text{m}$ , largement dominée par le mode fin. L'amplitude de ce dernier est, en effet, 10 fois supérieure à celle du mode grossier. L'indice de réfraction  $m = 1,47 - 0,01$  diffère peu de l'indice standard Lillois (Tableau 3.2 page 100), tout comme l'albédo de diffusion simple,  $\varpi_0 = 0,94$ . Ces deux paramètres ne sont donc pas indicatifs de la présence de particules particulièrement absorbantes.

Les propriétés, seules, du photomètre ne permettent pas d'identifier, dans ce cas, la nature des particules considérées.

La connaissance de la distribution verticale des couches, issue des profils de rétrodiffusion lidar, permet de réaliser les rétro-trajectoires précises des masses d'air contenant les particules considérées. Le cas échéant, l'origine de deux masses d'air verticalement distantes de quelques centaines de mètres (erreur minimale commise si l'on ne dispose pas des profils verticaux) peut conduire à d'importants écarts lorsque l'on considère un transport de plusieurs jours. Les rétro-trajectoires des journées majeures de cet évènement (26 juin, 09, 10 et 13 juillet) sont présentées sur la Figure 3.28, à côté des profils d'extinction. Pour chacune des couches détectées en dehors de la couche limite, les rétro-trajectoires, d'une durée de 4 jours indiquent une origine canadienne, à proximité des zones soumises à d'importants feux de forêts. Les profils d'extinction sont obtenus par l'inversion de Klett contrainte par l'épaisseur optique photométrique (module de BASIC). Les particules carbonées issues de la combustion de biomasse et les aérosols de pollution disposant d'un rapport lidar similaire (Catrall et al. (2005)), l'erreur commise sur l'inversion, en supposant le rapport lidar constant verticalement, ne doit pas être significative.

La distribution en taille et l'indice de réfraction inversés par le photomètre sont utilisés afin d'estimer la concentration en aérosols dans les couches détectées, en fonction des profils d'extinction.

La concentration en nombre maximale (le 26 juin à 05h30, à 3,3 km d'altitude) est estimée entre 11000 à 14000 particules.cm<sup>-3</sup>, au regard de la précision sur l'extinction découlant de l'incertitude sur la fonction de recouvrement et de l'erreur statistique induite par le bruit aléatoire. Wandinger et al. (2002) présentent, dans leur article, des niveaux de concentration en nombre correspondant à un évènement d'aérosols de feux de biomasse provenant également du Canada, observé durant la campagne de mesures LACE (Lindenberg Aerosol Characterization Experiment, Allemagne, Juillet-Août 1998). Associées à des valeurs d'extinction bien plus faibles (0,02 km<sup>-1</sup>), les concentrations estimées depuis l'inversion des données lidar multi-spectrales sont comprises entre 400 et 1200 particules.cm<sup>-3</sup> (selon les algorithmes d'inversion utilisés) et sont cohérentes avec les me-

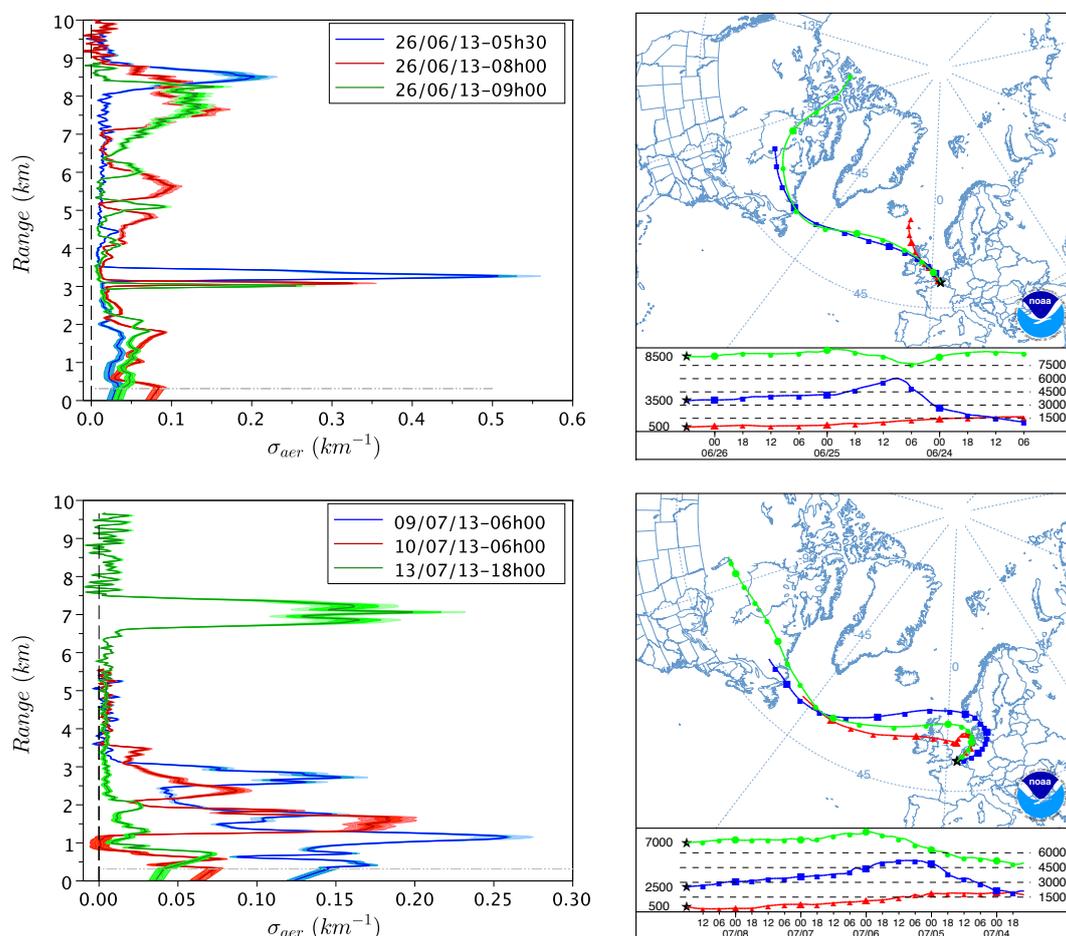


FIGURE 3.28 – Profils d’extinction  $\sigma_{aer}(z)$  à 532 nm pour les journées majeures de l’évènement d’aérosols de feux de biomasse (à gauche) et les rétro-trajectoires associées (à droite). Les zones de couleur foncée et claire, sur les profils d’extinction, correspondent respectivement aux erreurs dues aux incertitudes sur la fonction de recouvrement et au bruit aléatoire instrumental.

sure in situ effectuées simultanément au sein du panache ( $750 \text{ particules.cm}^{-3}$ ). Pour des niveaux d'extinction comparables, obtenus par exemple le 10 juillet à environ 3 km d'altitude, nous estimons à  $500 \text{ particules.cm}^{-3}$  la concentration en nombre correspondante, ce qui est en accord avec les précédentes estimations.

Avec une masse volumique de  $1,5 \text{ g.cm}^{-3}$  (Hoffer et al. (2006)), proche des aérosols de pollution, la concentration massique maximale en particules, lors de cet évènement, est estimée à  $155 \pm 15 \text{ } \mu\text{g.m}^{-3}$  (26 juin, 05h30). L'épaisseur optique maximale associée aux couches chargées en aérosols provenant du Canada est estimée, depuis les profils d'extinction, à  $\tau_{bb} = 0,28$ , le 26 juin aux environs de 08h00, soit 56 % de l'épaisseur optique totale de la colonne atmosphérique. On estime alors, pour ce maximum, à  $90 \text{ mg.m}^{-2}$  la concentration intégrée en aérosols issus de la combustion de feux de biomasse.

Malgré l'importance de l'évènement, la signature de ce dernier est peu marquée au niveau des propriétés aérosols intégrées verticalement. Les aérosols carbonés issus des feux de biomasse peuvent, en fait, se présenter sous forme de carbone-suie ou de carbone organique qui ont des propriétés optiques et micro-physiques très différentes. Si le premier type d'aérosols correspond plutôt à des particules non-sphériques et principalement absorbantes, le second est en revanche associé à des particules qualifiées de sphériques et principalement diffusantes. Une fraction de carbone-suie de 35 % implique une dépolarisation de l'ordre de 10 % (Fiebig et al. (2002)), ce qui est significatif de la présence de particules non-sphériques. Au regard du taux de sphéricité de 99 % et de la faible absorption ( $\varpi_0 = 0,94$ ), nous supposons que la fraction de carbone-suie dans les aérosols de feux de biomasse observés lors de cet évènement est relativement faible. Lors de leur transport, les processus de mélange et d'humidification ont lieu et modulent les propriétés micro-physiques et optiques des particules. L'absorption importante des aérosols carbonés observés à proximité des sources diminue rapidement avec le transport. De même, une augmentation de la taille des particules (diminution du coefficient d'Angström), en fonction de l'éloignement des sources, a récemment été mise en évidence, depuis les observations satellite (Waquet et al. (2013), soumis).

### 3.5.3 Poussières désertiques (Avril 2011)

Nous présentons, dans cette section, les principaux résultats correspondants à l'observation d'un panache de poussières désertiques le 07 avril 2011 (observé jusqu'au 11 avril, en moindre quantité). Les profils de rétrodiffusion relatifs à cette journée sont présentés sur la Figure 3.27. Une couche d'aérosols est clairement identifiable dans la troposphère libre, le matin, entre 3 km et 6 km d'altitude.

L'arrivée des poussières est également nettement identifiable à partir des données photométriques. Si les aérosols désertiques sont observables sur les profils de rétrodiffusion dès une 01h00, à 4 km d'altitude, l'arrivée du panache principal d'aérosols à 06h30 offre tout de même un bon contraste entre les premières mesures photométriques, à 06h15,

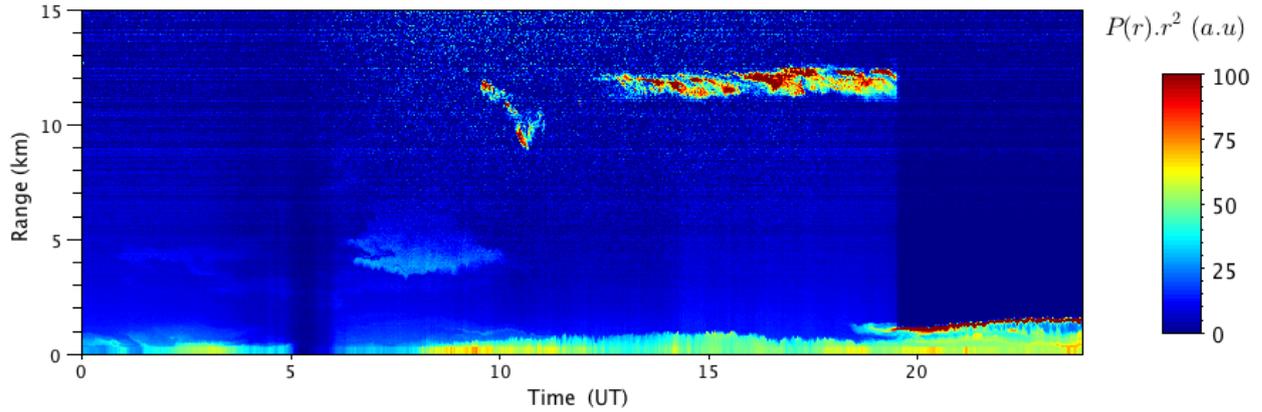


FIGURE 3.29 – Profils de rétrodiffusion à Lille le 07 avril 2011 : détection d’un panache de poussières désertiques originaires du Sahara.

et celles coïncidant au maximum de l’évènement, à 08h15. L’épaisseur optique totale  $\tau$  passe ainsi de 0,12 à 0,61 lorsque le coefficient d’Angström chute de 0,75 à près de 0,28, ce qui témoigne de l’arrivée de grosses particules. La distribution en taille est largement dominée par le mode grossier, dont l’amplitude est 7 fois supérieure à celle du mode fin. Les rayons effectifs (et déviations standards) des deux modes valent respectivement  $r_{fine} = 0,13 \pm 0,68 \mu\text{m}$  et  $r_{coarse} = 1,33 \pm 0,54 \mu\text{m}$ . Le mode grossier n’est donc pas constitué de particules de dimension plus importante que d’ordinaire, puisque la moyenne saisonnière correspondante est de  $2,00 \pm 0,49 \mu\text{m}$  (Tableau 3.2 page 100). La modification vient ici du rapport d’amplitude des deux modes (inférieur à 0,90 pour cette saison). Une climatologie de la distribution en taille inversée par AERONET pour un site situé à proximité des sources de poussières désertiques (Tamanrasset, Sud de l’Algérie) indique, à titre comparaison, un mode grossier caractérisé par un rayon effectif de  $r_{coarse} = 1,74 \pm 0,24 \mu\text{m}$  et dont l’amplitude est également 7 fois supérieure à celle du mode fin. Aucune anomalie n’est observée à propos de l’albédo de diffusion simple  $\varpi_0$  qui prend une valeur standard de 0,93 à 532 nm. L’indice de réfraction est de  $m = 1,42 - 0,003i$ . Sa partie imaginaire est légèrement inférieure à la moyenne saisonnière. La sphéricité, inférieure à 3 %, indique clairement la présence de particules non sphériques. Tous ces paramètres intégrés verticalement sont cohérents avec l’intrusion de poussières désertiques.

Les rétro-trajectoires (non représentées ici) effectuées aux altitudes du panache confirment bien la provenance Saharienne de la masse d’air considérée. L’évènement est par ailleurs suffisamment important pour être nettement visible sur l’image satellite MODIS reportée sur la Figure (3.30). Le panache de poussières, d’abord transporté vers le Nord-Ouest a brusquement changé de direction ( $90^\circ$ ) à une latitude d’environ  $49,5^\circ\text{N}$  avant de poursuivre sa course et de recouvrir le Nord de la France.

Nous présentons, sur la Figure 3.30, les profils d'extinction correspondants au passage du panache principal de poussières. Le maximum d'extinction, associé au profil accumulé sur 20 minutes autour de 07h00 est d'environ  $0,14 \pm 0,03 \text{ km}^{-1}$  à 4000 m d'altitude. L'épaisseur optique de la couche  $\tau_{dust}$  est d'environ 0,24 à 532 nm, ce qui représente près de 50 % de l'épaisseur optique totale de la colonne. L'inversion associée au maximum d'épaisseur optique (à 08h30) n'est pas ici représentée puisque le sommet de la couche, alors mal défini et situé dans une zone où le signal est fortement bruité, rend complexe l'initialisation de l'inversion.

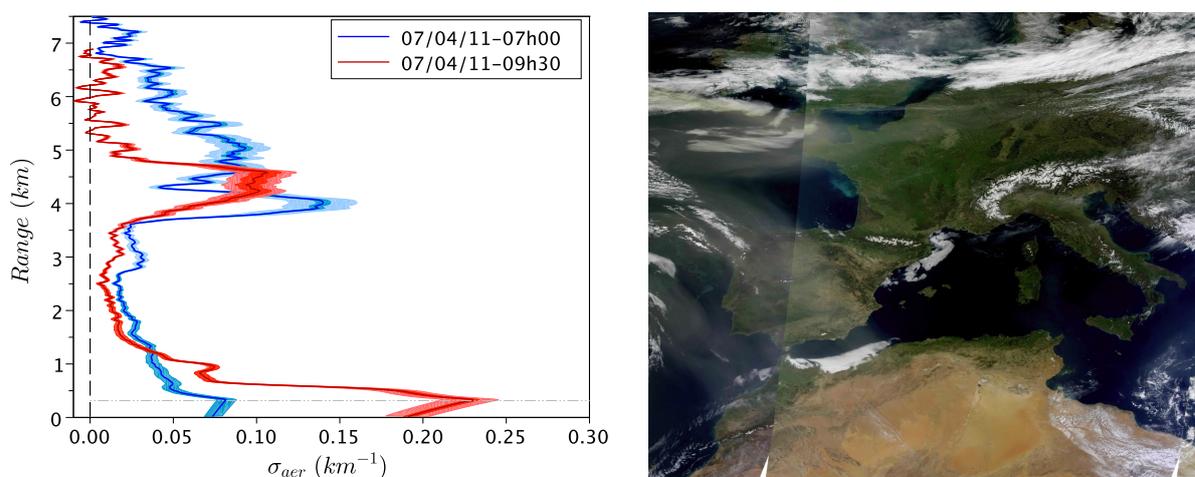


FIGURE 3.30 – Profils d'extinction  $\sigma_{aer}(z)$  à 532 nm correspondants au passage du panache principal de poussières désertiques à Lille, le 07 Avril 2011 (à gauche). À droite, image MODIS (07/04/2011) montrant l'arrivée du nuage de poussières depuis le Sahara jusqu'au Nord de la France.

Les rapports lidars associés aux profils valent  $30 \pm 6$  sr et sont en accord avec les valeurs (dispersées) présentées dans la littérature. Pour en citer quelques-unes, on trouve ainsi, pour les poussières d'origine Saharienne à 532 nm, des rapports lidar,  $S_a$ , de 29, 37 et 50 sr (Welton et al. (2000)), 50-80 sr (Mattis et al. (2002)), 20-80 sr (Papayannis et al. (2008)),  $35 \pm 5$  sr (Powell et al. (2000)),  $60 \pm 20$  sr (Ansmann et al. (2003)), 38-50 sr (Esselborn et al. (2009)),  $63 \pm 6$  sr (Gross et al. (2011)), 25-35 sr (Karyampudi et al. (1999)),  $40 \pm 5$  sr (Liu et al. (2008)). En s'appuyant sur des mesures in situ effectuées au sein d'un panache de poussières Sahariennes, Omar et al. (2010) a calculé un rapport lidar  $S_a$  de 36 sr.

Si l'on exclut toute dépendance instrumentale (ces valeurs sont calculées avec une grande variété de lidars : micro-pulsé, Raman, HSRL, spatial), une explication possible de la dispersion des rapports lidar associés à ce type d'évènement réside dans le fait que

ces observations ont été faites depuis des sites d'observation plus ou moins éloignés des sources. Le transport et donc les modifications micro-physiques potentiellement subies par les poussières sont différents. Cette différence de vieillissement peut conduire à des propriétés optiques très différentes. On admet, par exemple, que la taille moyenne des poussières diminue au cours du transport, du fait de la sédimentation plus rapide des plus grosses particules. Ceci peut alors conduire alors à une augmentation du rapport lidar (Liu et al. (2008)). Il est, de plus, parfois délicat de séparer la contribution des aérosols locaux, dont la nature dépend évidemment du site d'observation (aérosols de pollution, aérosols marins, ...), des aérosols transportés. Finalement, la localisation précise des régions sources semble également jouer un rôle important. Des poussières issues de différentes régions n'auront, en effet, pas la même composition minérale (Skonieczny et al. (2013)). Les propriétés optiques (et donc le rapport d'extinction et de rétrodiffusion) dont elles dépendent pourront donc, avant même les modifications que peuvent introduire le transport, être différentes.

La concentration en particules a été estimée, comme précédemment, à partir des profils d'extinction et des propriétés microphysiques inversées à partir des données photométriques. La concentration atteint, au maximum,  $9700 \text{ particules.cm}^{-3}$ , soit, avec une masse volumique de  $2,6 \text{ g.cm}^{-3}$  une concentration massique de  $190 \text{ }\mu\text{g.m}^{-3}$ . Le long de la colonne, la charge en poussières désertiques représente  $325 \text{ mg.m}^{-2}$ .

### 3.5.4 Poussières volcaniques (Eyjafjöll, Avril-Mai 2010)

Le 14 avril 2010, le volcan Eyjafjöll (Islande) entre dans sa seconde phase éruptive<sup>3</sup>, pour une durée d'environ un mois (Figure 3.31). Les énormes quantités de cendres propulsées dans l'atmosphère (200 millions de tonnes), alors transportées par les vents dominants d'Ouest, viennent recouvrir l'Europe continentale. Ne disposant que de peu d'informations quantitatives, comme la concentration massique en particules au sein du panache (sur laquelle s'appuie le seuil de sécurité défini par l'aviation civile de  $4 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-3}$ ), la quasi-totalité des aéroports européens a été paralysée, par principe de précaution, pendant plus de 15 jours. Cet évènement a mobilisé la communauté scientifique européenne impliquée dans les sciences atmosphériques (télé-détection, in-situ, modélisation, ...). Un grand nombre d'articles a ainsi été consacré à son observation, depuis différents observatoires, et à sa caractérisation (Ansmann et al. (2010); Chazette et al. (2012); Derimian et al. (2012); Johnson et al. (2012); Papayannis et al. (2012); Rossini et al. (2012); Schumann et al. (2011), ...). Cet évènement a également mis en évidence la nécessité d'une observation opérationnelle et normalisée qui a, par exemple, motivé MétéoFrance (entre autres) à mettre en place un réseau d'observation lidar/photomètre sur l'ensemble du territoire.

Nous présentons, dans cette partie, l'article correspondant à l'observation (lidar/photomètre) et à la caractérisation du panache volcanique détecté à Lille pendant près d'un mois.



FIGURE 3.31 – Photographie aérienne de l'Eyjafjöll lors de sa seconde phase éruptive, le 17 Avril 2010. (Source : [www.boston.com](http://www.boston.com))

---

3. La première phase éruptive, de moindre importance, a débuté le 20 mars 2010.



## Detection and characterization of volcanic ash plumes over Lille during the Eyjafjallajökull eruption

A. Mortier<sup>1</sup>, P. Goloub<sup>1</sup>, T. Podvin<sup>1</sup>, C. Deroo<sup>1</sup>, A. Chaikovsky<sup>2</sup>, N. Ajtai<sup>3</sup>, L. Blarel<sup>1</sup>, D. Tanre<sup>1</sup>, and Y. Derimian<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire d'Optique Atmosphérique, CNRS, UMR8518, Université Lille 1, Villeneuve d'Ascq, France

<sup>2</sup>Laboratory of Optics of Scattering Media, Stepanov Institute, Academy of Science of Belarus, Minsk, Belarus

<sup>3</sup>Research Center for Disaster Management, Faculty of Environmental Science and Engineering, Babeş-Bolyai University, Cluj-Napoca, Romania

Correspondence to: A. Mortier (augustin.mortier@ed.univ-lille1.fr)

Received: 29 October 2012 – Published in Atmos. Chem. Phys. Discuss.: 4 December 2012

Revised: 4 March 2013 – Accepted: 13 March 2013 – Published: 4 April 2013

**Abstract.** Routine sun-photometer and micro-lidar measurements were performed in Lille, northern France, in April and May 2010 during the Eyjafjallajökull volcanic eruption. The impact of such an eruption emphasized significance of hazards for human activities and importance of observations of the volcanic aerosol particles. This paper presents the main results of a joint micro-lidar/sun-photometer analysis performed in Lille, where volcanic ash plumes were observed during at least 22 days, whenever weather conditions permitted. Aerosol properties retrieved from automatic sun-photometer measurements (AERONET) were strongly changed during the volcanic aerosol plumes transport over Lille. In most cases, the aerosol optical depth (AOD) increased, whereas Ångström exponent decreased, thus indicating coarse-mode dominance in the volume size distribution. Moreover, the non-spherical fraction retrieved by AERONET significantly increased. The real part of the complex refractive index was up to 1.55 at 440 nm during the eruption, compared to background data of about 1.46 before the eruption. Collocated lidar data revealed that several aerosol layers were present between 2 and 5 km, all originating from the Iceland region as confirmed by backward trajectories. The volcanic ash AOD was derived from lidar extinction profiles and sun-photometer AOD, and its maximum was estimated around 0.37 at 532 nm on 18 April 2010. This value was observed at an altitude of 1700 m and corresponds to an ash mass concentration (AMC) slightly higher than  $1000 \mu\text{g m}^{-3}$  ( $\pm 50\%$ ). An effective lidar ratio of ash particles of 48 sr was retrieved at 532 nm for 17 April during the early stages of the eruption, a value which agrees

with several other studies carried out on this topic. Even though the accuracy of the retrievals is not as high as that obtained from reference multiwavelength lidar systems, this study demonstrates the opportunity of micro-lidar and sun-photometer joint data processing for deriving volcanic AMC. It also outlines the fact that a network of combined micro-lidars and sun photometers can be a powerful tool for routine monitoring of aerosols, especially in the case of such hazardous volcanic events.

### 1 Introduction

The Eyjafjallajökull eruption started on 20 March 2010, but the eruptive intensity significantly increased on 14 April, resulting in large amounts of ash being injected into the atmosphere (Sigmundsson et al., 2010). This event strongly affected the European and global air transport industry since volcanic ash (VA) plumes were subjected to long-range transport and carried over large areas in Central Europe due to strong westerly winds.

Volcanism in general is a very dynamic geological process that has spectacular manifestations, but at the same time is associated with several risk factors that often severely affect human life and the environment. The most important hazards associated with volcanic eruptions are represented by lava flows, mud flows, gas emissions, and solid fragments originating from deep within Earth that are expelled to the surface in an explosive volcanic eruption (pyroclastics) (Guffanti et al., 2009). The materials generated by such an event

are spread much faster and on a much larger surface than the lava. Pyroclastics can be represented by volcanic bombs, lapilli (rocks with diameters varying from a few mm to several cm), VA with very small particle sizes (1/16–2 mm) and very fine dust particles ( $< 1/16$  mm) consisting of fragments of glassy lava and volcanic rock particles in an amorphous or crystalline structure. VA may cause significant damage due to the fact that after being expelled into the atmosphere to a very high altitude, it is subjected to long-range particle transport phenomena, and usually falls down on large surfaces. Ash deposits are also a serious hazard to crops, and can also lead to clogging of water surfaces and collapse of poorly constructed buildings. In all cases, volcanic ash expelled to high altitudes in the atmosphere can pose a serious hazard to aircraft engines. VA has a highly corrosive effect, primarily on turbines as they get temporarily or definitively blocked after aspirating the dust, which melts at high temperatures inside the combustion chamber, and then cools down and solidifies on the cooler parts of the engine, causing sudden engine failure. VA poses a hazard also to turbine blades and causes friction scratches on the windshield, resulting in poor visibility (Ajtai et al., 2010). The International Air Transport Association (IATA, <http://www.iata.org/>) estimated that airline companies worldwide lost about 150 million € each day during the April–May 2010 event, with total losses exceeding 2.5 billion €.

Monitoring of such hazardous atmospheric particles remains a difficult task since aerosol particles are highly inhomogeneous and variable in time and space. Consequently, aerosol observations have to be global and continuous. Although ground-based aerosol remote sensing does not provide global coverage, it contributes significantly to the understanding of aerosols properties and potential impacts associated, thanks to their distribution and organization within regional or global networks such as the AERONET federation. AERONET manages automatic sun photometers providing wide angular and spectral measurements of solar and sky radiation best suited to reliably and continuously derive the detailed aerosols optical properties in key locations worldwide. Moreover many atmospheric stations have vertical sounding capabilities thanks to lidar systems. Several networks dedicated to atmospheric monitoring with sun/sky photometers, lidar and in situ monitoring systems were developed in the recent past (EARLINET, MPLET, CIS-LINET, SPALINET, ROLINET, RADO, etc.). Several studies and projects demonstrated the relevance of sun-photometer and lidar systems combination in order to improve aerosol characterization and monitoring (Welton et al., 2000; Campbell et al., 2002; Pelon et al., 2008; Ansmann et al., 2010, 2011; Leon et al., 2009; Schuman et al., 2011; Mattis et al., 2010; Mona et al., 2012). In situ measurements performed by Schumann et al. (2011) revealed that the VA plumes observed over Europe consisted mainly of ash particles with radii larger than  $0.5 \mu\text{m}$  and sulfuric acid. The assessment of the potential associated risk

therefore requires as accurate as possible determination of their location within the atmospheric column, concentration, and microphysical and chemical properties. Remote sensing measurements were performed at many atmospheric stations in Europe during this event. Among them was a sun-photometer/micro-lidar system that conducted continuous observations in Lille during that period. The micro-lidar used was the Cloud and Aerosol Micro Lidar (CAML) developed by CIMEL (Pelon et al., 2008; Leon et al., 2019). The data is archived at LOA and processed routinely to derive aerosol extinction profiles and effective lidar Ratio, thus providing a real-time overview of aerosol layers over Lille (<http://www-loa.univ-lille1.fr/Instruments/LIDAR/>).

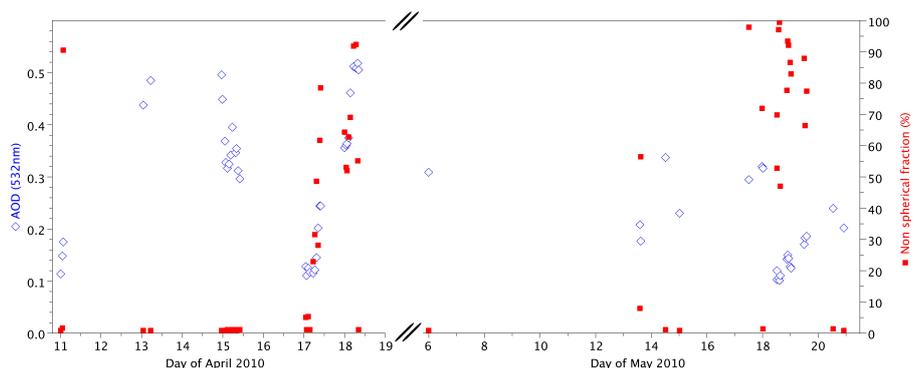
The paper presents the results of monitoring and characterization of volcanic ash characteristics as observed from Lille Atmospheric Observatory during April–May 2010. Our work shows that such an important parameter as AMC can be estimated with reasonable accuracy through combination of a single-wavelength backscattering micro-lidar with AERONET. Although the results are not as accurate as those obtained from reference multiwavelength lidars (Ansmann et al., 2010), they show that the association of micro-lidars with sun photometers significantly helps in the characterization and quantification of aerosols. Such an approach is suitable for micro-lidar systems collocated with AERONET stations. In several European countries, meteorological agencies decided to either develop lidar networks (Météo France, Met Office, etc.) or update their ceilometer networks (Flettje et al., 2010) in order to support decision-making in the case of volcanic or industrial hazardous events. In our paper we aim to show that automatic, well-characterized and well-maintained micro-lidar systems with routine operation coupled with a sun/sky photometer can be a quite relevant tool for estimating useful microphysical parameters in the case of natural or industrial hazardous events.

The paper is structured as follows: Sect. 2 is dedicated to the description and analysis of aerosol columnar properties retrieved from AERONET and of height-resolved data available from lidar, separately. In Sect. 3 the paper presents the results of joint sun-photometer/lidar inversion performed for a selection of relevant atmospheric situations between 16 April and 20 May 2010. In the last section, methodology for estimating AMC is presented, along with associated uncertainties, results and discussions.

## 2 Observations and analysis

### 2.1 AERONET data from Lille during April and May 2010

Atmospheric radiation measurements and aerosol characterization started in Lille at the LOA in 1980. However, observation on regular basis started only in 1992 within the AERONET federation (Holben et al., 1998, 2001;



**Fig. 1.** Time series of AOD at 532 nm (blue) and fraction in % (red squares) of non-spherical particles for April and May 2010 over Lille.

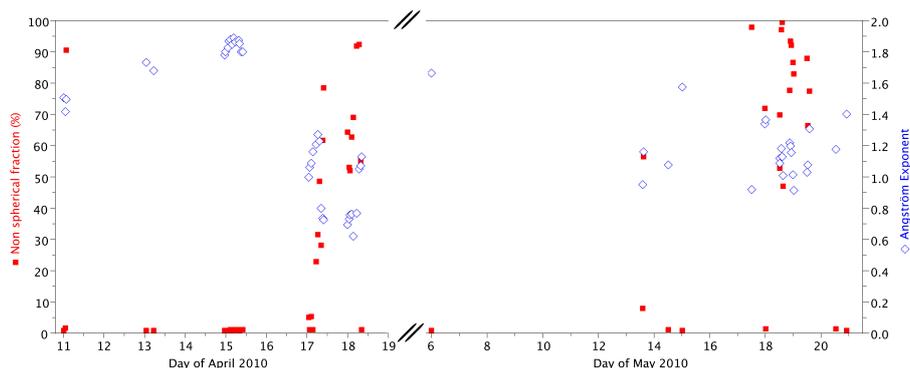
<http://aeronet.gsfc.nasa.gov>). Since 1992, as one of the first AERONET sites, Lille is operating one automatic CIMEL CE-318 sun photometer and performs routine observations on the roof of the physics department. AERONET is now a well-known and established network, dedicated to real-time characterization and monitoring of aerosol properties (Dubovik et al., 2000, 2002a, b, 2006) and water vapor content as well as cloud optical depth (COD) (Marshak et al., 2004). Standard measurements performed by the CIMEL CE-318 sun photometer are composed of solar spectral irradiance used to derive accurate spectral extinction AOD ( $\pm 0.01$ ) within the range 340 to 1640 nm as well as downward sky spectral radiances (440 to 1020 nm) in the solar principal plane and in the almucantar geometries. Additional to spectral AOD, from which Angström exponent (AE) is computed, the main aerosol parameters retrieved that are considered in this study are the following: volume size distribution (VSD), non-spherical fraction (NSF), spectral single-scattering albedo (SSA), spectral refractive index (RI), as well as extinction-to-backscatter ratio, also called lidar ratio (LR) close to the inverse of the aerosol phase function (APF) in the backscattering direction. The AERONET retrieval scheme considers a mixture of polydisperse, randomly oriented homogeneous spheroids with a fixed distribution of aspect ratios (Mishchenko et al., 1997) and provides fraction (in percentage) of spherical particles (Dubovik et al., 2006). The AERONET retrieval products used in this study were collected in cloud-free conditions, provided by the AERONET web site as “version 2 (V2) inversion products” using the Smirnov et al. (2000) cloud-screening algorithm.

The variability of AOD, AE and NSF during April–May period is summarized in Figs. 1 and 2. Observations show that on 15 April, AOD was reaching 0.5 at 532 nm, whereas AE was high and ranging between 1.5 and 1.8. The NSF was very close to zero, indicating the predominance of spherical particles. These conditions are typical for a polluted atmosphere (AOD reaching, however, almost 3 to 5 times the background level of 0.15, as given from a multiyear analy-

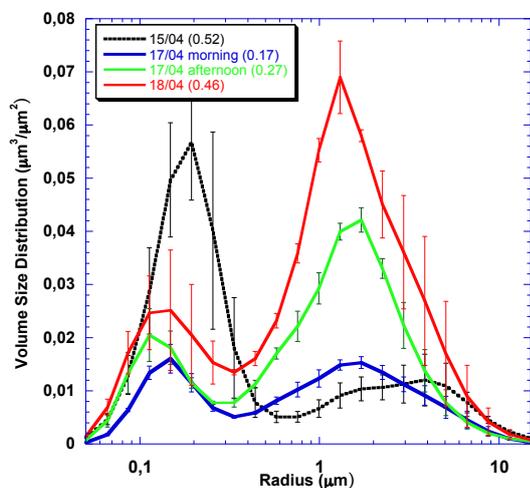
sis), encountered in Lille city when air masses are mainly coming from the east and northeast. On 16 April, due to clouds and rain washing out the lower troposphere, weather conditions did not permit observations. The first obvious change in aerosol properties was detected over Lille on 17 April in the morning. On this day, AOD values were not as high as on 15 April, but exhibited strong diurnal variations. The value of AOD (532 nm) reached its maximum (0.5–0.6) on 18 April. Figure 2 exhibits a sudden AE decrease, indicating an increase of the aerosol average size within the atmospheric column. At the same time, NSF sharply increased up to 50 % and then to 100 %. The diurnal variations observed on 17 April show that AOD almost doubled between 14:00 UTC (0.13) and 17:00 UTC (0.25). On 18 April the diurnal variation exhibits a similar behavior to that of 17 April, with AOD values close to 0.35 in the morning and then strongly increasing in the afternoon, finally reaching 0.52.

Regarding VSD retrieved from AERONET Level 2 data, important changes were observed from 15 to 18 April, as shown in Fig. 3. This figure shows that on 15 April, size distribution was mostly characterized by fine-mode domination (common for Lille), with relatively high loading (average AOD is about 0.35). In the morning on 17 April, the atmosphere was rather clean (AOD  $\approx 0.12$ ), but became more turbid (AOD and coarse-mode concentration increased) in the afternoon, when AOD reached  $\approx 0.24$ . A continuous increase in AOD and coarse-mode concentration was observed until 18 April, with AOD values reaching  $\approx 0.36$  in the morning and 0.51 in the afternoon. The coarse-mode concentration was mainly represented by a range of particle radii around 1.5–2  $\mu\text{m}$ , a fact confirmed by a complementary study performed over Lille (Derimian et al., 2012) and over Paris, located around 200 km south of Lille (Chazette et al., 2012).

AERONET retrievals provided for 15 April an RI of  $1.46 \pm 0.03$  and an SSA of  $0.91 \pm 0.03$  and  $0.87 \pm 0.03$  at 440 nm and 870 nm, respectively. Climatologic values computed from a multiyear analysis provided for Lille an average RI of  $1.42 \pm 0.03$  and an average SSA value of  $0.93 \pm 0.03$  and  $0.89 \pm 0.03$  at 440 and 870 nm, respectively. On 17



**Fig. 2.** Time series of Angström exponent,  $\alpha = -d\ln(\text{AOD})/d\ln(\lambda)$ , computed between 440 and 870 nm and fraction in % (red squares) of non-spherical particles for April and May 2010 over Lille.



**Fig. 3.** Average size distributions (level 2) retrieved on 15, 17 and 18 April 2010. Error bars represent standard deviation and indicate time variability.

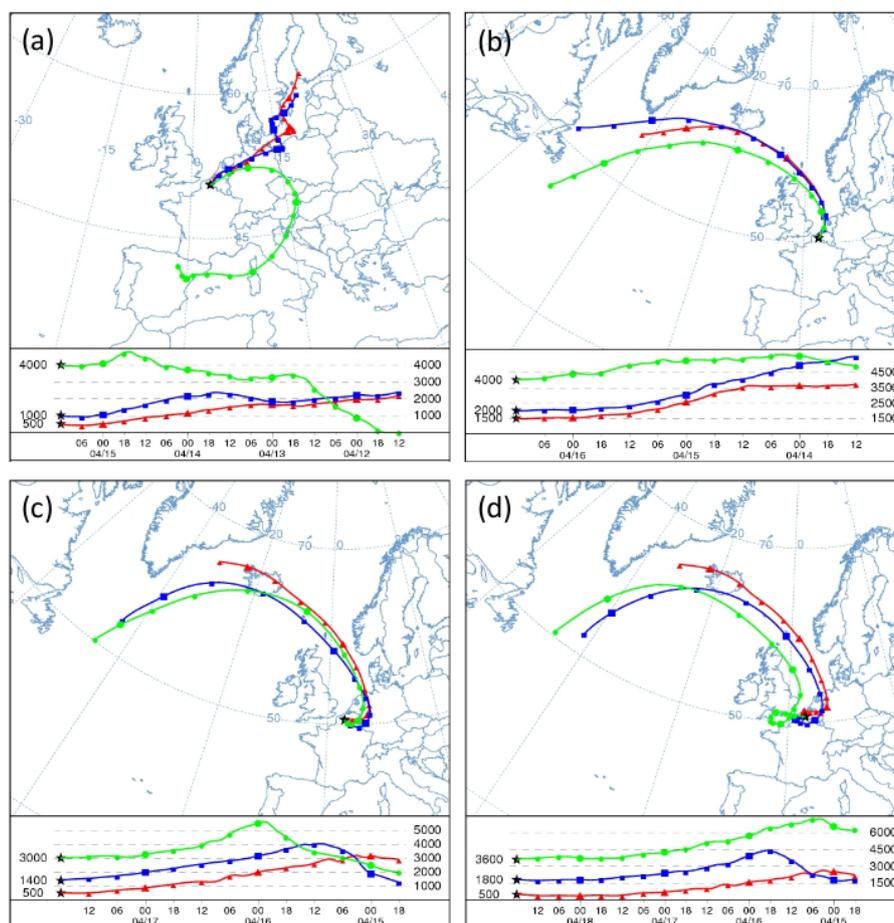
April, in the afternoon, the average RI was  $1.55 \pm 0.03$  at 440 nm, which was consistent with an increase of silicate particles concentration within the atmospheric column. At 440 nm and 870 nm, SSA was found to be  $0.88 \pm 0.02$  and  $0.93 \pm 0.02$ , respectively. The first spectral derivative of SSA is negative, which is an indicator of a mineral dust signature (Dubovik et al., 2002b).

The contrast between 15 and 17 April is quite significant and larger than the expected uncertainty on these parameters of 0.03. In all these cases, AOD values at 440 nm are always larger than 0.40; therefore, the accuracy of AERONET products is good (Dubovik et al., 2002b).

AERONET retrievals (APF and SSA) also allow the estimation of vertically averaged or effective LR. At 532 nm an average LR of 54 sr has been determined for the afternoon of 17 April. Given the fact that AERONET provides total-, fine- and coarse-mode phase functions, the coarse-mode

LR, which can be mostly attributed to volcanic ash particles, was found to be  $47 \pm 10$  sr at 532 nm. This value is in relatively good agreement with values derived from AERONET data for natural non-spherical coarse particles, such as desert dust, in climatologic studies 40–50 sr, (Catrall et al., 2005), 55 sr (Schuster et al., 2012) and volcanic particles in case study, 42 sr, (Derimian et al., 2012). LR was also calculated from AERONET data for 15 April, and a value of 71 sr was found. At the end of May, when the volcanic activity ceased and the atmosphere was clear of ash particles, LR values returned to their initial value of around 70 sr, again consistent with values reported for Lille by Catrall et al. (2005). Recent studies that are focusing on the Eyjafjallajökull eruption (Gross et al., 2010; Ansmann et al., 2011; Schumann et al., 2011; Wiegner et al., 2011; Mona et al., 2012; Derimian et al., 2012) provided values of  $50 \pm 10$  sr for ash, which are in agreement with the AERONET estimates presented in this study. Thus, RI, SSA, and LR values are indicating a modification of the chemical composition in the column that can either be explained by aerosol physico-chemical transformations and/or by a possible intrusion of new aerosol particle types somewhere in the atmospheric column. This effective change in the chemical composition is consistent with an intrusion of natural particles such as mineral dust originating from Saharan regions (Dubovik et al., 2002b) or volcanic ash transported from the Iceland region (Derimian et al., 2012) and very likely partially composed of silicates. The history of air mass trajectories (Fig. 4) shows that for 15–18 April, the air masses were not originating from the south, but from the east and north for 15 April, and from the northwest (Iceland) on the following days. The assumption of desert origin is therefore not realistic here.

Later in May, as shown in Fig. 1, thanks to sun-photometer data, one can observe again such changes in aerosol properties, with similar trends of increasing coarse-mode concentration (maximum concentration for particle radii around 1.5–2 micrometers). The observed changes are again qualitatively consistent with an ash layer intrusion originating from



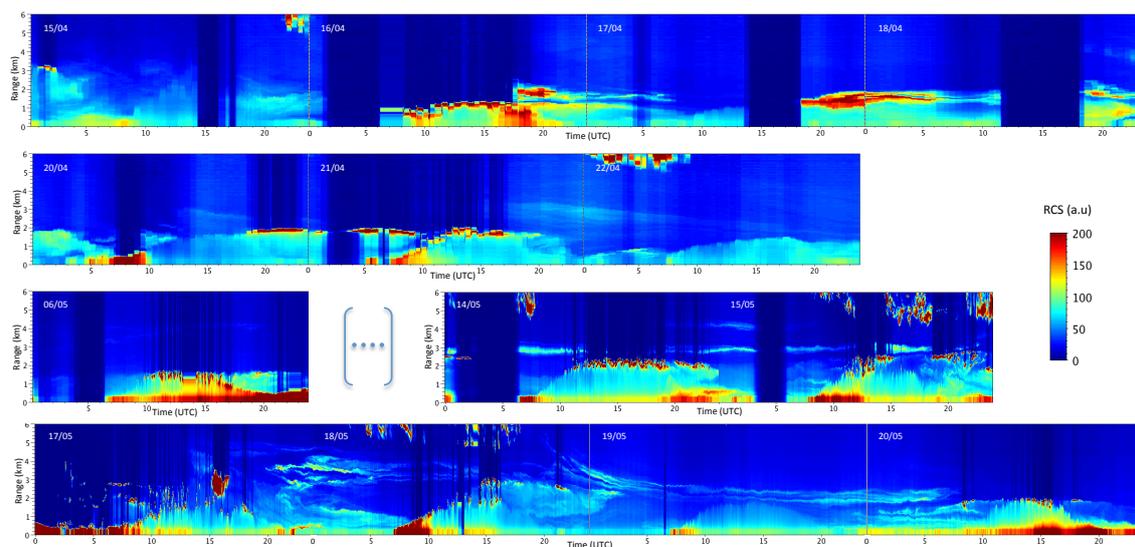
**Fig. 4.** Backward trajectories for 15 (a), 16 (b), 17 (c) and 18 (d) April 2010, ending at Lille (black star). The colors correspond to the different altitudes, given for each figure, below trajectories.

Iceland (confirmed by the backward-trajectory model). However, AOD remained mostly below 0.4 at 440 nm preventing the application of the quantitative analyses due to the decrease in the accuracy of the AERONET retrievals (Dubovik et al., 2002b).

In this part, aerosol columnar properties provided by sun photometer were described, exhibiting quite significant changes in April and May 2010. These changes affecting the atmospheric column (aerosol size, shape, refractive index, absorption) are consistent with successive volcanic ash plume intrusions, a claim confirmed by backward-trajectories analysis showing that air masses passing over Lille originated from the Iceland region. However, information on aerosol vertical distribution that is not available from sun photometers is highly necessary to confirm and analyze in more detail these observations. Therefore, a combination of sun-photometer and lidar data will enable the derivation of aerosol vertical distribution and the estimation of their mass concentration.

## 2.2 Lidar observations in Lille in April and May 2010

Since 2006, LOA started aerosol/cloud observation with a micro-lidar operated 24 h per day and 7 days per week. Time series of lidar signal, as well as sun-photometer AOD and AE, are routinely published and available at <http://www-loa.univ-lille1.fr/Instruments/LIDAR/>. The processing system developed for data acquisition, transfer, and processing is applicable to any new site or even for a mobile lidar station (Mortier et al., 2012). The Cloud and Aerosol Micro Lidar (CAML) CE 370–2 developed by the CIMEL Company has already been described in the literature (Pelon et al., 2008; Leon et al., 2009). This eye-safe micropulse lidar system measures the radiation elastically backscattered from the atmosphere at 532 nm, with power ranging from 50 to 130 mW. Its principle is similar to most micropulse lidar systems (Welton et al., 2002); however, some differences allow for easier operation. The main difference is the emission and reception optical link from the rack to the telescope that is ensured by a 10 m optic fiber. Such a system can be placed



**Fig. 5.** Time series of lidar range corrected power  $P(z)$  at 532 nm (maximum altitude considered is 6 km). Blue brackets separate the two observing periods (from 15 April to 20 May 2010).

outside a small building where all the acquisition systems are located. Signal detection and processing is ensured by an avalanche photodiode, protected by an acousto-optic device deviating the received beam during laser emission, a photon counting system (30 km range, at 15 m resolution) and a summation processor. Due to the after-pulse phenomenon, no useful signal is detected from a distance below 240 m in the current version of the device. Measurements were made according to either a standard sequence of 10 min acquisition every half hour or in continuous mode. This system was in operation during the Eyjafjallajökull volcanic eruption. In Fig. 5, time series of lidar profiles showing ash-plume features, mainly located below 6 km, over Lille in April and May 2010 are presented.

In the atmosphere, aerosol vertical distribution follows general patterns. In the planetary boundary layer roughly from 0 to 2 km, aerosol spatial variability and lidar signal amplitude are high, whereas on the opposite, in the free troposphere ranging from 2 to 8 km, aerosol spatial variability and lidar signal amplitude are low, except for the cases in which aerosol particles are transported from large distances such as biomass burning, desert dust or volcanic ash. Finally, the far field region of troposphere corresponding to altitudes about 8 to 10 km, is generally very clean ( $\text{Extinction} < 4.10^{-3} \text{ km}^{-1}$  at 550 nm; Johnson et al., 2012b; Weitkamp, 2005) and is frequently used for selecting the reference altitude requested to calibrate lidar against the molecular atmosphere. Pictures presented in Fig. 5 show several complex aerosol features distributed over one or several layers from 15 to 22 April. Range corrected signals are given for the 0 to 6 km range in order to focus on the more relevant part of the troposphere for these two periods.

On 15 April, lidar was operating during night and daytime and revealed an almost cloud-free atmosphere, typical of a Lille background pollution situation. The weather conditions changed during the night, and low-level clouds were detected on 16 April at least up to 18:00 UTC. Then clouds disappeared and a layer was detected at about 2 km. Both range-corrected signal and geometrical thickness of this layer decreased with time until no more layers were detected between 08:00 and 14:00 UTC. Lidar operation stopped temporarily up to 18:00 UTC, and when restarted a very dense aerosol layer was detected at about 1.5 km and remained detectable up to 18 April around midnight. The maximum geometrical thickness of about 1 km was measured near 22:00 UTC and then decreased to reach its minimum at 07:00 UTC. The day after, 19 April, due to bad weather conditions, no data were available. Finally, thin layers of aerosols located between 2 and 3 km were still visible the three next days (20–22 April), when both low and high clouds were temporarily present in the atmosphere. In May the volcanic ash plume was first detected on 6 May, between 3 and 4 km. It must be noted that due to maintenance, the laser source was changed (laser power at least doubled) and acquisition restarted after 5 May. Unfortunately, from 6 to 14 May, low level clouds and rain strongly restricted the number of sun-photometer observations. However, during some short temporal windows, lidar detected one or two separate aerosol layers at 3 and 4.5 km on 8 May, and one single layer located around 3.5 km on 9 May. On 14 May one aerosol layer was detected at 3 km in the morning, then a second one higher, at 4.2 km, during the night – this layer being detected through the whole night up to 08:00 UTC on 15 May. Lidar also detected a complex aerosol pattern up to 5 km from noon to midnight on 15 May. The maximum of attenuated backscattered signal was

located around 3.5 km during that period as well as during the first part of 18 May. On 19 May, one aerosol layer was detected around 2–3 km, and remained detectable during day and night up to 07:00 UTC on 20 May. At the Lille site, 20 May was the last day volcanic ash was detected. This analysis has shown that information presented in Fig. 5 is consistent with sun-photometer observations reported in the previous section, due to the fact that detection of aerosol layers has confirmed in most cases the daytime detection performed from sun-photometer data. A quantitative analysis will be presented in the next section.

### 3 Lidar/sun-photometer inversion

In order to provide an estimate of ash mass concentration (AMC) from extinction profiles, which is our main objective, first we recall the lidar equation and describe the applied instrumental corrections. Then, the inversion methodology is described and uncertainty is evaluated. Among the available datasets, this study focuses on results obtained during the more significant time windows in April and May 2010.

#### 3.1 Methodology

In this section we describe daytime lidar data processing in combination with sun-photometer AOD for retrieving aerosol extinction profile,  $\sigma_{a,ext}(z)$ , and the effective extinction-to-backscatter ratio, or LR. The basis of the methodology is similar to that described by Léon et al. (2009). However, several improvements have been introduced both at instrumental (non-linearity of the detector, analysis of temperature sensitivity, noise filtering) and inversion levels (accounting for multilayer configurations relevant for this specific analysis).

At instrumental level, data processing includes several corrections such as background sky irradiance, non-linearity of the detector, overlap correction and after-pulse phenomenon (causing a blind zone below  $z_{min} = 240$  m for vertical sounding). The after-pulse signal is measured once a week and corrected using linear interpolation. The background “sky” irradiance is measured by averaging lidar signal at high altitude range (above 22 km). The overlap function is determined using horizontal shots during clean and stable atmospheric conditions (Pelon et al., 2008). Finally, lidar profiles within 20 min were accumulated and signal-to-noise ratio improved by filtering range-corrected signals on the fast Fourier transform spectrum (high frequency reduction).

Once all the previous corrections applied, the lidar signal is only controlled by the atmospheric scattering and extinction processes as shown by Eq. (1), giving the range-corrected attenuated backscattering signal,

$$P(z) = K \cdot (\beta_a(z) + \beta_m(z)) \exp\left(-2 \int_{z_{min}}^z (\sigma_{a,ext}(z') + \sigma_m(z')) dz'\right), \quad (1)$$

with  $\beta_a$  and  $\beta_m$  as the backscattering coefficients for aerosol and molecules, respectively, and  $\sigma_{a,ext}$  and  $\sigma_m$  are the extinction coefficients for aerosols and molecules, respectively. The  $K$  factor, a pure instrumental parameter, although subject to variation, is evaluated from the assumption that the backscatter coefficient is known for any reference altitude where inversion procedure starts. Usually, the reference altitude,  $z_{ref}$ , is taken in the far zone ( $z > 7$  km), where the signal can be mostly attributed to molecular scattering. In this situation, total backscatter coefficient  $\beta_a(z_{ref}) + \beta_m(z_{ref})$  is close to  $\beta_m(z_{ref})$ . The choice of reference altitude yields in a small additional error (Russel et al., 1979; Pueschel et al., 1994; Chazette et al., 2002).

The aerosol backscattering coefficient,  $\beta_a$ , is linked (Eq. 2) to the aerosol single-scattering albedo (SSA or  $\omega_o$ ) to the aerosol phase function in the backscattering direction,  $APF(\pi)$ , and to the extinction coefficient,  $\sigma_{ext,a}$ . All of these parameters can change with the altitude.

$$\beta_a = \frac{SSA \cdot \sigma_{ext,a} \cdot APF(\pi)}{4\pi} \quad (2)$$

Hence, the introduction of the extinction-to-backscatter coefficient ratio,  $LR = \frac{\sigma_{a,ext}}{\beta_a}$ , also called lidar ratio, yields Eq. (3),

$$P(z) = K \cdot \left( \frac{\sigma_{a,ext}(z)}{LR} + \beta_m(z) \right) \exp\left(-2 \int_{z_{min}}^z (\sigma_{a,ext}(z') + \sigma_m(z')) dz'\right). \quad (3)$$

Once calibrated against molecular scattering in the reference zone, one equation with two unknown variables (LR and  $\sigma_{ext,a}$ ) remains, thus yielding an underdetermined equation. Retrieval of  $\sigma_{ext,a}$  profile and effective LR are performed during daytime using the same methodology as used by Leon (2009), based on the Klett and Fernald solution (1981, 1984) including the use of accurate AOD measurements (AERONET  $\Delta AOD = 0.01$ ) as a constraint to retrieve LR. As previously mentioned, due to the after-pulse phenomenon, the atmospheric layer below  $z_{min} \approx 240$  m (in case of vertical sounding) cannot be sampled by the system used in this study. The result is therefore slightly biased (Pelon et al., 2008; Leon et al., 2009) due to a small systematic difference between lidar and sun-photometer AOD. This was partially accounted for by assuming as constant the lidar range corrected signal from 250 m to ground level.

A more accurate retrieval of the extinction profile would be possible if the atmosphere were vertically homogeneous in terms of the optical properties aerosols (e.g.,

$1/LR \propto SSA \cdot APF(\tau) \approx \text{constant}$ ). In Leon et al. (2009), retrievals are performed assuming that the planetary boundary plus the free troposphere layers can be described by a single LR (effective value). Regarding uncertainty, one of its main sources in the retrievals is generated by the unknown vertical variation of LR. In the present study, this approach is improved by considering, when relevant, a more realistic description obtained by combining two homogeneous layers characterized by their own LR,  $LR_{AL}$  for the ash layer (AL) and  $LR_{PBL}$  for the boundary layer and anywhere else. Of course, both of them cannot be retrieved at the same time, and one has to therefore be set a priori by using additional information (climatologic value from either lidar or AERONET, in situ, etc.). Although simple, this description improves the retrieval of vertical profiles in the case of multiple layers. As expected, other sources of uncertainty are the following: (i) the reference signal  $P(z_{\text{ref}})$ , which affects the value of LR and consequently the extinction; (ii) the error in the overlap function (primary source of error in the bottom layer, error is close to 10 % above 600 m, whereas error reaches 50 % near the surface, Leon et al., 2009); and (iii) a bias introduced in the extinction profile by the blind zone. The uncertainty assessment given by Leon et al. (2009) has been refined considering a vertical distribution of aerosol particles and represented now by  $LR_{PBL}$  and  $LR_{AL}$ . Based on the inversion of a representative set of synthetic lidar profiles, the uncertainty of both the retrievals of extinction profile and LR in the PBL (respectively in the ash layer) for a given value of the LR in the AL (respectively in the PBL) was assessed. Results show that, due to the maximum uncertainty on the overlap in the bottom part of the PBL, both the extinction profile and LR in the AL are less accurately retrieved (20–25 % on extinction) when LR is fixed in the PBL. Conversely, and for the same reason, when the  $LR_{AL}$  is fixed, extinction profile is more accurately retrieved (15 %). Our analysis strategy results directly from the previous conclusions. Remembering that the primary goal is to derive AMC with the best possible accuracy, one has to minimize the uncertainty on the retrieved extinction profiles, especially in the AL.

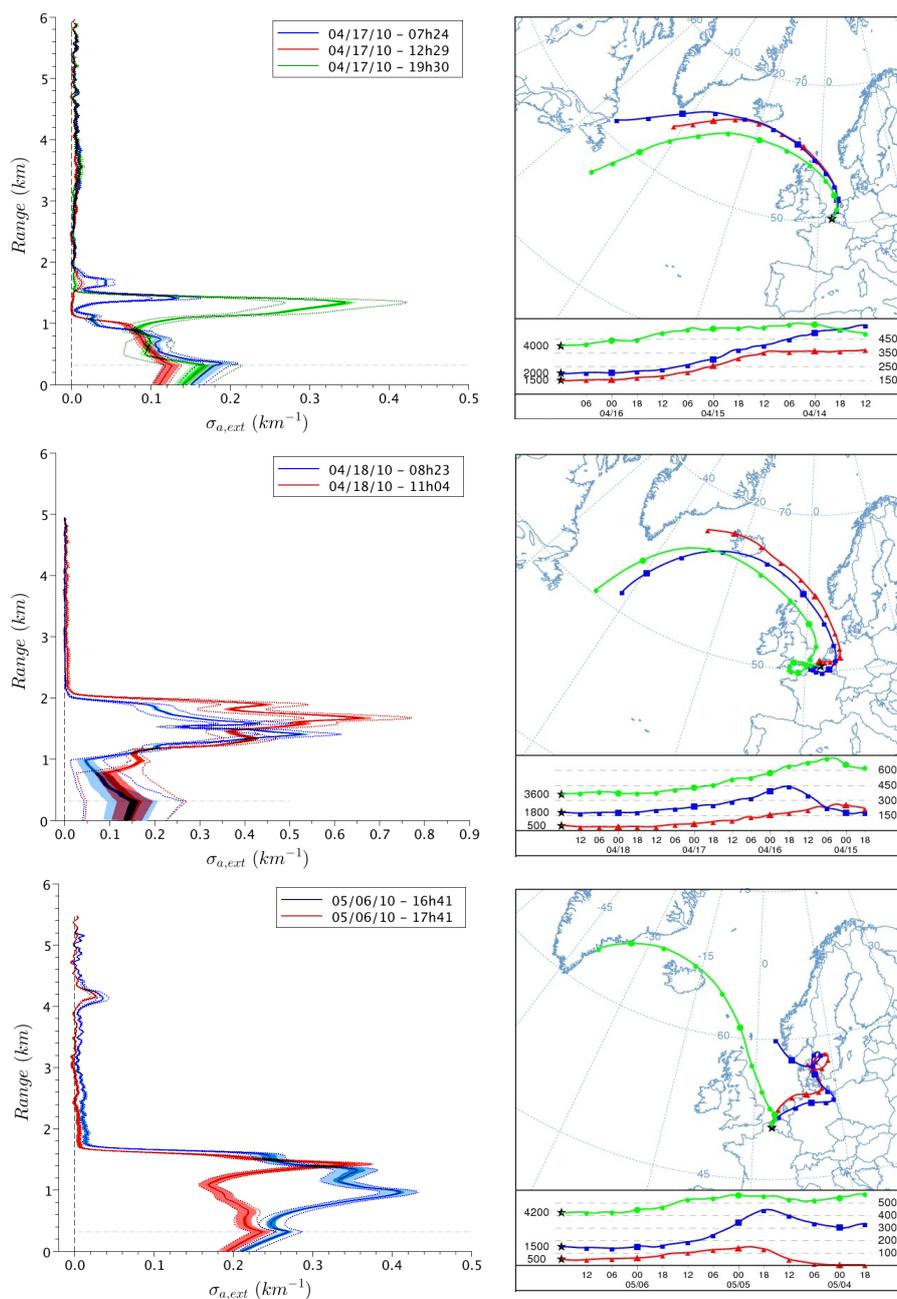
Assuming that in the early stages of the volcanic ash intrusion, the PBL was not significantly affected by the ash particles, and therefore one can reliably retrieve  $LR_{AL}$  by using for  $LR_{PBL}$  a value of  $70 \pm 8$  sr that was obtained on 15 April 2010. This LR value is close to the climatologic value for Lille, as published by Catrall et al. (2005) and is also very close to the AERONET-derived value for the same day (71 sr). This value has been used to derive  $LR_{AL}$  from lidar observations performed on 17 April during the first appearance of volcanic ash above the Lille region. The derived value was 48 sr, which is identical to what was derived using AERONET observations for Lille (regarding the only coarse mode of the VSD) at the same day (Derimian et al., 2012) and also close to several lidar-derived values for ash in other locations, e.g., 50 sr for 18 April in Paris (Chazette et al., 2012),

55 sr in Munich, Germany (Ansmann et al., 2011), and 50 sr in Italy (Mona et al., 2012).

Accounting for the uncertainty on the  $LR_{PBL}$ ,  $LR_{AL}$  and its uncertainty are estimated at  $48 \pm 10$  sr. All extinction profiles considered in the following analysis were obtained using AERONET AOD and the retrieved value of  $LR_{AL}$  (48 sr), taking into account its uncertainty (10 sr).

### 3.2 Results

For the more relevant time windows – 17 and 18 April, and 6 to 19 May – in Figs. 6 and 7 extinction profiles and corresponding backward trajectories are presented. As explained previously, in order to minimize the impact of the overlap uncertainty, and to provide a more accurate determination of the extinction profile, in the following section all lidar data were inverted with  $LR_{AL} = 48$  sr. Moreover, in order to assess dynamically the uncertainty on the extinction coefficient, each inversion was performed (i) for a set of overlap correction functions known as being representative of the experimental limits observed, (ii) with instrument noise, and (iii) accounting for the uncertainty on  $LR_{AL}$ . Figures 6 and 7 show either single or multiple layers being detected and tracked by the lidar system and the fact that their corresponding air masses were coming from the Iceland region. The areas shaded in dark color show the uncertainty due to overlap error, light shaded areas show the uncertainty due to noise, and dashed lines include the two previous plus the uncertainty on  $LR_{AL}$ . Since the origin of an air mass can be analyzed from back trajectories, and given the fact that the lidar system used cannot measure the depolarization ratio that gives information on aerosol shape (spherical/non-spherical), the current approach to validate the volcanic origin of the aerosols detected is based on the analysis of back trajectories and AERONET NSF, which also confirms the presence of non-spherical particles in the atmospheric column. Over the Lille region, the extinction peaks were measured during daytime, with values reaching  $0.35 \text{ km}^{-1}$  on 17 April at 1.1 km, and  $0.65 \text{ km}^{-1}$  on 18 April at 1.7 km (Table 1). The extinction coefficient is known with an uncertainty of about 20 %. In all cases, as shown by backward trajectories presented in Figs. 6 and 7, aerosol layers detected in the free troposphere were originating from the Iceland region. During their transport, aerosol particles may have encountered various humidity conditions; therefore, the scattering properties of the aerosols are subjected to considerable apparent variability due to the possible uptake of water. Lidar-derived profiles of the extinction coefficient are therefore affected by variable and generally unknown amounts of humidity. According to the literature (Randriamiarisoa et al., 2006), the effect of humidity, described by relative humidity (RH), is rather constant up to 70 %, but the scattering coefficient can double when RH reaches 90 % for urban aerosols. Using the ground-based RH and a standard atmospheric model, it was estimated, within the range of altitudes where extinction peaks reached their

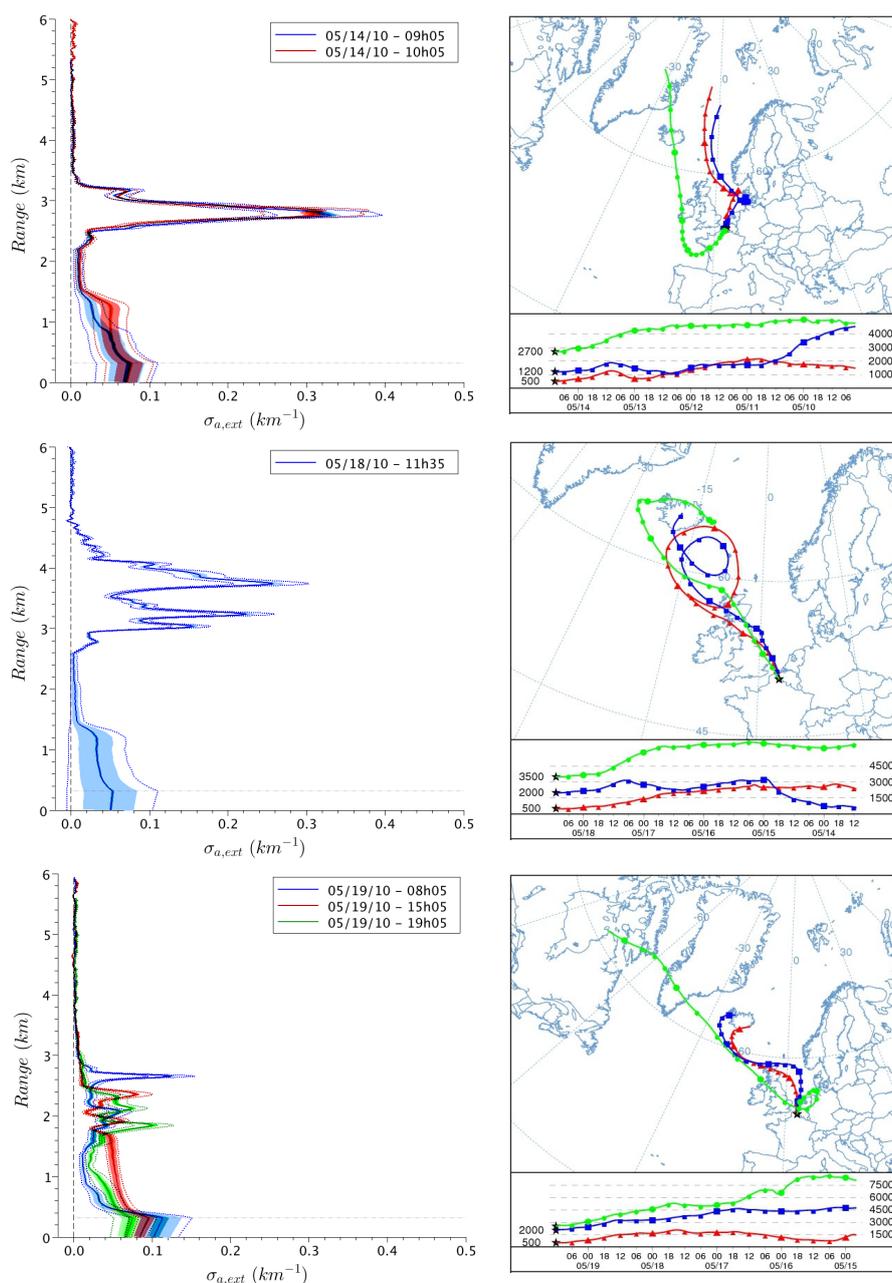


**Fig. 6.** Retrieved extinction profiles and corresponding backward trajectories for 17, 18 April and 6 May 2010. Colored areas on extinction profiles correspond to uncertainties (light: overlap, dark: noise). Dotted lines are extinction profiles retrieved taking into account the input  $LR_{ASH}$  uncertainty (10 sr).

maximum (2–3 km), that the positive bias due to humidity could reach up to 50 % in the case of urban aerosols. Ash being less hygroscopic than urban aerosols, as well as dust (Kaaften et al., 2008), the bias, although difficult to estimate, could be therefore much less important.

Sun-photometer AOD (total column AOD) and lidar-derived AOD (for ash layer only) are presented in Table 1. During daytime, the highest ash AOD of  $0.37 \pm 0.07$  was

measured on 18 April and the minimum detectable one of about 0.004 in May. As mentioned in the previous section, the sun-photometer AOD on 17 April exhibited a strong diurnal contrast from morning to afternoon, when successive volcanic plumes arrived over the region. For 17 April the sun-photometer AOD variation at 532 nm of 0.12 (AOD difference between afternoon (0.24) and morning (0.12) AOD) is a direct and accurate measure of ash AOD. At the same



**Fig. 7.** Retrieved extinction profiles and corresponding backward trajectories for 14, 18, and 19 May 2010.

time, the lidar-derived AOD of  $0.12 \pm 0.02$  for the ash is in perfect agreement with the value derived from sun photometer. Similar results were obtained for 18 April, when a strong AOD variation was also observed due to overpass the ash layers. Results provide  $0.13 \pm 0.01$  and  $0.14 \pm 0.05$  for sun-photometer and lidar-derived AODs, respectively.

#### 4 Lidar/sun-photometer-derived aerosol mass concentration

For aviation safety and for modeling purposes, the main goal is to estimate AMC, this value and its uncertainty being extremely relevant for the risk assessment on aircraft engines.

According to the British Civil Aviation Authority, 2012, based on the Met Office's Volcanic Ash Advisory Centre (<http://www.metoffice.gov.uk/aviation/vaac/>) simulation data, the following thresholds have been established following the 2010 Eyjafjallajökull eruption:

**Table 1.** Summary of the main characteristics of volcanic ash layers detected over Lille. The range of the layer, extinction  $\sigma_{a,ext}$ , its uncertainty  $\Delta\sigma_{a,ext}$ , and AMC estimation are given for the relative maximum concentration detected in the profile.  $\tau$  and  $\tau_{ash}$  are, respectively, aerosol optical depth for the total atmospheric column and ash layer.

Date	Time (UTC)	Range (m)	$\sigma_{a,ext}$ (km <sup>-1</sup> )	$\Delta\sigma_{a,ext}$ (km <sup>-1</sup> )	$\tau$	$\tau_{ash}$	AMC ( $\mu\text{g m}^{-3}$ )
17/04	07.00	1410	0.132	0.026	0.180	0.030	214
17/04	12.00	1650	0.013	0.003	0.125	0.004	21
17/04	19.00	1100	0.344	0.069	0.250	0.121	558
18/04	08.00	1440	0.526	0.105	0.370	0.238	854
18/04	11.00	1680	0.654	0.131	0.530	0.376	1061
06/05	16.75	4125	0.036	0.007	0.520	0.010	58
06/05	17.75	4170	0.028	0.006	0.360	0.006	45
14/05	09.00	2760	0.330	0.066	0.200	0.114	536
14/05	10.00	2820	0.313	0.063	0.210	0.106	508
15/05	06.75	2895	0.253	0.051	0.330	0.100	411
17/05	14.60	3555	0.110	0.022	0.230	0.121	179
18/05	11.50	3720	0.260	0.052	0.230	0.165	422
19/05	08.00	2655	0.124	0.025	0.120	0.044	201
19/05	15.00	2355	0.080	0.016	0.150	0.020	130
19/05	19.00	1845	0.101	0.020	0.130	0.051	164
20/05	05.00	2205	0.154	0.031	0.185	0.118	250

- low density: airspace with volcanic ash concentrations equal to or less than 2000  $\mu\text{g m}^{-3}$ ;
- medium density: airspace with volcanic ash concentrations ranging between 2000 and 4000  $\mu\text{g m}^{-3}$ ;
- high density: airspace with volcanic ash concentrations equal to or greater than 4000  $\mu\text{g m}^{-3}$ .

Since the amount of information provided by the micro-lidar system is not self-sufficient, the determination of AMC from the lidar-derived extinction coefficient within the ash layer requires in general some knowledge/assumptions on the ash VSD as well as on the mass density of the ash particles. The methodology and AMC peak values estimated for a selection of dates in April and May are presented in the following sections.

#### 4.1 Methodology

This section focuses on relating optical extinction derived from remote sensing retrievals based on lidar and sun photometer to the AMC. The specific extinction coefficient is a parameter of particular interest in this case since AMC estimates can be derived from the extinction coefficient by applying an agreed value of the volcanic ash specific extinction. Existing estimates of the specific extinction for volcanic ash are ranging from 0.5 m<sup>2</sup> g<sup>-1</sup> to 1.1 m<sup>2</sup> g<sup>-1</sup> (Ansmann et al., 2010; Johnson et al., 2012a). In the present work an alternative approach is considered, given the fact that aerosol microphysical properties are available from AERONET data (version 2, Level 2), specifically the VSD that is linked to number size distribution,  $n(r)$ , RI, and NSF. The uncertainty on AMC is therefore mainly driven by the uncertainty of the

lidar-derived extinction profiles, aerosol density, size distribution and RI. For the sake of simplicity, the cross section  $\pi r^2 Q_{ext}$  for spherical particles was computed using Mie theory in order to link lidar-derived extinction coefficient  $\sigma_{a,ext}$  to the size distribution available from AERONET (Eq. 4),

$$\sigma_{a,ext}(z, \lambda) = \int_{r_{min}}^{r_{max}} \pi r^2 Q_{ext}(r, m, \lambda) \cdot n(r, z) dr \quad (4)$$

In Eq. (4) the size distribution  $n(r, z)$  at any altitude  $z$ , is, under certain assumptions, simply linked to ash volume concentration and, given the particle density, to the mass concentration AMC ( $\mu\text{g m}^{-3}$ ). For the ash VSD this paper considers, as described by Derimian et al. (2012), the VSD computed from the difference between afternoon and morning size distribution for 17 April (Fig. 3). Since the ash VSD was mostly dominated by coarse-mode particles, VSD was described by a mono-modal log-normal distribution with three parameters,  $r_{mc}$ ,  $\sigma_c$  and  $N_c$  – modal radius, width and number concentration (m<sup>-3</sup>), respectively. The complex RI retrieved from AERONET inversions of 1.55–0.01*i* was used. The shape ( $r_{mc}$ ,  $\sigma_c$ ) of the size distribution is fixed ( $r_{mc} = 1.5 \mu\text{m}$  with a standard deviation of  $\sigma_c = 0.7$ ), as given by AERONET inversions for the evening of 17 April. By dividing this VSD into  $n(r) = n_0 n_1(r)$ , where  $n_1$  is the normalized VSD and  $n_0$  the amplitude, and using a density of particles ( $\rho$ ), one can retrieve the AMC as follows:

$$\text{AMC} = \frac{4}{3} \sigma_{a,ext} \int_{r_{min}}^{r_{max}} \frac{\rho(r) \cdot r^3 n_1(r)}{\int_{r_{min}}^{r_{max}} Q_{ext}(m, r, \lambda) \cdot n_1(r) \cdot r^2 dr} dr \quad (5)$$

The uncertainty on the shape of VSD is difficult to assess (Dubovik et al., 2002b); however, an estimate can

**Table 2.** Uncertainty sources and relative impact on AMC estimation. The extinction uncertainty contains both instrumental (overlap, noise, etc.) and inversion method (lidar ratio, reference altitude) errors. The total error on AMC is calculated in case of independent error sources.

Source	Uncertainty	Impact on AMC
$r_{mc}$	15 %	20 %
$\sigma_c$	10 %	8 %
RI	0.05	< 2 %
density	20 %	20 %
shape	–	< 10 %
$\sigma_{a,ext}$	20 %	20 %
Total	–	40 %

be obtained from the variability of these parameters using AERONET inversions available for 18 April. Variability on the modal radius is found to be around 15 %, thus yielding around 20 % variability on the AMC, whereas the observed 10 % variability of the width of the size distribution yields a variability of 8 % on the AMC. An estimation of the impact of an absolute error of 0.05 on RI when computing AMC was found to be of about 1–2 %.

The conversion from number size distribution or volume size distribution to AMC requires an estimation of aerosol density. In the case of volcanic ash, a realistic value for aerosol density ranges between 0.7 to 3 g cm<sup>-3</sup> (<http://volcanoes.usgs.gov/ash/properties.html>). The mass density mainly depends on the morphology and composition of aerosols. However, for its conversion to mass concentration, as many authors did (Schumann et al., 2011; Ansmann et al., 2011), the value of 2.6 g cm<sup>-3</sup> has been considered in the present calculations. Density also depends on porosity of particles, which is not a very well known factor. Based on the recent literature (Ansmann et al., 2011), an uncertainty of 0.5 g cm<sup>-3</sup> or 20 % is assumed. Additionally, we evaluated the bias introduced by assuming spherical particles in Eq. (4) instead of non-spherical particles in the current approach. The AMC has been estimated from the extinction coefficient with a VSD for spherical particles model in one case and non-spherical particles model in the other case. The shape difference biases by less than 10 % the AMC estimate, considered acceptable, regarding other error sources such as assumption on density. Assuming these errors to be independent, a root sum of squares approach gives an overall uncertainty of 40 %. Given that uncertainties related to the RI, shape, and density could be interlinked, the worst case error can be of about 60 %. Therefore, according to the results of this study, one can state that a reasonable estimate regarding the overall average uncertainty is close to 50 %. The different uncertainty sources and the total error estimation are summarized in Table 2.

Finally, the interpretation of apparent ash extinction in terms of mass is complicated by the uncertainty on atmospheric humidity. The water on ash particles amplifies the scattering signal, which can yield a large overestimate of the derived mass of about 50 %.

In the present analysis, ash properties (VSD, RI, LR) are assumed to have remained constant during April and May 2010. Some authors (Schuman et al., 2011) pointed out that in May, volcanic ash (sulfate–ash mixture) very likely had different properties than in April (mostly ash, sulfate being formed a few days later). The AERONET size distribution retrieved for 19 May and the morning of 20 May also exhibits a large coarse mode (centered around 1.5–1.7  $\mu\text{m}$ ) and lower RI around 1.50 – a value more consistent with additional sulfate contribution. However, since the contribution of volcanic aerosol was becoming low (AOD equals 0.25 or less at 440 nm), AERONET parameters were less accurate and could not be used for the AMC estimate.

## 4.2 Results

In this section the main characteristics of the ash plumes tracked over Lille are presented. The estimates of AMC (Table 1) provide a reasonably accurate indicator of the difference between AMC and the 2000  $\mu\text{g m}^{-3}$  hazard threshold used by aviation. AMC are estimated during daytime due to the obvious limitation of the sun-photometer/lidar combination. Results summarized in Table 1 show that the highest concentration peaks were estimated for 17/18 April, with values reaching about 1000  $\mu\text{g m}^{-3}$  ( $\pm 50\%$ ), whereas in May the AMCs were found to be generally lower (maximum of about 550  $\mu\text{g m}^{-3}$ ). After 20 May no more ash was detected due to the significant decrease of eruptive activity.

Although ash retrievals were first performed only during daytime, Fig. 5 shows that during nighttime, the ash AMC was certainly higher on 17 April around 23:00 UTC. An estimate of AMC during nighttime has therefore been performed and is detailed below. In Sect. 3 we described how the sun-photometer AOD is used to retrieve the extinction profiles and LR during the daytime processing. However, since no sun-photometer data are available during nighttime, a prescribed LR for ash ( $LR_{AL} = 48$  sr) and LR for boundary layer ( $LR_{PBL}$ ) have been used to derive extinction profiles during nighttime. In order to minimize the impact of this a priori assumption, the last  $LR_{PBL}$  retrieved using the AERONET AODs from the evening and the first  $LR_{PBL}$  from the morning were used. These assumptions remain reasonably valid when there is no significant change in the aerosol properties between the two inversion times (daytime and nighttime, as considered here). Usually, the AERONET AOD measurements are available a short time before (after) sunset (sunrise). Therefore, this approach allowed the derivation of AOD during nighttime through the vertical integration of extinction coefficient provided by lidar. Good matching values of the lidar-derived AOD before and after midnight (based on

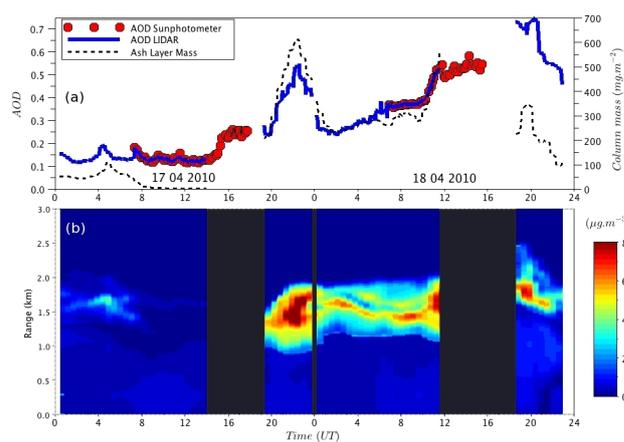
last and first AERONET AOD from two successive days) can be used as an indicator of the approach's validity. According to these results (Fig. 8a), the continuity criterion on AOD was well satisfied for observations on the 17 and 18 April. The AOD peak reached a value of 0.55 at 532 nm, observed at 23:00 UTC, representing more than double the daytime maximum AOD (0.27). All nighttime extinction profiles were inverted to estimate AMC. Figure 8b shows a 2-D picture of AMC obtained from accumulation of all inverted profiles from 16 to the 18 April. More precisely, for atmospheric layers higher than 1.5 km and affected by volcanic ash, the coarse mode described in the previous section for converting extinction to AMC was considered, while for altitudes below 1.5 km, only fine-mode particles with urban pollution aerosol density ( $1.7 \text{ g cm}^{-3}$ ) were considered (Sloane, 1984; Royer et al., 2011).

Nighttime AODs of 17 April show a quite strong gradient within a couple of hours around the ash peak (0.5 for AOD). After midnight (morning of 18 April) the ash layer rapidly became less dense, with AOD values reaching 0.4 just before sunrise, but still being about 2 times higher than on 17 April at sunrise. It can be noticed (not shown in Fig. 8) that on 17 April before sunset and on 18 April after sunrise, AE remained very similar (0.7), which is very consistent with the assumption that aerosol properties did not vary strongly during the night. This estimate is certainly less accurate during nighttime because of assumptions made on the LR profile. However, day/night AOD continuity is good and therefore demonstrates the quality of the results and the validity of this approach.

On 14 May a high AMC value was estimated for the early morning. According to Fig. 5, similar peaks of concentration might also have been present on 15 May in the afternoon. However, cloud layers prevented joint sun-photometer/lidar inversions.

On 18 May a high AMC close to  $420 \mu\text{g m}^{-3}$  was estimated for the morning (11:30 UTC) at 3.7 km, corresponding to an extinction coefficient close to  $0.26 \text{ km}^{-1}$  (Table 1 and Fig. 7). The extinction profile for 18 May is presented in Fig. 7 and shows an ash plume at 3 km height with an extinction peak close to  $0.15 \text{ km}^{-1}$  which has an equivalent AMC of  $240 \mu\text{g m}^{-3}$  ( $\pm 50\%$ ). Weber et al., (2012) reported measurements of PM10 concentrations (airborne in situ measurements) reaching  $260 \mu\text{g m}^{-3}$  at the same altitude, the measurements being performed near the Dutch–German border, for the same time frame. Even though the distance to Lille was about 250 km, the North of France, Belgium, The Netherlands and Germany were areas where Met Office forecasts predicted that volcanic ash might be encountered in concentrations larger than  $200 \mu\text{g m}^{-3}$ . Therefore, the estimates presented in this study can be considered as quite consistent with in situ measurements.

Figure 9 presents a picture taken during a regional flight with a small aircraft over the Lille region on 19 May. The grey ash layer can be seen very clearly. For that day the esti-



**Fig. 8.** Time series of (b) AMC and (a) lidar-retrieved AOD at 532 nm (in blue line), AERONET AOD at 532 nm (in red) and integrated mass in  $\text{mg m}^{-3}$  (in black dash line) over Lille from 17 to 18 April 2010.

mate of AMC for the morning after sunrise (08:00 UTC) gave a value of  $200 \mu\text{g m}^{-3}$  (Table 1). According to our observations, after 20 May 2010 no more volcanic ash was detected.

## 5 Conclusions

Thanks to routine daytime lidar and sun-photometer observations and nighttime lidar observations, several volcanic ash plumes have been tracked over Lille during Eyjafjallajökull's eruptive period. The present analysis shows that during at least 22 days, atmospheric layers originating from Iceland and detected over Lille region exhibited variable ash concentrations that were estimated up to a maximum of  $1000 \mu\text{g m}^{-3}$  (uncertainty 50 %) at the beginning of the period. However, high concentrations were measured on the night of 17 April, but remained below the  $2000 \mu\text{g m}^{-3}$  aviation hazard limit.

The work presented firstly demonstrated that intrusions of non-spherical particles, mostly affecting the coarse-mode part of the VSD, were observed from Lille AERONET data. The analysis of the retrieved AERONET VSD shows an increase of the coarse-mode concentration for particle radius to around  $1.5\text{--}2 \mu\text{m}$ . The real part of RI also increased from 1.46 to 1.55, providing confirmation of change in the atmospheric column. Secondly, thanks to lidar/sun-photometer joint inversion, AMC over Lille has been derived and results show that AMC never exceeded the air traffic hazard limit ( $2000 \mu\text{g m}^{-3}$ ) in Lille. This study contributes to demonstrating the relevance of such observation systems for aerosol monitoring and characterization, especially in such hazardous situations. The monitoring and processing system developed by LOA provides now, in a routine manner, near-real-time (NRT) aerosol extinction profiles as well as effective LR. Following the Eyjafjallajökull volcanic eruption, the



**Fig. 9.** Volcanic ash layer (grey layer in the horizon direction) at around 2.5 km altitude and close to Lille city, 19 May 2010 (courtesy from Y. Karol and C. Verwaerde, LOA).

processing system was implemented and provides more detailed information. The concept of the processing system developed can be the basis of network composed of sun/sky photometers and CIMEL or similar automatic micro-lidars. Moreover, in the future, night lidar observations can be completed by AOD measured by moon photometer recently developed by CIMEL and currently under validation (Barreto et al., 2013).

Although less accurate than the multiwavelength Raman lidar, the micro-lidar has the great advantage of being quite automatic and robust. Furthermore, advanced joint sun-photometer/lidar inversion schemes are currently being developed and implemented by LOA, in cooperation with LOSM/BAS (Lopatsin et al., 2012). This new approach called GARRLIC (Generalized Aerosol Retrieval from Radiometer and Lidar Combined data) and proposed in the framework of the ACTRIS project (Aerosol Cloud and TRace gas Infra Structure, [www.actris.com](http://www.actris.com)) will be very useful in combining multispectral lidar and sun/sky photometer (AOD + Almucantar; Chaikovsky et al., 2010, 2012).

For the current case (single wavelength lidar + sun/sky photometer), the implementation of GARRLIC will not result in major changes as expected from a multiwavelength lidar, but will improve the accuracy of aerosol extinction profile, and the whole archive will be reprocessed. At French national level, ORAURE (*Observations en Réseaux des Aérosols à Usage de Recherches Environnementales*), a recent initiative supported by CNRS-INSU, will design an observing system merging and managing sun photometers, lidars and in situ data networks.

**Acknowledgements.** This study was supported by CNRS-INSU, CNES, Lille 1 University and Région Nord-Pas de Calais and FP6/Mobility program under the Marie-Curie project TOTECAT. Authors are very grateful to AERONET (<http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>) team and NOAA HYSPLIT Air Resource Laboratory model (<http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>).

The authors want to thank CNRS-DRI for supporting cooperation with Belarus Academy of Science.

Edited by: M. King



The publication of this article is financed by CNRS-INSU.

## References

- Ajtai, N., Stefanie, H., Stoian, L. C., and Oprea, M. G.: The volcanic ash and its impact on European air transport industry: A case study on the detection and impact of the the Eyjafjallajökull volcanic ash plume over North-Western Europe between 14 and 21 April 2010, *AES Bioflux*, 2, 57–68, 2010.
- Ansmann, A., Tesche, M., Groß, S., Freudenthaler, V., Seifert, P., Hiebsch, A., Schmidt, J., Wandinger, U., Mattis, I., Müller, D., and Wiegner, M.: The 16 April 2010 major volcanic ash plume over central Europe: EARLINET LIDAR and AERONET photometer observations at Leipzig and Munich, Germany, *Geophys. Res. Lett.*, 37, L13810, doi:10.1029/2010GL043809, 2010.
- Ansmann, A., Tesche, M., Seifert, P., Groß, S., Freudenthaler, V., Apituley, A., Wilson, K. M., Serikov, I., Linné, H., Heinold, B., Hiebsch, A., Schnell, F., Schmidt, J., Mattis, I., Wandinger, U., and Wiegner, M.: Ash and fine-mode particle mass profiles from EARLINET AERONET observations over central Europe after the eruptions of the Eyjafjallajökull volcano in 2010, *J. Geophys. Res.*, 116, D00U02, doi:10.1029/2010JD015567, 2011.
- Barreto, A., Cuevas, E., Damiri, B., Guirado, C., Berkoff, T., Berjón, A. J., Hernández, Y., Almansa, F., and Gil, M.: A new method for nocturnal aerosol measurements with a lunar photometer prototype, *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 585–598, doi:10.5194/amt-6-585-2013, 2013.
- Campbell, J. R., Hlavka, D. L., Welton, E. J., Flynn, C. J., Turner, D. D., Spinhirne, J. D., Scott, V. S., and Hwang, I. H.: Full-time, Eye-Safe Cloud and Aerosol LIDAR Observation at Atmospheric Radiation Measurement Program Sites: Instrument and Data Processing, *J. Atmos. Oceanic Technol.*, 19, 431–442, 2002.
- Catrrall, C., Reagan, J., Thome, K., and Dubovik, O.: Variability of aerosol and spectral lidar and backscatter and extinction ratios of key aerosol types derived from selected Aerosol Robotic Network locations, *J. Geophys. Res.*, 110, D10S11, doi:10.1029/2004JD005124, 2005.
- Chaikovsky A., Dubovik, O., Goloub, P., Tanre, D., Lopatsin, A., Denisov, S., Lapyonok, T., and Karol., Y.: The retrieval of aerosol

- microphysical properties in the vertical column using combined LIDAR/photometer data: a step to integrating photometer and LIDAR networks, Proceedings of the 25th International Laser Radar Conference, St. Petersburg, 5–9 July 2010, 1087–1091, 2010.
- Chaikovsky, A., Dubovik, O., Goloub, P., Tanré, D., Pappalardo, G., Wandinger, U., Chaikovskaya, L., Denisov, S., Grudo, Y., Lopatsin, A., Karol, Y., Lapyonok, T., Korol, M., Osipenko, F., Savitski, D., Slesar, A., Apituley, A., Alados Arboledas, L., Biniotoglou, I., Comeron, A., Kokkalis, P., Granados Muñoz, M., Papayannis, A., Perrone, M. R., Pietruczuk, A., De Tomasi, F., Wagner, J., and Wang, X.: Algorithm and Software for the retrieval of vertical aerosol properties using combined LIDAR/radiometer data: dissemination in EARLINET Network, 26th International Laser Radar Conference, Porto Heli, Peloponnesus, Greece on 25–29 June, 339–402, 2012.
- Chazette, P., Bocquet, M., Royer, P., Winiarek, V., Raut, J. C., Labazuy, P., Gouhier, M., Lardier, M., and Cariou, J. P.: Eyjafjallajökull ash concentrations derived from both lidar and modeling, *J. Geophys. Res.*, 117, D00U14, doi:10.1029/2011JD015755, 2012.
- Derimian, Y., Dubovik, O., Tanre, D., Goloub, P., Lapyonok, T., and Mortier, A.: Radiative forcing of mixed aerosols: a case study of the Eyjafjallajökull volcano ash layer observed over Lille in 2010, *J. Geophys. Res.*, 117, D00U25, doi:10.1029/2011JD016815, 2012.
- Dubovik, O. and King, M. D.: A flexible inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from Sun and sky radiance measurements, *J. Geophys. Res.*, 105, 20673–20696, 2000.
- Dubovik, O., Holben, B. N., Lapyonok, T., Sinyuk, A., Mishchenko, M. I., Yang P., and Slutsker, I.: Non-spherical aerosol retrieval method employing light scattering by spheroids, *Geophys. Res. Lett.*, 29, 541–544, 2002a.
- Dubovik, O., Holben, B. N., Eck, T. F., Smirnov, A., Kaufman, Y. J., King, M. D., Tanre, D., and Slutsker, I.: Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations, *J. Atmos. Sci.*, 59, 590–608, 2002b.
- Dubovik, O., Sinyuk, A., Lapyonok, T., Holben, B. N., Mishchenko, M., Yang, P., Eck, T. F., Volten, H., Muñoz, O., Veihelmann, B., Van Der Zande, W. J., Leon, J. F., Sorokin, M., and Slutsker, I.: Application of spheroid models to account for aerosol particle nonsphericity in remote sensing of desert dust, *J. Geophys. Res.*, 111, D11208, doi:10.1029/2005JD006619, 2006.
- Fernald, F. G.: Analysis of atmospheric LIDAR observations: Some comments, *Appl. Opt.*, 23, 652–653, 1984.
- Flentje, H., Heese, B., Reichardt, J., and Thomas, W.: Aerosol profiling using the ceilometer network of the German Meteorological Service, *Atmos. Meas. Tech. Discuss.*, 3, 3643–3673, doi:10.5194/amtd-3-3643-2010, 2010.
- Groß S., Gasteiger, J., Freudenthaler, V., Schnell, F., and Wiegner, M.: Characterization of the Eyjafjallajökull ash-plume by means of LIDAR measurements over the Munich EARLINET-site, *Proc. SPIE 7832, P. Soc. Photo.-Opt. Ins.*, SPIE 78320M, doi:10.1117/12.869020, 2010.
- Guffanti, M., Mayberry, G. C., Casadevall, T. J., and Wunderman, R.: Volcanic Hazards to airports, *Natural Hazards (Special Issue on Aviation Hazards from Volcanoes)*, *Natural Hazards*, 51, 287–302, 2009.
- Holben, B. N., Eck, T. F., Slutsker, I., Tanre, D., Buis, J. P., Setzer, A., Vermote, E., Reagan, J. A., Kaufman, Y., Nakajima, T., Lavenue, F., Jankowiak, I., and Smirnov, A.: AERONET – A federated instrument network and data archive for aerosol characterization, *Remote Sens. Environ.*, 66, 1–16, 1998.
- Holben, B. N., Tanre, D., Smirnov, A., Eck, T. F., Slutsker, I., Abuhassan, N., Newcomb, W. W., Schafer, J., Chatenet, B., Lavenue, F., Kaufman, Y. J., Van De Castle J., Setzer, A., Markham, B., Clark, D., Frouin, R., Halthore, R., Karnieli, A., O’Neill, N. T., Pietras, C., Pinker, R. T., Voss, K., and Zibordi, G.: An emerging ground-based aerosol climatology: Aerosol Optical Depth from AERONET, *J. Geophys. Res.*, 106, 12067–12097, 2001.
- Johnson, B., Turnbull, K., Brown, P., Burgess, R., Dorsey, J., Baran, A. J., Webster, H., Haywood, J., Cotton, R., Ulanowski, Z., Hesse, E., Woolley, A., and Rosenberg, P.: In situ observations of volcanic ash clouds from the FAAM aircraft during the eruption of Eyjafjallajökull in 2010, *J. Geophys. Res.*, 117, D00U24, doi:10.1029/2011JD016760, 2012a.
- Johnson, M. S., Meskhidze, N., and Kiliyanpilakilli, V. P.: A global comparison of GEOS-Chem-predicted and remotely-sensed mineral dust aerosol optical depth and extinction profiles, *J. Adv. Model. Earth Syst.*, 4, M07001, doi:10.1029/2011MS000109, 2012b.
- Kaaden, N., Massling, A., Schladitz, A., Müller, T., Kandler, K., Schütz, L., Weinzierl, B., Petzold, A., Tesche, M., Leinert, S., Deutscher, C., Ebert, M., Weinbruch, S., and Wiedensohler, A.: State of mixing, shape factor, number size distribution, and hygroscopic growth of the Saharan anthropogenic and mineral dust aerosol at Tinfou, Morocco, *Tellus*, 61B, 51–63, doi:10.1111/j.1600-0889.2008.00388.x, 2008.
- Klett, J. D.: Stable analytical inversion solution for processing LIDAR returns, *Appl. Opt.*, 20, 211–220, 1981.
- Léon, J.-F., Derimian, Y., Chiapello, I., Tanré, D., Podvin, T., Chatenet, B., Diallo, A., and Deroo, C.: Aerosol vertical distribution and optical properties over M’Bour (16.96° W; 14.39° N), Senegal from 2006 to 2008, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 9249–9261, doi:10.5194/acp-9-9249-2009, 2009.
- Lopatsin, A., Dubovik, O., Chaikovsky, A., and Goloub, P.: An algorithm for enhanced characterization of atmospheric aerosols using combination of active and passive remote observations, NATO advanced study Institute “Special Detection Technique (Polarimetry) and Remote Sensing”, Kiev, 12–25, 2010.
- Lopatsin, A., Dubovik, O., Chaikovsky, A., and Goloub, P.: Exploring the synergy of active and passive remote observations for enhancement of atmospheric aerosol remote sensing, *IRS2012-457*, Berlin, Germany, 2012.
- Mattis, I., Siefert, P., Müller, D., Tesche, M., Hiebsch, A., Kanitz, T., Schmidt, J., Finger, F., Wandinger, U., and Ansmann, A.: Volcanic aerosol layers observed with multi-wavelength Raman LIDAR over central Europe in 2008–2009, *J. Geophys. Res.*, 115, D00L04, doi:10.1029/2009JD013472, 2010.
- Marshak, A., Knyzaikhin, Y., Evans, K. D., and Wiscombe, W. J.: The “RED versus NIR” Plane to Retrieve Broken-Cloud Optical Depth from Ground-Based Measurements, *J. Atmos. Sci.*, 61, 1911–1925, 2004.
- Mona, L., Amodeo, A., D’Amico, G., Giunta, A., Madonna, F., and Pappalardo, G.: Multi-wavelength Raman lidar observations of the Eyjafjallajökull volcanic cloud over Potenza, southern Italy, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 2229–2244, doi:10.5194/acp-12-2229-

- 2012, 2012.
- Mortier, A., Goloub, P., Holben, B., Podvin, T., Blarel, L., Verwaerde, C., Karol, Y., Slutsker, I., Balois, J.-Y., Tanre, D., Berkoff, T., Victori, S., and Mathieu, R.: Aerosol Spatial Distribution during DRAGON experiment as seen by a mobile ground-based LIDAR-sunphotometer system-Preliminary results, Reviewed and revised papers of the 26th International Lidar Radar Conference, Porto Heli, Peloponnesus, Greece on 25–29 June, 411–414, 2012.
- Pelon, J., Mallet, M., Mariscal, A., Goloub, P., Tanré, D., Bou Karam, D., Flamant, C., Haywood, J., Pospichal, B., and Victori, S.: Characterization of Biomass burning aerosol from microLIDAR observation at Djoudou (Benin) during AMM-SOP0/DABEX, *J. Geophys. Res.*, 113, D00C18, doi:10.1029/2008JD009976, 2008.
- Pueschel, R. F., Livingston, J. M., Ferry, G. V., and DeFelice, T. E.: Aerosol abundances and optical characteristics in the pacific basin free troposphere, *Atmos. Environ.*, 28, 951–960, 1994.
- Randriamiarisoa, H., Chazette, P., Couvert, P., Sanak, J., and Mégie, G.: Relative humidity impact on aerosol parameters in a Paris suburban area, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 1389–1407, doi:10.5194/acp-6-1389-2006, 2006.
- Royer, P., Chazette, P., Sartelet, K., Zhang, Q. J., Beekmann, M., and Raut, J.-C.: Comparison of lidar-derived PM<sub>10</sub> with regional modeling and ground-based observations in the frame of MEGAPOLI experiment, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 10705–10726, doi:10.5194/acp-11-10705-2011, 2011.
- Russell, P. B., Swissier, J. T., and McCormick, P. M.: Methodology for error analysis and simulation of LIDAR aerosol measurements, *Appl. Opt.*, 18, 3783–3797, 1979.
- Schumann, U., Weinzierl, B., Reitebuch, O., Schlager, H., Minikin, A., Forster, C., Baumann, R., Sailer, T., Graf, K., Mannstein, H., Voigt, C., Rahm, S., Simmet, R., Scheibe, M., Lichtenstern, M., Stock, P., Rüba, H., Schäuble, D., Tafferner, A., Rautenhaus, M., Gerz, T., Ziereis, H., Krautstrunk, M., Mallaun, C., Gayet, J.-F., Lieke, K., Kandler, K., Ebert, M., Weinbruch, S., Stohl, A., Gasteiger, J., Groß, S., Freudenthaler, V., Wiegner, M., Ansmann, A., Tesche, M., Olafsson, H., and Sturm, K.: Airborne observations of the Eyjafjalla volcano ash cloud over Europe during air space closure in April and May 2010, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 2245–2279, doi:10.5194/acp-11-2245-2011, 2011.
- Schuster, G. L., Vaughan, M., MacDonnell, D., Su, W., Winker, D., Dubovik, O., Lapyonok, T., and Trepte, C.: Comparison of CALIPSO aerosol optical depth retrievals to AERONET measurements, and a climatology for the lidar ratio of dust, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 7431–7452, doi:10.5194/acp-12-7431-2012, 2012.
- Sigmundsson, F., Hreinsdóttir, S., Hooper, A., Árnadóttir, T., Pedersen, R., Roberts, M. J., Ó’skarsson, N., Auriac, A., Decriem, J., Einarsson, P., Geirsson, H., Hensch, M., Ófeigsson, B. G., Sturkell, E., Sveinbjörnsson, H., and Feigl, K. L.: Intrusion triggering of the 2010 Eyjafjallajökull explosive eruption, *Nature*, 468, 426–430, doi:10.1038/nature09558, 2010.
- Sloane, C. S.: Optical properties of aerosols of mixed composition, *Atmos. Environ.*, 18, 871–878, 1984.
- Weber, K., Eliasson, J., Vogel, A., Fischer, C., Pohl, T., van Haren, G., Meier, M., Grobety, B., and Dahmann, D.: Airborne in-situ investigations of the Eyjafjallajökull volcanic ash plume on Iceland and over north-western Germany with light aircrafts and optical particle counters, *Atmos. Environ.*, 48, 9–21, doi:10.1016/j.atmosenv.2011.10.030, 2011.
- Weitkamp, C.: Lidar – Range-Resolved Optical Remote Sensing of the Atmosphere, Springer, 133 pp., 2005.
- Welton, E. J., Voss, K. J., Gordon, H. R., Maring, H., Smirnov, A., Holben, B. N., Schmid, B., Livingston, J. M., Russell, P. B., Durkee, P. A., Formenti, P., and Andreae, M. O.: Ground-based LIDAR measurements of aerosols during ACE-2: instrument description, results, and comparisons with other ground-based and airborne measurements, *Tellus*, 52, 635–650, 2000.
- Wiegner, M., Gasteiger, J., Groß, S., Schnell, F., Freudenthaler, V., and Forkel, R.: Characterization of the Eyjafjallajökull ash-plume: Potential of LIDAR remote sensing, *Phys. Chem. Earth*, 45–46, 79–86, doi:10.1016/j.pce.2011.01.006, 2011.

## 3.6 Impact radiatif

Un des principaux enjeux des sciences de l'atmosphère demeure une meilleure estimation du forçage radiatif des aérosols, encore contraint à de fortes incertitudes (Figure 1.7 page 18). La répartition verticale, qui peut influencer plus ou moins selon l'absorption des particules (Guan et al. (2010)), sur le calcul du forçage radiatif n'est pas souvent renseignée de manière précise dans les codes de transfert radiatif, mais est plutôt issue de modèles, ou de données climatologiques.

Nous présentons, dans cette section, les résultats issus d'un calcul précis du forçage radiatif des aérosols, à partir du code de transfert radiatif GAME (Global Atmospheric Model, Dubuisson et al. (1996)), alimenté par les propriétés microphysiques et optiques issues des inversions photométriques d'une part, et par les profils d'extinction provenant de l'inversion des données lidar d'autre part, sur l'ensemble de la période conjointe d'observation lidar/photomètre.

### 3.6.1 Définitions

Le forçage radiatif<sup>4</sup> (effet direct) des aérosols  $\Delta F$  correspond à la différence des flux nets d'énergie (différence entre flux montant et descendant) entre une atmosphère contenant des aérosols,  $F^A$ , et une atmosphère claire (en terme de particules),  $F^C$  :

$$\Delta F = (F^{\downarrow A} - F^{\uparrow A}) - (F^{\downarrow C} - F^{\uparrow C}) \quad (3.5)$$

où les flèches  $\uparrow$  et  $\downarrow$  indiquent, respectivement les flux montant et descendant.

Au sommet et à la base de l'atmosphère (BOA et TOA), les forçages respectifs,  $\Delta F_{BOA}$  et  $\Delta F_{TOA}$ , s'expriment comme

$$\Delta F_{BOA} = (F_{BOA}^{\downarrow A} - F_{BOA}^{\downarrow C})(1 - SA) \quad (3.6)$$

où SA est l'albédo de surface et

$$\Delta F_{TOA} = F_{TOA}^{\uparrow C} - F_{TOA}^{\uparrow A} \quad (3.7)$$

La différence des forçages entre le sommet et la base de l'atmosphère est définie comme le forçage atmosphérique des aérosols,  $\Delta F_{atm}$ , qui correspond à la fraction radiative résiduelle dans l'atmosphère :

$$\Delta F_{Atm} = \Delta F_{TOA} - \Delta F_{BOA} \quad (3.8)$$

---

4. Le terme de forçage radiatif est utilisé pour des aérosols d'origine anthropique. Le terme de perturbation radiative est employé dans le cas d'aérosols naturels.

Un forçage atmosphérique positif indique un réchauffement global de l’atmosphère, tandis qu’un refroidissement sera, au contraire, relié à des valeurs négatives.

Dans le but d’étudier l’efficacité des aérosols, en terme de forçage radiatif, nous utilisons le paramètre d’efficacité du forçage radiatif,  $\Delta F^{eff}$ , qui permet de s’affranchir de la quantité d’aérosols. Il s’exprime comme le forçage radiatif correspondant à une épaisseur optique de 1 (à 550 nm) :

$$\Delta F^{eff} = \frac{\Delta F}{\tau_{550}} \quad (3.9)$$

Le taux d’échauffement,  $\frac{dT}{dt}$  (K.jour<sup>-1</sup>), est proportionnel à la dérivée spatiale du profil de forçage radiatif :

$$\frac{dT}{dt} = -\frac{1}{c_p \rho} \frac{dF}{dz} \quad (3.10)$$

où  $c_p$  est la capacité thermique massique (J · kg<sup>-1</sup> · K<sup>-1</sup>) et  $\rho$  la masse volumique de l’air (1,293 kg.m<sup>-3</sup>).

### 3.6.2 Méthodologie

Le calcul du forçage radiatif est réalisé, sur l’ensemble de la base de données, pour chaque journée pour laquelle les inversions photométriques et les inversions lidar sont toutes deux disponibles. L’observation simultanée permet de disposer d’un modèle précis de particules (caractérisé par l’indice de réfraction, la non sphéricité, la distribution en taille, ...) réparties selon un profil vertical (d’épaisseur optique, obtenu depuis les profils d’extinction) discriminé sur 10 niveaux d’altitude. Le code de transfert radiatif tient compte du type de surface qui joue un rôle essentiel dans l’estimation du forçage radiatif des aérosols (García et al. (2012)). L’albédo de surface, qui la caractérise, est modélisé à partir des valeurs climatologiques issues des observations de MODIS. La directionnalité de la réflectance est approchée par une fonction BRDF (Bidirectionnal Reflectance Distribution Function). L’absorption des principaux gaz impliqués est également considérée. La quantité de vapeur d’eau, H<sub>2</sub>O, (dont l’estimation est basée sur l’absorption différentielle à 0,94 µm) est fournie par AERONET. Des profils standards atmosphériques sont utilisés pour caractériser le CO<sub>2</sub>. Les profils verticaux d’ozone, O<sub>3</sub>, sont modulés par la concentration intégrée provenant de données climatologiques (moyennes mensuelles). Une description détaillée de l’utilisation du code de transfert radiatif est donnée par Derimian et al. (2012).

Nous présentons les résultats pour l’ensemble de la période d’observation conjointe lidar/photomètre. Afin d’estimer le forçage effectif des aérosols, nous nous intéressons

particulièrement au forçage intégré sur l'ensemble de la journée (et non au forçage instantané). Celui-ci correspond au forçage intégré sur un intervalle spectral allant de 0,2  $\mu\text{m}$  à 4  $\mu\text{m}$ .

### 3.6.3 Résultats

Sur la Figure 3.32 sont reportés les profils verticaux de forçage radiatif, qui laissent apparaître un cycle annuel. Les moyennes saisonnières de  $\Delta F$  sont synthétisées dans le Tableau 3.8 page ci-contre. Au niveau de la surface, le forçage  $\Delta F$  est maximal (en valeur absolue) au printemps, avec  $-12,72 \text{ W.m}^{-2}$  et minimal en hiver, avec  $-5,16 \text{ W.m}^{-2}$ . Les valeurs correspondantes au sommet de l'atmosphère y sont respectivement de  $-7,21 \text{ W.m}^{-2}$  et  $-2,80 \text{ W.m}^{-2}$ . Ces valeurs sont dans l'ordre de grandeur de celles données par Hervo (2013) qui indique, dans sa thèse, un forçage de  $-7,6 \text{ W.m}^{-2}$  pour les aérosols locaux du Puy de Dôme. Le calcul du forçage atmosphérique donne des valeurs positives, quelle que soit la saison et indique donc un réchauffement des couches atmosphériques. Les maximum et minimum se produisent également lors du printemps ( $5,51 \text{ W.m}^{-2}$ ) et de l'hiver ( $2,36 \text{ W.m}^{-2}$ ).

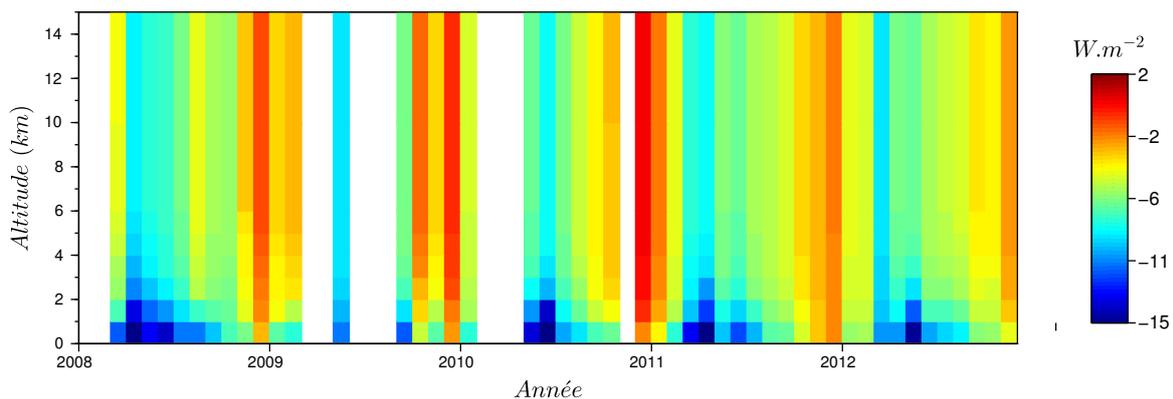


FIGURE 3.32 – Profils verticaux (moyennes mensuelles) du forçage radiatif, pour Lille, de 2008 à 2012.

La climatologie des propriétés intégrées verticales (section 3.3 page 85) démontre un cycle d'épaisseur optique,  $\tau$ , en phase avec les maximum et minimum de forçage radiatif calculé. Afin de s'affranchir de la variation de la quantité d'aérosols, nous présentons sur la Figure 3.33 les valeurs de l'efficacité du forçage radiatif à la base et au sommet de l'atmosphère. Un cycle annuel est toujours observé. Si le minimum a toujours lieu en hiver ( $-47,46 \text{ W.m}^{-2}$  à la surface et  $-24,43 \text{ W.m}^{-2}$  au sommet de l'atmosphère), le maximum est cependant retardé d'une saison. Il se déroule donc en été avec, à la surface, une efficacité de  $-76,03 \text{ W.m}^{-2}$  et au sommet de l'atmosphère de  $-40,21 \text{ W.m}^{-2}$ . Les valeurs de forçage

étant intégrées sur les journées complètes, celles-ci sont modulées par la durée du jour qui peut expliquer, en partie, le cycle observé.

L'albédo de surface varie peu au cours des saisons. Il prend, en général, des valeurs inférieures à 0,15. Nous constatons néanmoins deux pics positifs en novembre 2009 et novembre 2010 (probablement dus à des épisodes neigeux) auxquels sont associées les valeurs maximales de forçage (et d'efficacité). Ce résultat est cohérent avec ceux présentés par García et al. (2012) qui montrent que  $\Delta F_{TOA}$  peut même prendre des valeurs positives, dans le cas d'aérosols urbains, pour un albédo de surface compris entre 0,3 et 0,5.

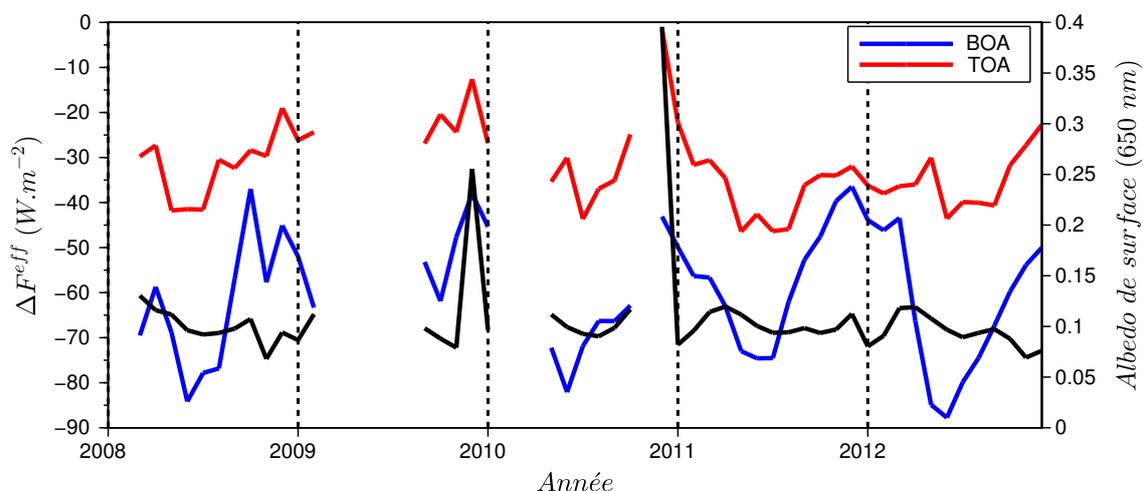


FIGURE 3.33 – Efficacité du forçage radiatif au sommet (en rouge) et à la base (en bleu) de l'atmosphère. L'albédo de surface à 650 nm est représenté par la ligne noire.

	Hiver	Printemps	Été	Automne
$\Delta F_{BOA}$	-5,16	-12,72	-10,92	-6,78
$\Delta F_{TOA}$	-2,80	-7,21	-5,90	-3,97
$\Delta F_{Atm}$	2,36	5,51	5,01	2,81
$\Delta F_{BOA}^{eff}$	-47,46	-65,33	-76,03	-54,59
$\Delta F_{TOA}^{eff}$	-24,43	-35,65	-40,21	-30,41
$\Delta F_{Atm}^{eff}$	23,03	29,70	35,82	24,18

TABLE 3.8 – Forçage radiatif et efficacité du forçage radiatif des aérosols ( $W.m^{-2}$ ), intégré sur la journée, en fonction de la saison.

Les profils verticaux de taux d'échauffement,  $\frac{dT}{dt}$ , sont présentés sur la Figure 3.34

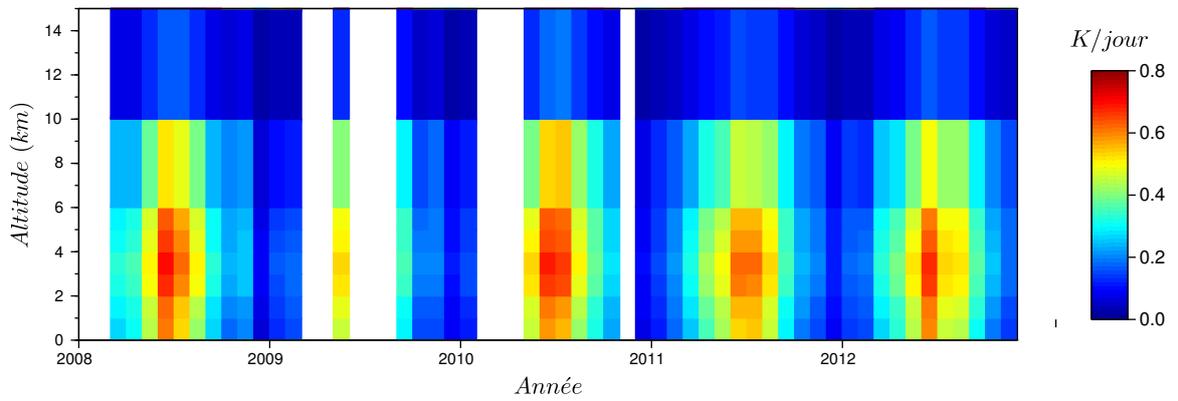
pour les différentes contributions atmosphériques (molécules, aérosols, total). Dans le cas où des profils standards aérosols sont utilisés dans les calculs de forçage radiatif, ce paramètre est plutôt indicatif. Disposant de la précise distribution verticale des particules pour l'ensemble des observations, nous présentons dans cette étude les profils réalistes d'échauffement verticaux.

La composante gazeuse est responsable d'un échauffement journalier quatre fois plus important l'été ( $0,51 \text{ K.jour}^{-1}$ ) que l'hiver ( $0,12 \text{ K.jour}^{-1}$ ), au niveau du sol (Tableau 3.9).

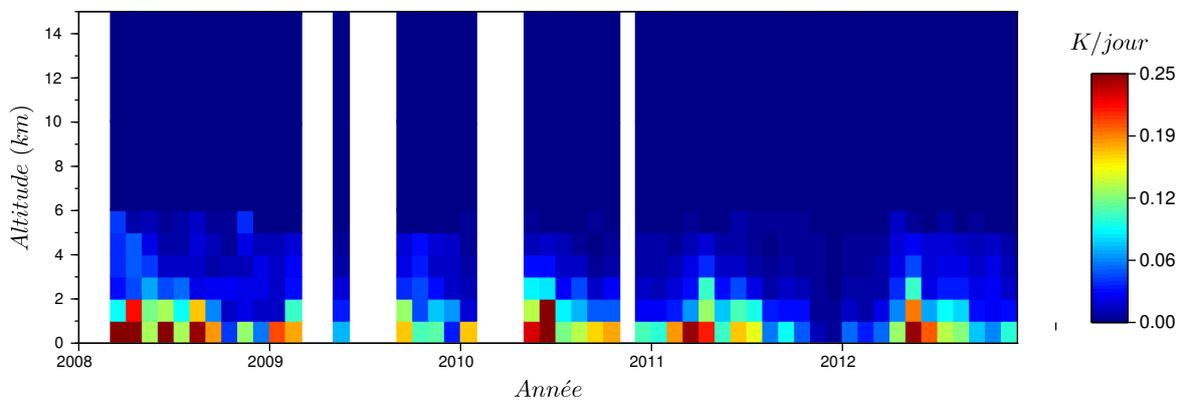
De part la distribution verticale des aérosols maximale dans les basses couches de l'atmosphère, nous retrouvons leur plus grande contribution au taux d'échauffement, au niveau de la surface. Les valeurs d'échauffement, à ce niveau, sont de  $0,19 \text{ K.jour}^{-1}$  au printemps (maximum) et  $0,10 \text{ K.jour}^{-1}$  en hiver et en automne. La contribution des aérosols au réchauffement des basses couches est donc maximale l'hiver puisqu'elle est de l'ordre de 50 % de l'échauffement total. Malgré sa valeur plus importante en été, sa contribution relative y est minimale ( $\approx 25 \%$ ). La durée du jour affectant de la même manière chacune des contributions atmosphériques, cette tendance peut être expliquée par la variation annuelle de la quantité des gaz atmosphériques.

	Hiver	Printemps	Été	Automne
$\frac{dT^{mol}}{dt}_{BOA}$	0,12	0,37	0,51	0,22
$\frac{dT^{aer}}{dt}_{BOA}$	0,10	0,19	0,18	0,10
$\frac{dT^{total}}{dt}_{BOA}$	0,22	0,55	0,69	0,33

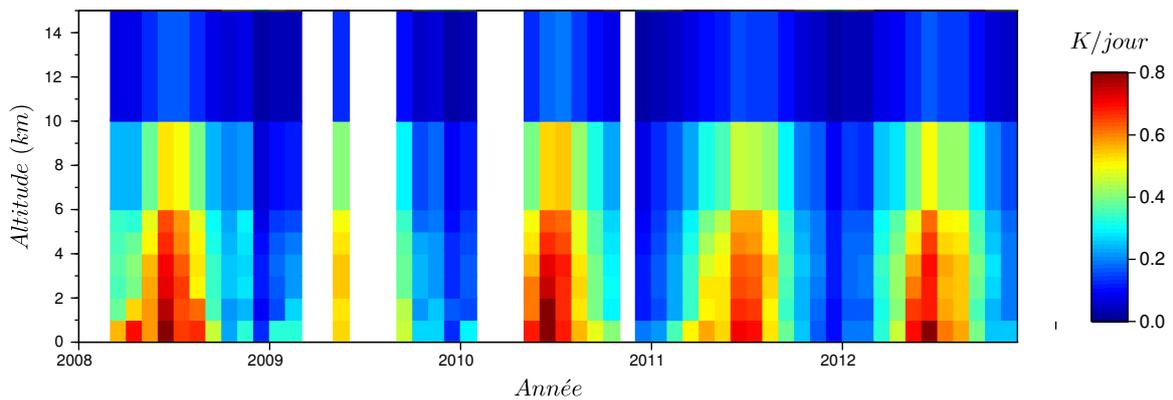
TABLE 3.9 – Taux d'échauffement journalier ( $\text{K.jour}^{-1}$ ) au niveau de la surface, des différentes composantes atmosphériques, en fonction de la saison.



(a) Composante gazeuse.



(b) Composante aérosols.



(c) Taux d'échauffement total (gaz et aérosols).

FIGURE 3.34 – Taux d'échauffement résultant des différentes composantes atmosphériques

## 3.7 Conclusion

L'analyse systématique des rétro-trajectoires nous a permis de préciser les grandes tendances météorologiques. La région Lilloise, au coeur économique de l'Europe est influencée par les grandes villes voisines. Les aérosols qui composent son atmosphère sont donc principalement de type urbain/industriel. Une influence des masses d'air d'origine océanique est également identifiée, de part la direction privilégiée Ouest/Est des masses d'air à cette latitude.

Notre étude de la couverture nuageuse nous a ensuite permis de nous assurer de la représentativité des mesures pour chacune des saisons. La pertinence de la photométrie lunaire a également été démontrée, du fait de la longue nuit hivernale associée à une fraction nuageuse similaire à celle de jour.

Les observations photométriques, enrichies depuis 2008 par le lidar en fonctionnement continu, nous offrent une riche base de données qui permet une bonne caractérisation des propriétés optiques et micro-physiques des aérosols locaux.

Des tendances sur plus de 13 ans ont pu être dégagées, notamment une diminution de l'épaisseur optique (-55 %) pendant l'été, probablement expliquée par une diminution de l'absorption des particules ainsi que par une humidité plus faible, en moyenne, sur la colonne atmosphérique, tous deux affectant l'extinction des aérosols de type urbain/industriel. Une diminution de la valeur du rayon du mode grossier a également été observée et pourrait être la signature de l'utilisation des filtres à particules qui permettent de filtrer les plus grosses particules émises par les véhicules de type diesel. Des tendances saisonnières ont été mises en évidence. En particulier, les particules sont de plus petite dimension l'été et sont associées à de plus forts niveaux d'épaisseur optique, expliqués par des précipitations minimales, cette saison. Le caractère urbain/industriel du site d'observation fait ressortir des variations journalières et hebdomadaires (week-end effect), directement imputables à l'activité humaine. L'étude de la distribution verticale des aérosols met en évidence une couche limite généralement au-dessous de 2 km d'altitude. Les variations de son sommet, aux échelles saisonnières et journalières sont contrôlées par les différences de température et modulent, à leur tour, les niveaux d'extinction au niveau du sol.

La synergie des lidar et photométriques permet une détermination non empirique de la concentration en particules. Cette dernière a pu être validée par une comparaison avec les mesures in situ de  $PM_{10}$  : 80 % des concentrations sont restituées à moins de  $25 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  près. Les différences observées peuvent être expliquées par une variabilité des propriétés optiques le long de la colonne atmosphérique (des inversions photométriques), utilisées pour le calcul de la concentration au niveau du sol. Le calcul de la concentration a été également réalisé (intérêt pour l'étude quantitative des événements aérosols. Après avoir établi une statistique d'occurrence des événements de pollution (au niveau du sol) et d'in-

trusion de particules de diverse nature, en altitude, nous avons présenté les observations d'un évènement de particules issues de feux de forêt au Canada ( $90 \text{ mg.m}^{-2}$ , au maximum) et d'un panache de poussières désertiques sahariennes ( $325 \text{ mg.m}^{-2}$ ). Enfin, l'éruption du volcan islandais, en avril 2010 a provoqué la dispersion de cendres volcaniques en Europe, pendant près d'un mois. L'estimation de la concentration massique au sein de ce panache a été un point crucial, puisque c'est sur ce paramètre qu'a été établi, par l'aviation civile, le seuil de sécurité au delà duquel un risque est présent pour les moteurs d'avion. D'après nos résultats, la concentration maximale a été calculée, dans la nuit du 17 au 18 avril 2010 à environ  $1000 \text{ }\mu\text{g.m}^{-3}$  (et environ  $600 \text{ mg.m}^{-2}$  pour l'ensemble de la couche d'aérosols). Compte tenu de la précision escomptée (50 %), la concentration maximale était donc au-dessous du seuil de sécurité de  $4000 \text{ }\mu\text{g.m}^{-3}$ .

La connaissance des propriétés optiques et microphysiques des aérosols et de leur distribution verticale permet une estimation précise du forçage radiatif et des profils de taux d'échauffement des couches. Ces calculs ont été réalisés à l'aide du code de transfert radiatif GAME sur l'ensemble de la base de données. Des effets saisonniers ont été mis en évidence : le cycle annuel du forçage radiatif, maximal au printemps ( $\Delta F_{BOA} = -12,72 \text{ W.m}^{-2}$ ,  $\Delta F_{TOA} = -7,21 \text{ W.m}^{-2}$ ) et deux fois moins important en hiver ( $\Delta F_{BOA} = -5,16 \text{ W.m}^{-2}$ ,  $\Delta F_{TOA} = -2,80 \text{ W.m}^{-2}$ ) est en phase avec le cycle d'épaisseur optique (modulation du forçage par la concentration en particules). L'efficacité du forçage (intégré sur 24h00), maximale en été (décalage par rapport au forçage dû à la durée du jour) est modulée, quant à elle, par la durée du jour. La part de réchauffement des basses couches de l'atmosphère imputable aux aérosols, de l'ordre de 25 % en été atteint près de 50 % en hiver.

Les aérosols désertiques, composante majeure du flux total massique des aérosols, constituent un objet d'étude privilégié. En 2006, dans le cadre d'AMMA (introduit en 1.2.2), plusieurs campagnes de mesures se sont focalisées, en particulier, sur les poussières Sahariennes observées en Afrique Occidentale.

Peu de sites d'observations permettent, néanmoins, de disposer simultanément de mesures de télédétection passive, active et in-situ, dans cette région et sur une longue période. Le *chapitre 4* est dédié à la présentation des résultats issus de ces observations, depuis l'observatoire de Mbour. Nous suivrons tout d'abord le même schéma d'étude que pour le site Lillois : contexte d'observation, propriétés intégrées, distribution verticale, ..., jusqu'au calcul du forçage radiatif.

Nous enrichirons ce travail d'une comparaison systématique avec le lidar spatial CALIOP ainsi qu'avec les prévisions issues du modèle de transport des poussières désertiques NMMB-BSC/Dust.

# Chapitre 4

## Variabilités, tendances et événements extrêmes - Mbour

De part sa localisation géographique (14,39° Nord, 19,96° Ouest), Mbour, située à 80 km au Sud de Dakar (Sénégal) est sous l'influence de la ZCIT (Zone de Convergence InterTropicale) et de son oscillation annuelle, responsable de la mousson. Deux saisons contrastées caractérisent ce site : une saison sèche, l'hiver (décembre-février : humidité relative  $< 40\%$ ) correspondant à l'éloignement maximal de la ZCIT, et une saison humide, principalement l'été (juin-septembre : humidité relative  $\approx 80\%$ ) lorsque la ZCIT atteint des latitudes proches de celle de Mbour.

Nous avons utilisé, comme pour Lille, le modèle HYSPLIT afin de caractériser l'origine des masses d'air influençant cette région côtière.

### 4.1 Climatologie des masses d'air

Nous présentons sur la Figure 4.1 les moyennes saisonnières des rétro-trajectoires (de 72h00) pour l'année 2006. Des tendances similaires ont été observées pour les autres années étudiées (2007 à 2012, non représentées).

Les masses d'air observées au-dessus de Mbour et âgées de 3 jours proviennent d'une zone d'un périmètre allant de 1500 à 2000 km autour du site d'observation. La distribution de l'origine de ces masses d'air (et donc de la directions des vents) est peu dispersée pour chacune des saisons.

La saison hivernale se distingue de toutes les autres, pour lesquelles les rétro-trajectoires présentent peu de différences. La circulation atmosphérique globale prédit, à cette latitude, des vents dominants du Nord-Est (Alizés du Nord-Est). Cette tendance est observée en hiver au niveau du sol, avec l'Harmattan, transportant les masses d'air du Sahara vers le Sud-Ouest. Du printemps à l'automne, les masses d'air à cette altitude proviennent,

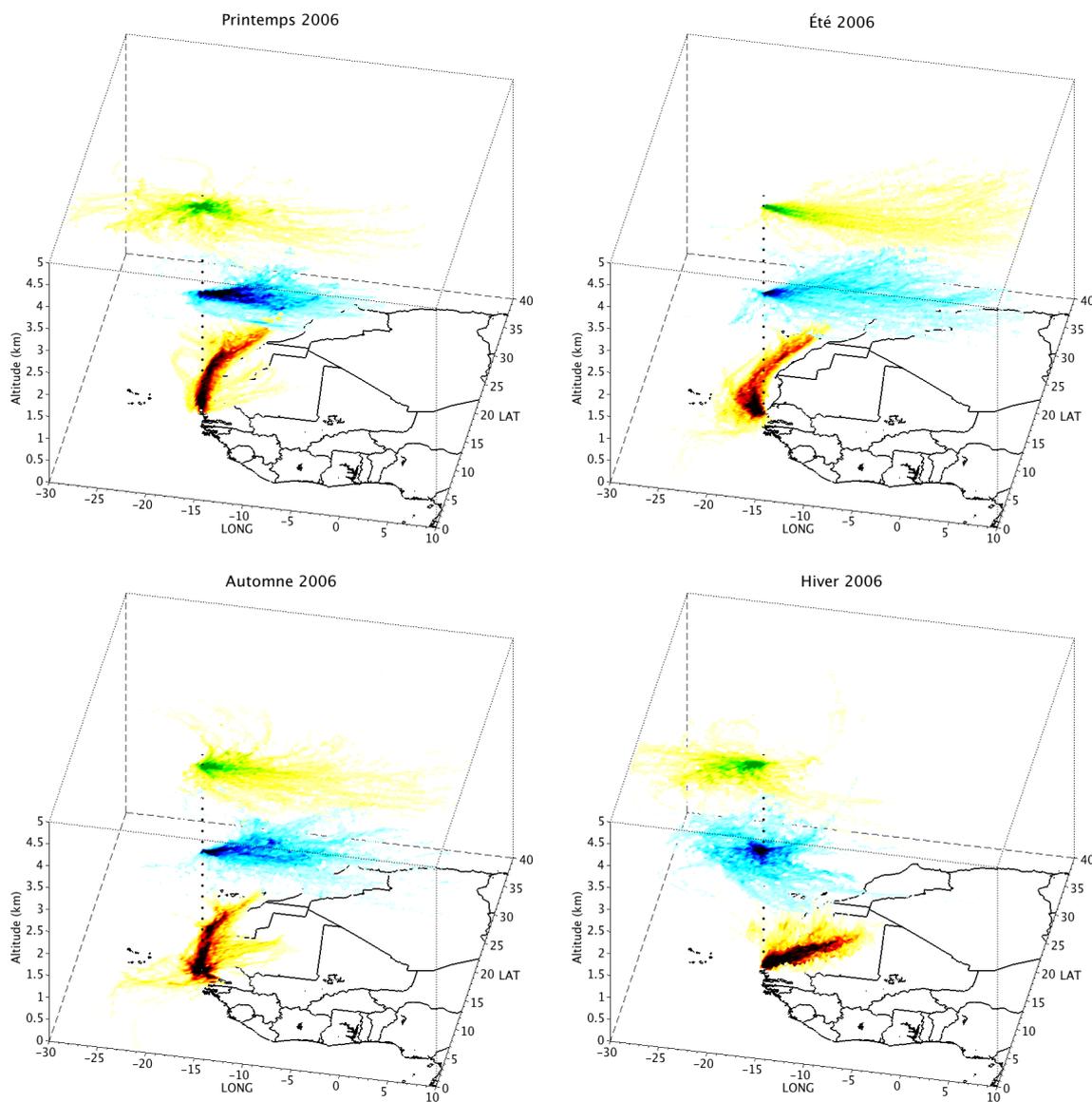


FIGURE 4.1 – Moyennes saisonnières des rétro-trajectoires d’une durée de 72h00 se terminant à Mbour au niveau du sol (rouge), à 3000 m (bleu) et 5000 m (vert). L’intensité de la couleur est proportionnelle au nombre de rétro-trajectoires comprises dans le pixel considéré. La ligne en pointillés noirs correspond à la verticale au niveau de l’observatoire.

en revanche, essentiellement du Nord. Une déviation de près de  $90^\circ$  est constatée pour les masses d'air d'altitude supérieure (originaires de l'Est), ce qui est une illustration de la spirale d'Ekman.

Si l'on réduit l'échelle temporelle, de la saison au mois, nous constatons que le changement d'orientation privilégiée, au niveau du sol, a lieu en novembre et février. Entre ces deux mois, les masses d'air, à l'altitude considérée, proviennent du Nord-Est et doivent donc être influencées par les sources désertiques (Sahel et Sahara). L'influence de ces sources de poussières minérales doit être, en revanche, moins importante de mars à octobre, puisque la trajectoire des masses d'air, ayant alors longé la côte Africaine, suggère plutôt une influence océanique. De mars à novembre, les masses d'air situées à 3 km d'altitude, proviennent principalement de l'Est et sont donc susceptibles d'être chargées en particules désertiques. L'influence orientale est décalée (et écourtée) pour les masses d'air de niveau supérieur (à 5 km d'altitude) de juin à octobre. En début d'année (janvier, février), la direction des masses d'air situées à 3 km d'altitude varie de quelques degrés, et nous constatons une origine du Sud-Est, zone sujette à cette époque, à de nombreux feux de biomasse reliés à l'activité agricole locale (Pelon et al. (2008)).

La rose des vents, représentée sur la Figure 4.3, met en évidence deux caractéristiques de vents. La première correspond aux vents de Nord-Est ( $30-60^\circ$ ), constatés précédemment, au niveau du sol, de novembre à février. Les vitesses associées sont principalement comprises entre  $1 \text{ m.s}^{-1}$  et  $3 \text{ m.s}^{-1}$ . La seconde, correspond à des vents d'Ouest (de mer) de vitesse moyenne légèrement inférieure. Le découpage saisonnier de la rose des vents (non représenté ici) indique que ces vents d'Ouest correspondent essentiellement à la saison estivale. On remarque, en effet, sur les rétro-trajectoires mensuelles, de juin à août, une origine des masses d'air à la surface initialement occidentale. Au printemps, les vents sont majoritairement du Nord. En automne, la rose des vents donne lieu à une distribution plus dispersée, puisqu'un changement important d'orientation de vent privilégiée a lieu pendant cette saison.

Mbour est sous l'influence de la mousson, généralement, de juin à septembre. Du fait des nuages et des précipitations, les observations photométriques et lidar effectuées lors de cette période doivent être moins fréquentes qu'au cours de la saison sèche. L'étude de la couverture nuageuse (à partir des données lidar) permet de s'assurer de la représentativité des mesures au cours de l'année.

## 4.2 Couverture nuageuse

Les fractions nuageuses journalières (Figure 4.4) mettent en évidence un cycle annuel plus ou moins marqué selon les années. Ce cycle est particulièrement net pour les années 2006, 2010 et 2011. Le début de l'année (janvier) est marqué par une couverture nuageuse

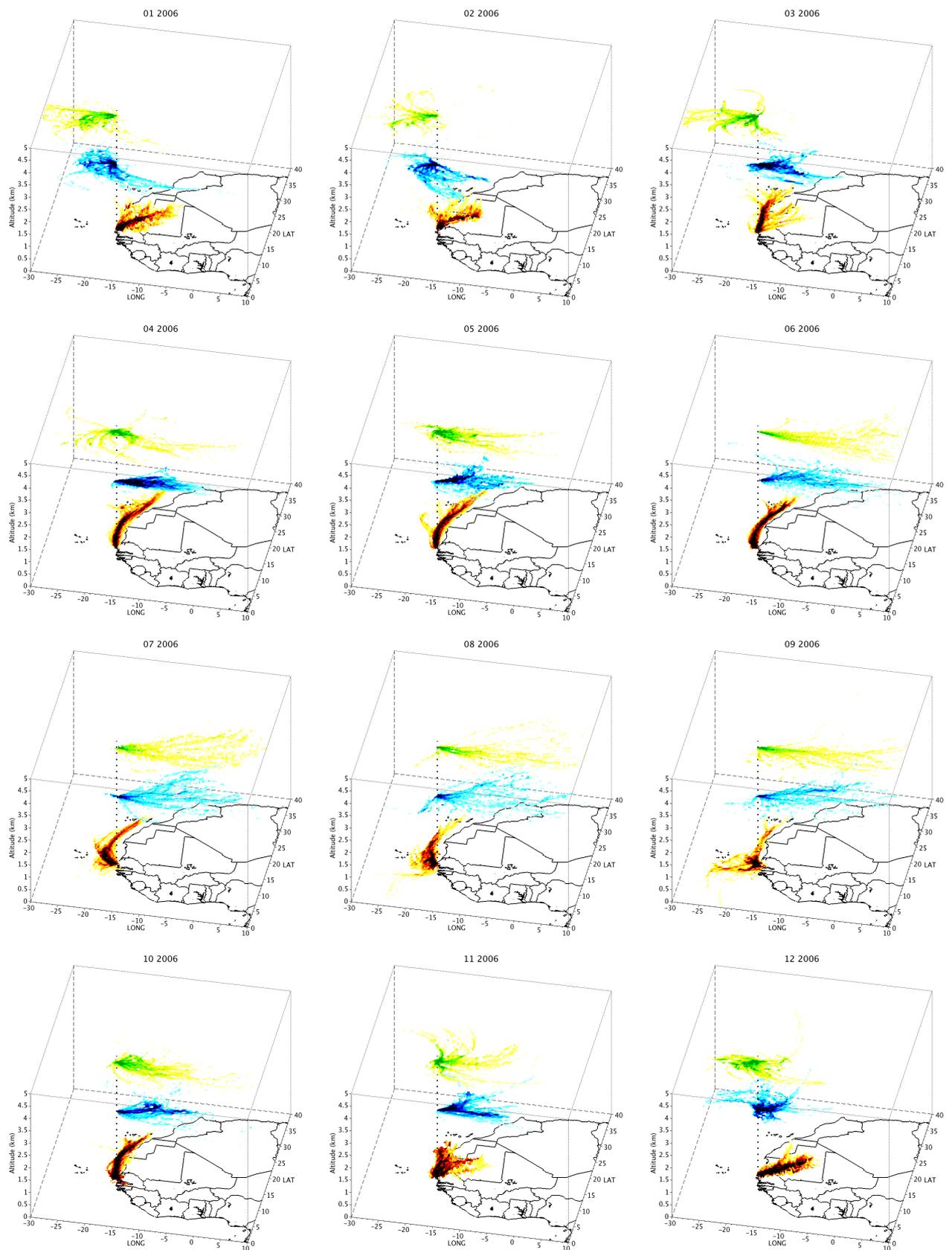


FIGURE 4.2 – Identique à la Figure 4.1, pour les moyennes mensuelles.

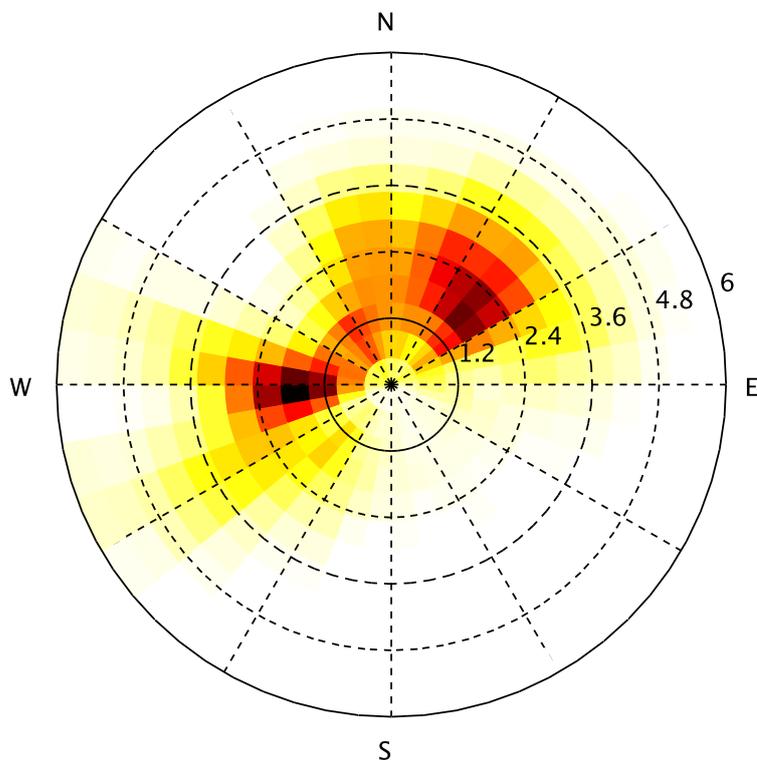


FIGURE 4.3 – Rose des vents (rayon : vitesse ( $\text{m.s}^{-1}$ ), angle : direction ( $^{\circ}$ )) issues de mesures horaires (4 mesures par journée) à l’observatoire de Mbour pour la période 2005-2010 (données LISA). L’intensité de la couleur est proportionnelle à la fréquence des occurrences. Les maximum (noir) et minimum (blanc) correspondent respectivement à 0 et 157 occurrences.

importante ( $\approx 60\%$ ), suivie d’une fraction nuageuse minimale ( $\leq 10\%$ ) en février-mars. La fraction nuageuse augmente ensuite progressivement jusqu’en juillet, pendant la saison des pluies ( $>50\%$ ), puis diminue jusqu’en novembre, pour retrouver des niveaux plus faibles de présence nuageuse ( $\leq 20\%$ ). Les moyennes saisonnières sur l’ensemble de la période d’observation, reportées dans le Tableau 4.1 page 163, confirment cette tendance. Le printemps est la saison pour laquelle la fraction nuageuse est minimale (17%). En été, lors de la saison de pluies, la fréquence d’observation des nuages y est près de deux fois supérieure.

Du fait de la faible latitude, la durée du jour varie assez peu au cours de l’année. La différence entre la durée maximale, en été (12,8 heures) et la durée minimale du jour, en

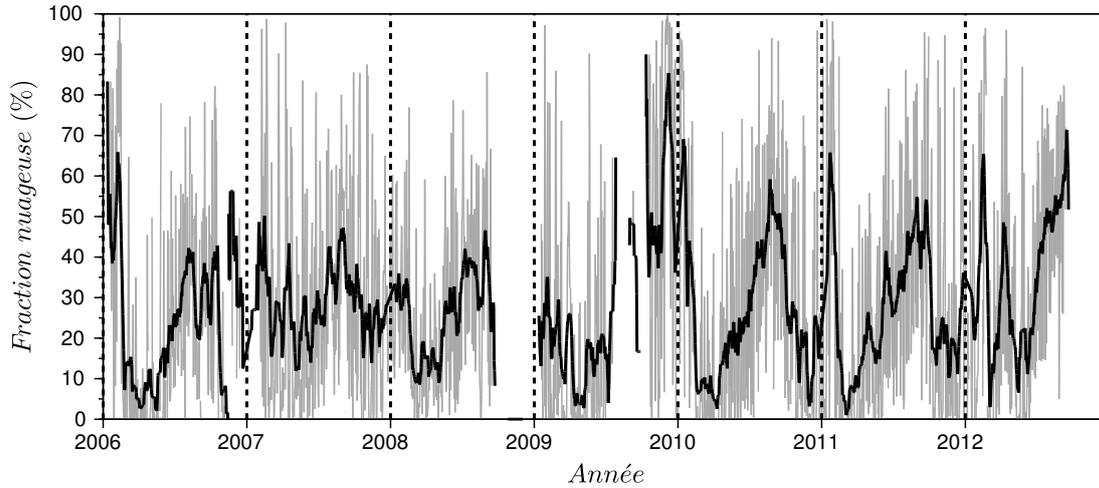


FIGURE 4.4 – Fraction nuageuse pour la période 2006 - 2012. Les moyennes journalières sont représentées en gris. La moyenne glissante sur  $\pm 8$  jours est représentée par la ligne noire.

hiver (11,2 heures) est ainsi inférieure à 2 heures.

Sur la Figure 4.5, le rapport entre la fraction nuageuse de jour et la fraction nuageuse de la journée totale (normalisé à la durée du jour) indique, avec une moyenne de  $45 \pm 8$  %, que les journées sont statistiquement moins nuageuses que les nuits. Le contraste diurne/nocturne est maximal pendant le printemps, où plus de 60 % des nuages détectés le sont la nuit (voir Tableau 4.1). Néanmoins, la différence constatée ne remet pas en cause l'utilité du photomètre lunaire (installé sur le site depuis mars-avril 2013) qui permettra, en assurant la continuité des observations jour/nuit, d'augmenter sensiblement le nombre de mesures photométriques et donc le nombre d'inversions lidar/photomètre.

La Figure 4.6 représente les fractions nuageuses journalières pour les trois classes de nuages définies, selon la classification de l'ISCCP, en fonction de l'altitude de la base du nuage. La saison humide est nettement visible, d'après ces paramètres, pour les trois dernières années d'observation. Presque aucun nuage bas (d'eau liquide) n'est, en effet, détecté de novembre à avril, pendant la saison sèche. En revanche, de mai à septembre-octobre, nous constatons une augmentation significative de la présence de ces nuages. Le maximum relatif de fréquence est atteint vers le mois de juin. Les moyennes saisonnières sur l'ensemble de la période d'observation (Tableau 4.1) confirment cette tendance : moins de 10 % des nuages détectés en hiver sont des nuages de basse altitude, alors qu'environ 30 % le sont pendant l'été.

La séparation par classe d'altitude indique également que les maximums de fraction

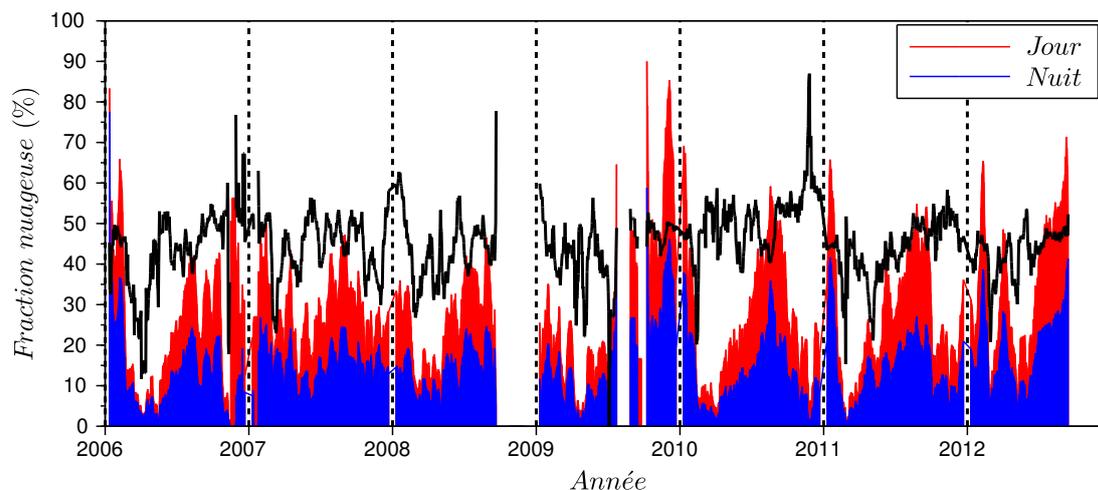


FIGURE 4.5 – Fraction nuageuse journalière de 2006 à 2012 de nuit et de jour (cumulatives). La ligne noire représente le rapport entre la fraction nuageuse de jour et la fraction nuageuse de la journée totale normalisé à la durée du jour (suppression de l’effet de variation de la durée du jour en fonction de la saison).

nuageuse précédemment observés en début d’année sont dus principalement à la présence de nuages hauts ( $\approx 80\%$  pendant l’hiver). Cette classe de nuages est d’ailleurs la classe la plus représentative des nuages observés, quelle que soit la saison. Les nuages de moyenne altitude sont en proportion intermédiaire pour toutes les saisons, excepté l’été, où la classe de nuages bas est alors plus représentée.

Nous présentons sur la Figure 4.7 le taux d’ensoleillement, calculé en convoluant la fraction nuageuse de jour (toutes classes d’altitude confondues) à la durée du jour. Avec une fraction nuageuse minimale, associée à une durée du jour d’environ 12 heures, le printemps est la saison pour laquelle le taux d’ensoleillement est maximal (10,7 heures). L’hiver et l’automne sont associés au plus faible taux d’ensoleillement ( $\approx 8$  heures). En été, la combinaison des maximums de durée de jour et de fraction nuageuse donnent un taux d’ensoleillement intermédiaire ( $\approx 9$  heures). Pour une année complète d’observation (2010), nous comptabilisons un peu plus de 3000 heures d’ensoleillement, ce qui est en parfait accord avec les valeurs d’ensoleillement météorologiques.

Depuis 2006, nous totalisons, de l’hiver à l’automne, respectivement 23048, 28622, 17491 et 17704 mesures d’épaisseur optique et de 1287, 2267, 953 et 975 inversions AERONET, soit plus de deux fois le nombre d’observations Lilloises qui ont pourtant débuté 7 ans auparavant. Le nombre d’observations est jugé satisfaisant pour chacune des saisons

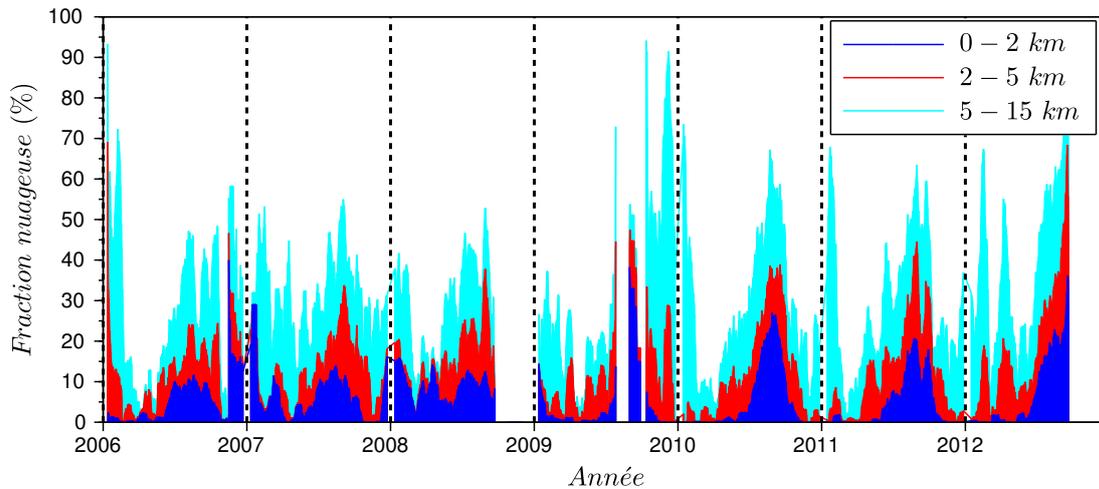


FIGURE 4.6 – Fraction nuageuse (cumulative) journalière de 2006 à 2012 en fonction des classes d'altitude des nuages distinguées par l'ISCCP.

afin de répondre au critère de représentativité. Nous constatons que le nombre de mesures d'épaisseur optique est 35 % supérieur en hiver qu'en automne, saisons pourtant associées à un taux d'ensoleillement journalier équivalent. La tendance est même accentuée si l'on ne considère que les années d'observation complètes 2010 et 2011 (environ 150 mesures par an en automne contre 550 en hiver). Cette différence peut-être expliquée par le fait qu'en hiver, la plupart des nuages détectés sont des cirrus pour lesquels la détection, à partir des données photométriques, est moins sensible (Cew et al. (2010)).

### 4.3 Propriétés intégrées sur la colonne

De manière équivalente à l'étude consacrée aux aérosols Lillois, nous nous intéressons en premier lieu à la variation des différents paramètres aérosols intégrés sur la colonne, pour différentes échelles temporelles.

#### 4.3.1 Épaisseur optique $\tau$

Nous présentons sur la Figure 4.8 les mesures d'épaisseur optique AERONET  $\tau$  de niveau 2 à 532 nm.

La moyenne d'épaisseur optique entre 2003 et 2012 (sur près de 88000 observations) est de  $0,44 \pm 0,29$ . La charge totale en particules est donc, à titre de comparaison, deux fois plus importante que celle mesurée à Lille. À Agoufou (Tombouctou, Mali), site de

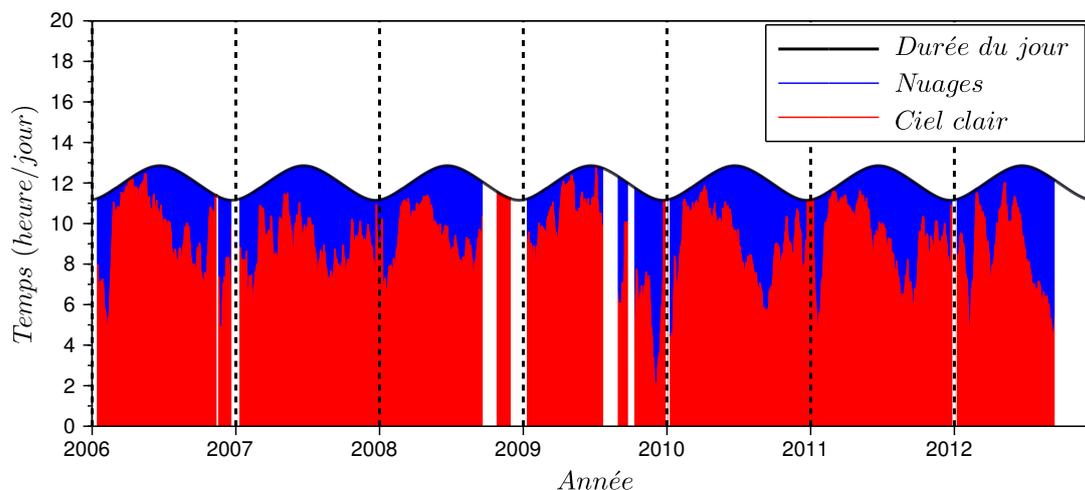


FIGURE 4.7 – Taux d'insolation de 2006 à 2012.

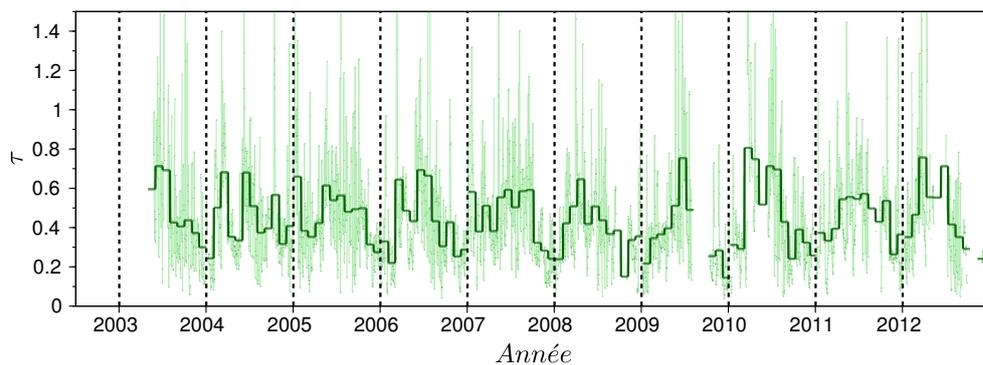
	Hiver	Printemps	Été	Automne
Fraction nuageuse	28,9	17,0	36,4	30,1
de jour	45,3	38,7	43,8	48,0
de nuit	54,7	61,3	56,2	52,0
nuages de basse altitude	9,7	12,2	29,2	15,7
nuages de moyenne altitude	10,9	33,8	25,8	28,5
nuages de haute altitude	79,4	54,0	45,0	55,8
Ensoleillement (heure/jour)	8,0	10,7	8,9	7,9

TABLE 4.1 – Couverture nuageuse (%) basée sur la détection depuis les données lidar à Mbour.

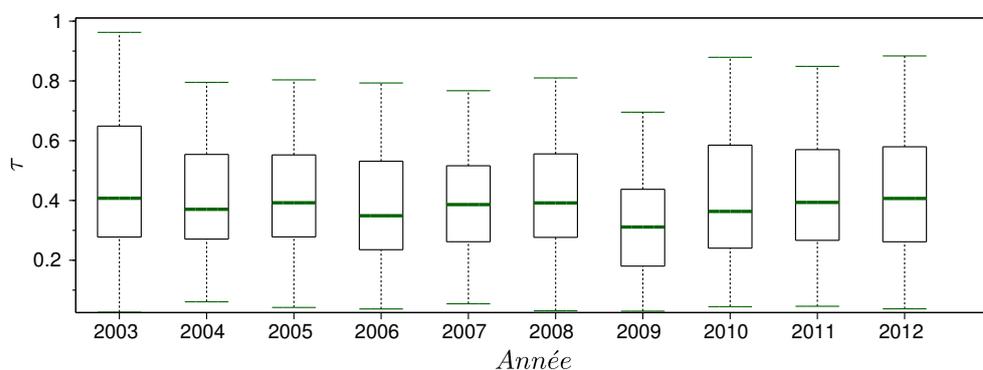
même latitude que Mbour, mais distant de plus de 2000 km des côtes, la moyenne multi-annuelle est de  $0,52 \pm 0,13$ . À Dalanzagdad (Mongolie), à proximité du désert de Gobie, l'épaisseur optique est nettement moins importante ( $0,12 \pm 0,05$ ).

Sur l'ensemble de la base de données, nous comptabilisons respectivement 82 (3 %), 863 (32 %) et 270 journées (10 %) correspondant à des épaisseurs optiques journalières inférieures à 0,1, supérieures à 0,5 et supérieures à 0,8 à 532 nm.

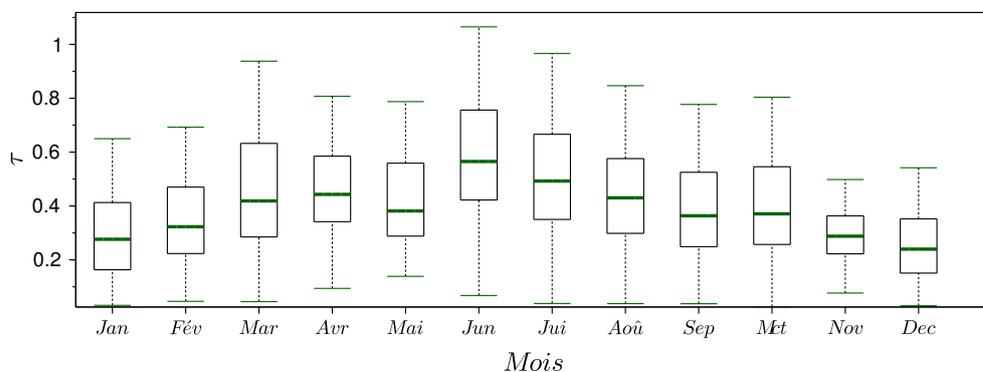
Un cycle annuel est clairement identifiable sur la série temporelle (Figure 4.8a). Le maximum a lieu en été (moyenne saisonnière de 0,56), au mois de juin, et le minimum en hiver avec une moyenne saisonnière de 0,32 (Figure 4.8c et Tableau 4.2 page 176). Avec une médiane de 0,38, le mois de mai représente un minimum relatif (0,44 en avril et 0,57 en juin).



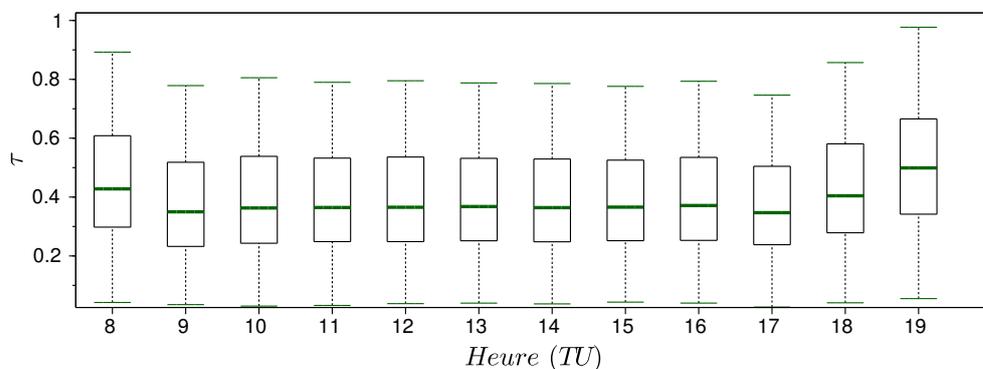
(a) Série temporelle.



(b) Variation annuelle.



(c) Variation mensuelle.



(d) Variation journalière.

FIGURE 4.8 – Épaisseur optique  $\tau$  mesurée à Mbour à 532 nm. La série temporelle (a) représente les moyennes journalières (vert clair) et mensuelles (vert foncé) du paramètre. Les boîtes des autres figures représentent les premier et troisième quartiles (de hauteur IQR). Le trait coloré qu'elles contiennent est la médiane. Les moustaches, les valeurs maximales et minimales obtenues dans l'intervalle  $[médiane - 1,5 IQR; médiane + 1,5 IQR]$ .

La médiane de l'année 2009 (0,31) est inférieure à celle des autres années (en moyenne 0,38) puisqu'aucune mesure n'est disponible entre la fin de l'été et le début de l'automne, période à laquelle sont associées des valeurs importantes de  $\tau$ . Hormis cette exception, la variabilité inter-annuelle est relativement faible (l'écart-type sur les médianes annuelles est de 0,02) (Figure 4.8b). Aucune tendance n'a d'ailleurs pu être dégagée sur le long-terme, pour aucune des saisons, d'après l'application du test de Mann-Kendall avec découpage saisonnier.

La variation horaire de l'épaisseur optique, présentée sur la Figure 4.23b, met en évidence un cycle journalier. De 09h00 à 17h00, l'épaisseur optique est très stable, puisque la variabilité autour de la valeur médiane de 0,36 est inférieure à la précision instrumentale de 0,01. Des valeurs plus importantes sont mesurées en début et fin de journée : 0,43 à 08h00 et 0,50 à 19h00

### 4.3.2 Coefficient d'Angström $\alpha$

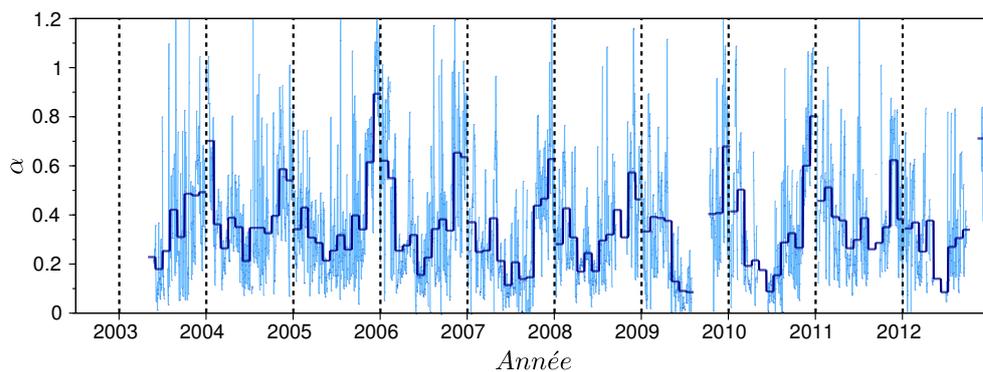
Le coefficient d'Angström (calculé entre 440 nm et 870 nm) donne, sur l'ensemble des observations, une moyenne globale de  $0,36 \pm 0,25$  ce qui est représentatif de particules ayant un mode grossier dominant.

Une moyenne plus faible est obtenue à Agoufou et indique la présence de particules encore plus grosses que celles observées à Mbour. Les aérosols de ce site, situé plus près des sources, sont probablement moins affectés par le dépôt des plus grosses particules se déroulant lors du transport. À Dalanzagdad, le coefficient d'Angström est exceptionnellement élevé (1,21) et révèle une distribution en taille parfois dominée par le mode fin. Les faibles niveaux d'épaisseur optique associés indiquent que peu d'évènements de poussières s'y produisent.

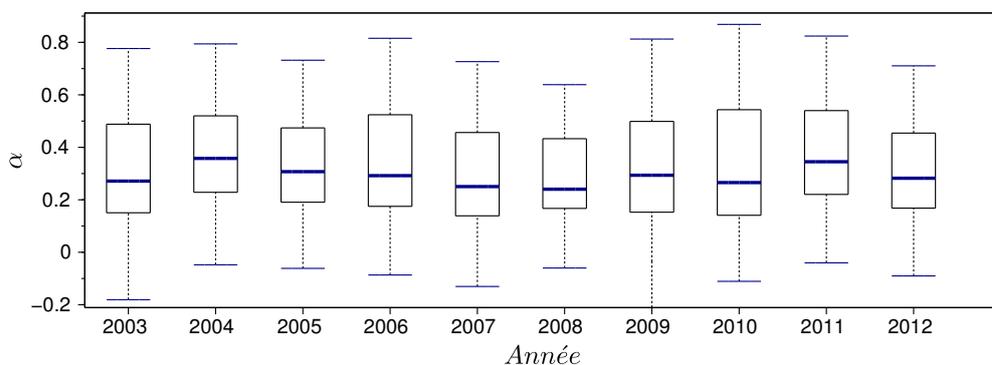
S'agissant de Mbour, nous observons un cycle annuel de forte amplitude (Figures 4.9a et 4.9c). Celui-ci présente son maximum en hiver, au mois de décembre ( $\alpha \approx 0,60$ ) et son minimum en été, au mois de juin ( $\alpha \approx 0,15$ ). Il est donc en opposition de phase au cycle d'épaisseur optique précédemment décrit.

Si des variations de l'ordre de 20 % peuvent apparaître entre les médianes des différentes années, l'application du test saisonnier de Mann-Kendall ne permet de dégager aucune tendance sur la série.

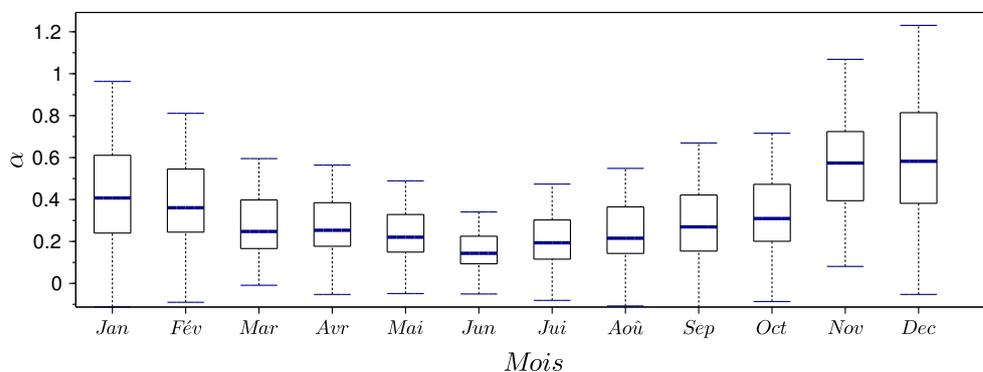
Concernant la variation journalière (Figure 4.9d), nous constatons, de manière semblable à l'échelle annuelle, un cycle en opposition de phase avec  $\tau$ . Les valeurs minimales sont ainsi obtenues au début et en fin de journée (0,25 à 08h00 et 0,18 à 19h00). Les valeurs correspondant à l'intervalle 09h00-17h00 sont plus élevées et relativement stables ( $0,31 \pm 0,02$ ).



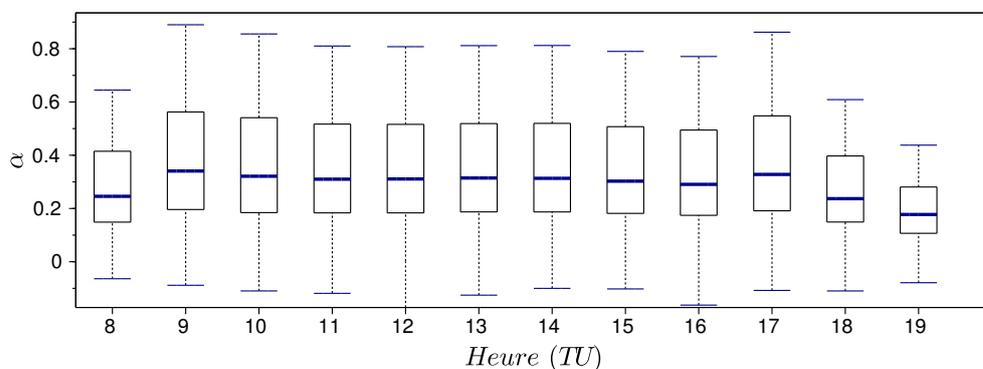
(a) Série temporelle.



(b) Variation annuelle.



(c) Variation mensuelle.



(d) Variation journalière.

FIGURE 4.9 – Coefficient d'Angström  $\alpha$  mesuré à Lille. (Schéma de figures identique à la Figure 4.8)

La suite de cette étude fait appel à des paramètres issus des inversions AERONET (niveau 2). De part la latitude du site, aucune inversion n'est disponible entre 12h00 et 15h00, cette période correspondant à de faibles angles zénithaux réduisant alors l'information angulaire disponible dans l'almucantar.

### 4.3.3 Distribution en taille

#### 4.3.3.1 Rayons effectifs

Les rayons effectifs des modes fin et grossier présentent des cycles saisonniers opposés. Le maximum de  $r_{coarse}$  coïncide au minimum de  $r_{fine}$ , aux mois de décembre-janvier ( $r_{coarse} = 1,83 \mu\text{m}$  et  $r_{fine} = 0,12 \mu\text{m}$ ) et inversement aux mois de août-septembre ( $r_{coarse} = 1,68 \mu\text{m}$  et  $r_{fine} = 0,15 \mu\text{m}$ ), soit des variations relatives de l'ordre de 10 %.

Le test saisonnier de Mann-Kendall indique des tendances à long terme, de sens inverse, pour chacun des deux modes. Une diminution de  $r_{fine}$  est constatée au printemps, associée à une augmentation de  $r_{coarse}$  (également observée l'hiver). Les régressions linéaires, pour chacune des saisons, présentées sur la Figure 4.11, permettent de quantifier ces tendances. En hiver,  $r_{coarse}$  passe d'une moyenne de  $1,65 \mu\text{m}$  sur la période 2004-2005 à environ  $1,85 \mu\text{m}$  pour 2011-2012, soit une augmentation de plus de 10 %. Au printemps, l'augmentation détectée est près de deux fois moins importante. S'agissant de  $r_{fine}$ , nous notons une décroissance de près de 20 % entre 2003-2004 ( $0,16 \mu\text{m}$ ) et 2011-2012 ( $0,13 \mu\text{m}$ ).

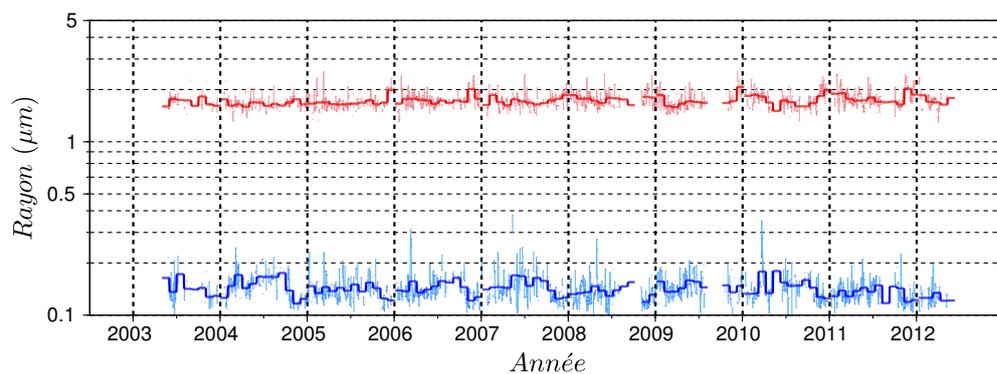
Aucune tendance ne peut-être dégagée s'agissant de la variation journalière (Figure 4.10d), hormis une tendance nulle, du fait de la stabilité de chacun des rayons modaux.

#### Proportion des modes

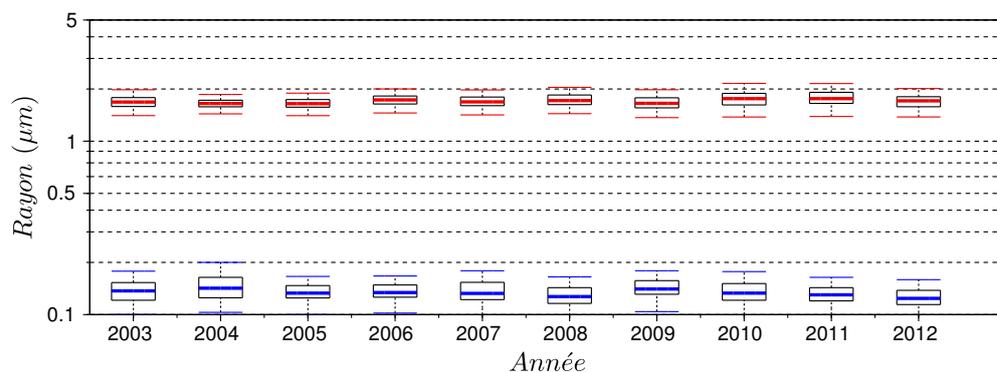
D'après la Figure 4.12a) présentant la série temporelle du rapport d'amplitude des deux modes de la distribution en taille, nous constatons que celle du mode grossier est, au minimum, deux fois supérieure à celle du mode fin ( $n_{0,c}/n_{0,f} > 2$ ). La moyenne sur l'ensemble des observations donne un rapport  $n_{0,c}/n_{0,f}$  d'environ 9,5. Un cycle annuel est, de nouveau, nettement identifiable. Le maximum, associé à un rapport médian de plus de 13, a lieu en été (Figure 4.12c et Tableau 4.2 page 176). Le minimum a lieu en hiver (6,40) et principalement en novembre et décembre, mois pour lesquels le rapport  $n_{0,c}/n_{0,f}$  est inférieur à 0,3.

Le test de Mann-Kendall ne permet pas de mettre en évidence une tendance sur l'ensemble des observations, et ceci quelle que soit la saison (ou le mois) considérée.

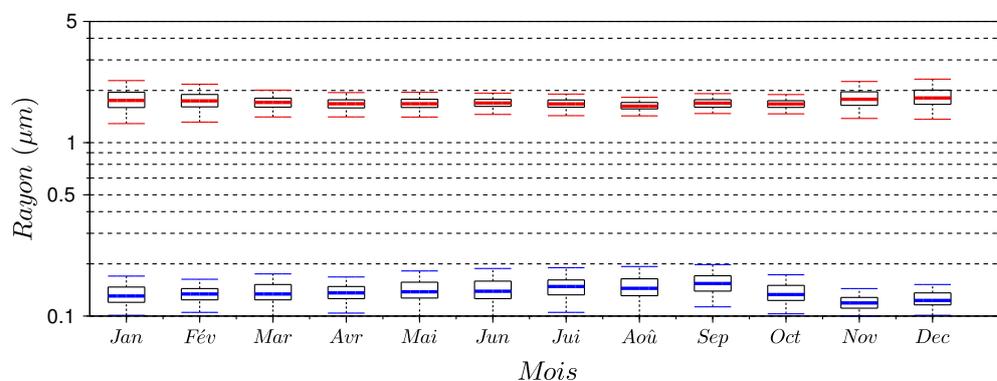
À l'échelle journalière (Figure 4.12d), nous observons, pour les heures accessibles, une diminution de 8h00 à 10h00 de près d'un tiers et une augmentation de 16h00 à 19h00 au



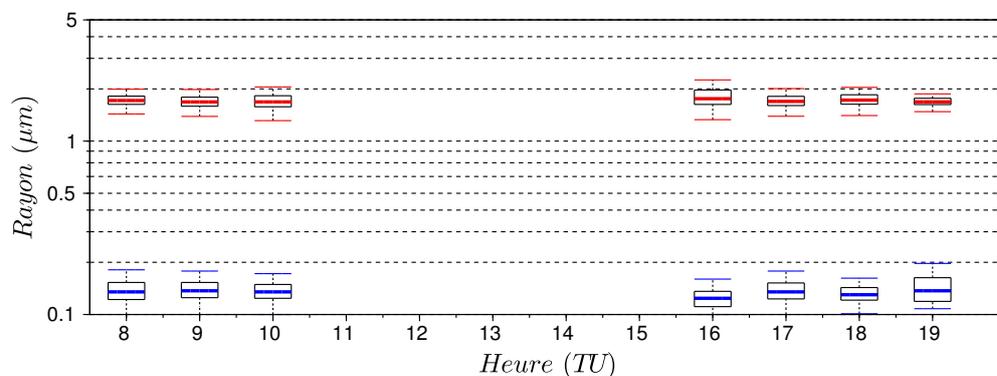
(a) Série temporelle.



(b) Variation annuelle.



(c) Variation mensuelle.



(d) Variation journalière.

FIGURE 4.10 – Rayons effectifs  $r_{fine}$  (en bleu) et  $r_{coarse}$  (en rouge) des modes fin et grossier de la distribution en taille.

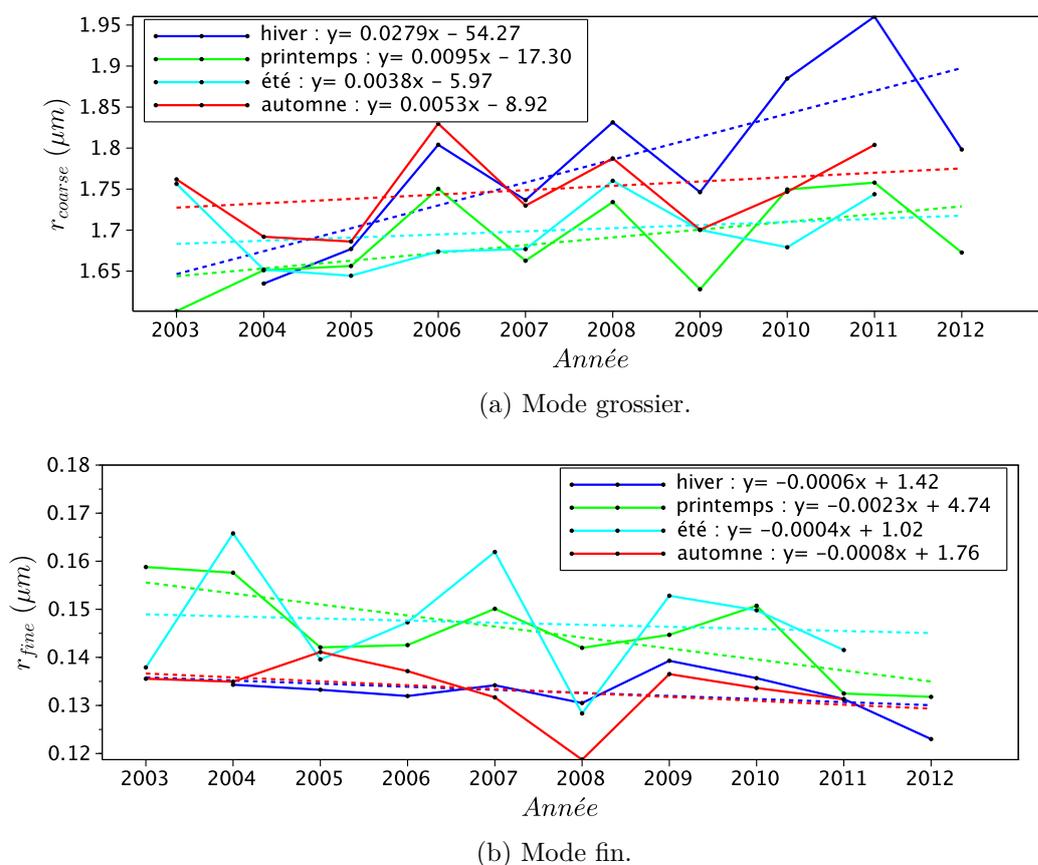


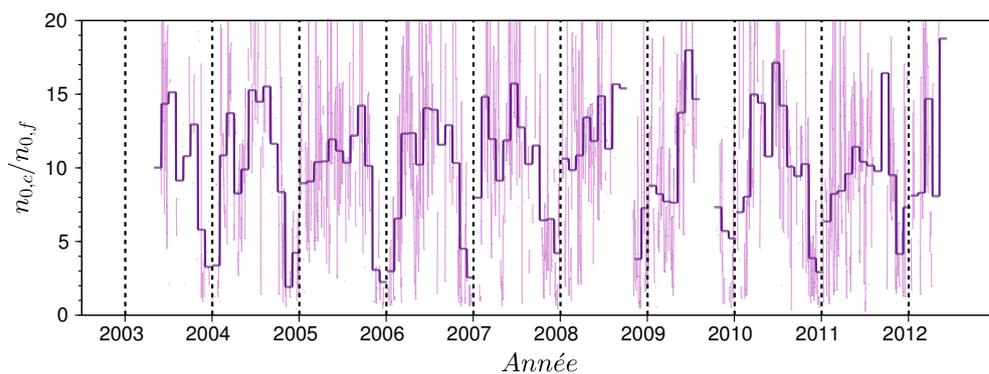
FIGURE 4.11 – Moyennes saisonnières des rayons effectifs des deux modes,  $r_{fine}$  et  $r_{coarse}$ . En pointillés, la régression linéaire obtenue pour chacune des séries saisonnières (méthode des moindres carrés).

terme de laquelle le rapport  $n_{0,c}/n_{0,f}$  retrouve des valeurs similaires à celles du début de journée. Cette variation semble constituer un cycle d'amplitude au moins supérieure à 30 %, dont le minimum serait atteint en milieu de journée (vers 13h00).

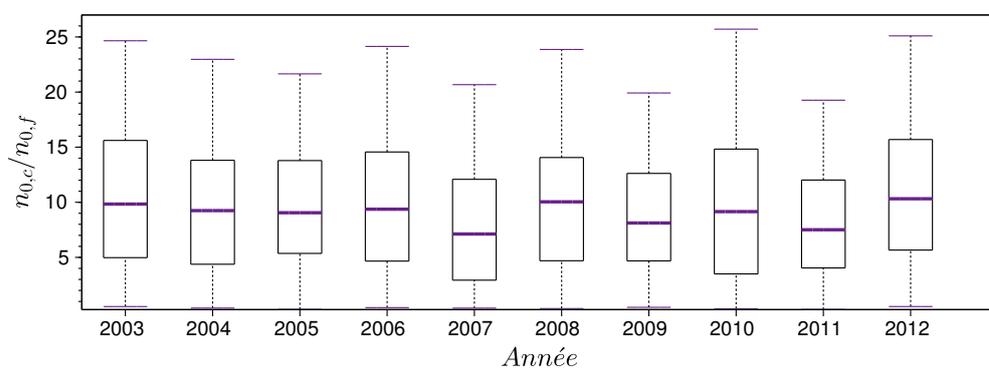
Le seuil minimal d'épaisseur optique ( $\tau = 0,40$  à 440 nm) requis pour l'inversion de l'albédo de diffusion et de l'indice de réfraction est souvent atteint à Mbour, contrairement à Lille. Nous disposons donc d'une base conséquente de données de ces paramètres.

#### 4.3.4 Albédo de diffusion $\varpi_0$

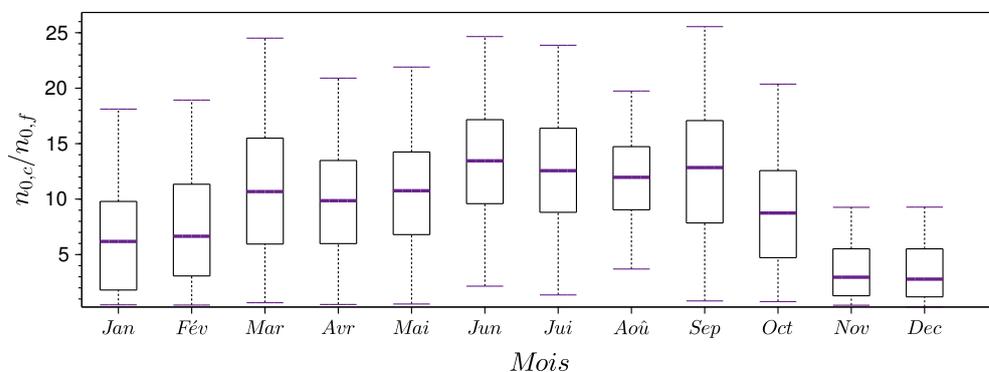
Sur l'ensemble de la base de données, la valeur moyenne de  $\varpi_0$ , interpolé à 532 nm, est de  $0,92 \pm 0,04$ .



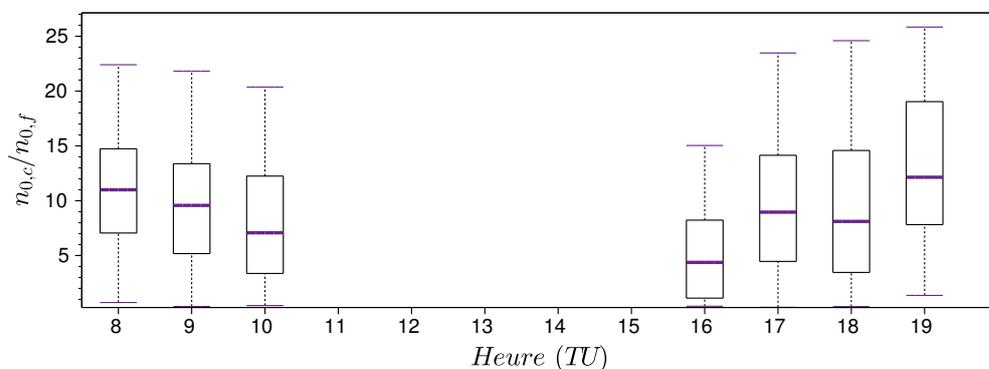
(a) Série temporelle.



(b) Variation annuelle.

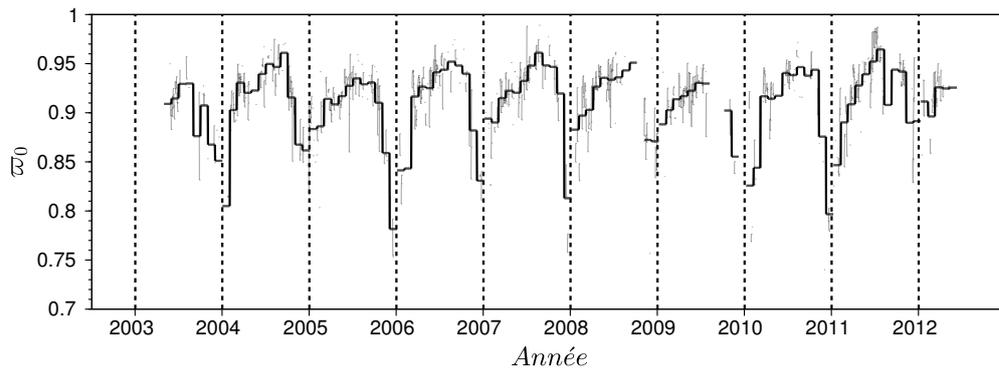


(c) Variation mensuelle.

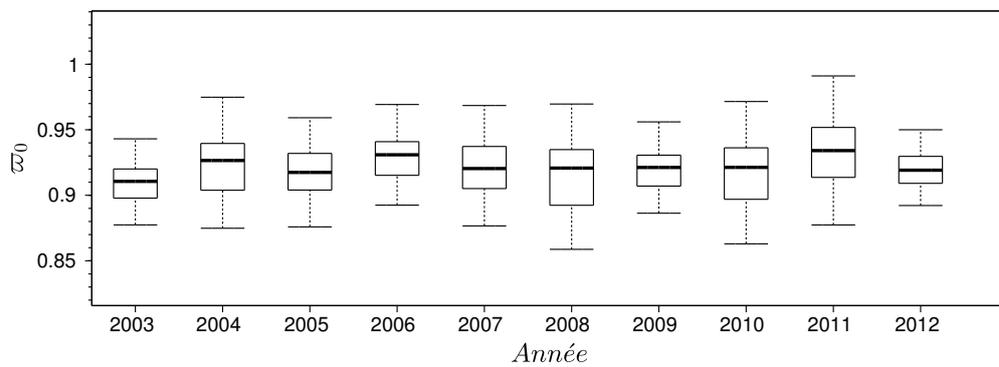


(d) Variation horaire.

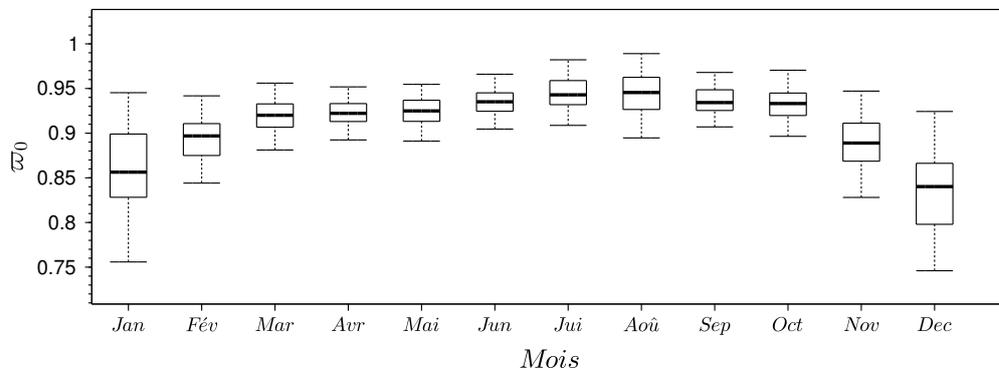
FIGURE 4.12 – Rapport des amplitudes des modes grossier  $C$  et fin  $F$  de la distribution en taille.



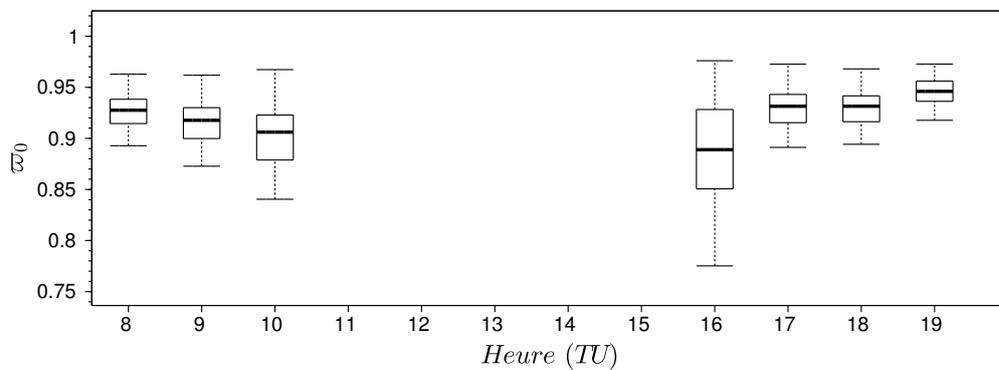
(a) Série temporelle.



(b) Variation annuelle.



(c) Variation mensuelle.



(d) Variation horaire.

FIGURE 4.13 – Albédo de diffusion simple  $\varpi_0$  interpolé à 532 nm.

Comme pour la plupart des paramètres précédemment décrits, nous observons, pour l'albédo de diffusion simple, un cycle annuel. Celui-ci présente son minimum en hiver (0,86) et son maximum en été (0,94). L'amplitude relative est donc de l'ordre de 10 %.

La variabilité inter-annuelle présentée sur la Figure 4.16b est faible (inférieure à 3 %) compte tenu de la dispersion naturelle du paramètre. Aucune tendance n'a, non plus, pu être dégagée du test saisonnier de Mann-Kendall.

Concernant l'échelle journalière, nous observons, de manière semblable au paramètre  $n_{0,c}/n_{0,f}$  précédemment présenté, une portion de cycle dont le minimum semble être atteint en milieu de journée. De 8h00 à 10h00,  $\varpi_0$  passe de 0,93 à 0,91, soit une variation de l'ordre de la précision attendue sur ce paramètre dans le cas d'aérosols dominés par le mode grossier. La tendance inverse est observée l'après-midi, de 16h00 à 19h00. Nous observons également une plus grande variabilité des valeurs d'albédo pour les plus faibles angles zénithaux.

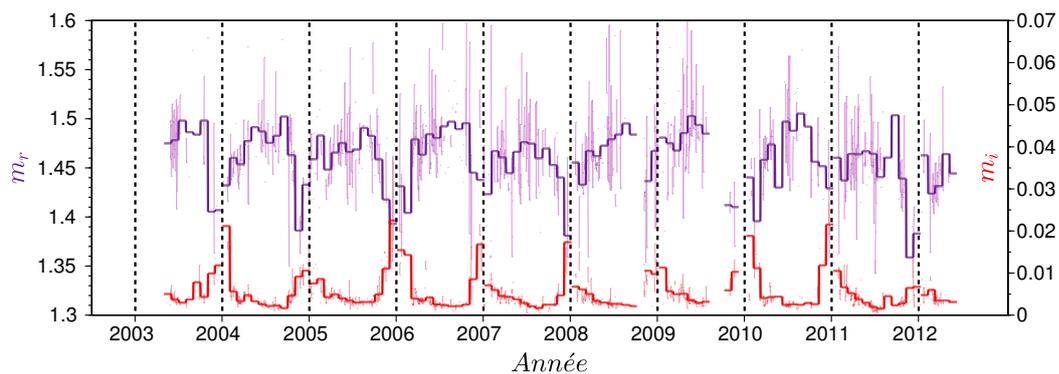
### 4.3.5 Indice de réfraction $m$

La valeur moyenne de l'indice de réfraction des aérosols observés sur le site de Mbour, interpolé à 532 nm, est de  $m = 1,46 - 0,005i$ .

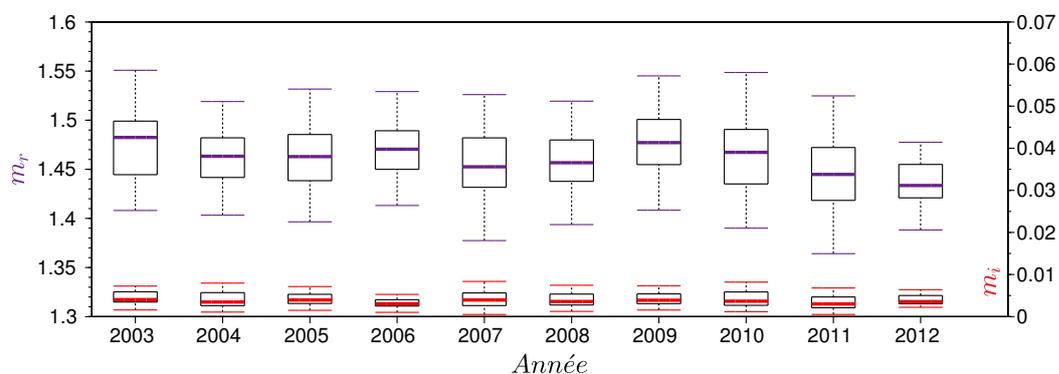
Ces valeurs sont de nouveau distribuées selon des cycles annuels (Figures 4.14a et 4.14c). Ceux-ci sont en opposition de phase pour les parties réelle  $m_r$  et imaginaire  $m_i$ . Nous constatons ainsi, en hiver le minimum de la partie réelle (1,43) associé au maximum de la partie imaginaire (0,011). En été, c'est l'inverse : la partie réelle est maximale (1,47) lorsque la partie imaginaire atteint sa valeur minimale (0,003).

La variation annuelle, présentée sur la Figure 4.14b laisse transparaître une tendance à la diminution pour la partie réelle de l'indice de réfraction. Cette tendance à la baisse est confirmée par le test saisonnier de Mann-Kendall. L'application de ce dernier permet de préciser que la décroissance du paramètre a lieu pendant l'automne (aucune tendance pour les autres saisons, avec le seuil de signification de 0,05 utilisé). Les régressions linéaires effectuées par année, pour chacune des saisons, indique que la diminution est de l'ordre de -0,005 par an. Entre l'automne 2003 et celui de 2011,  $m_r$  est ainsi passé de 1,47 à 1,44. L'application du test statistique, à la partie imaginaire, n'a permis de mettre en évidence aucune tendance à long-terme au cours de la période d'observation.

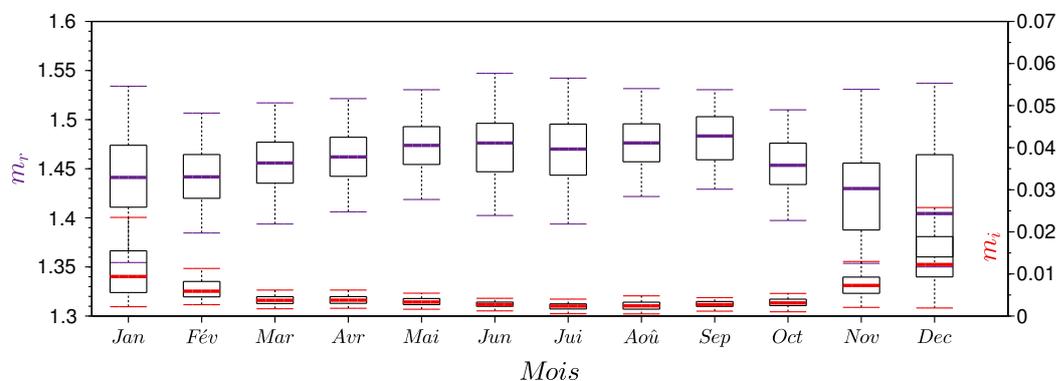
Une variation journalière est plus facilement identifiable pour la partie imaginaire  $m_i$ . Nous observons ainsi une augmentation de 08h00 à 10h00 (de 0,003 à 0,005) suivi d'une diminution de 16h00 à 18h00 (de 0,007 à 0,002). L'amplitude du cycle, dont le maximum doit être atteint en milieu de journée est donc importante, puisque la variation relative (sous-estimée si le cycle présente un maximum, vers 12h00, supérieur à 0,07) est de plus de 300 %.



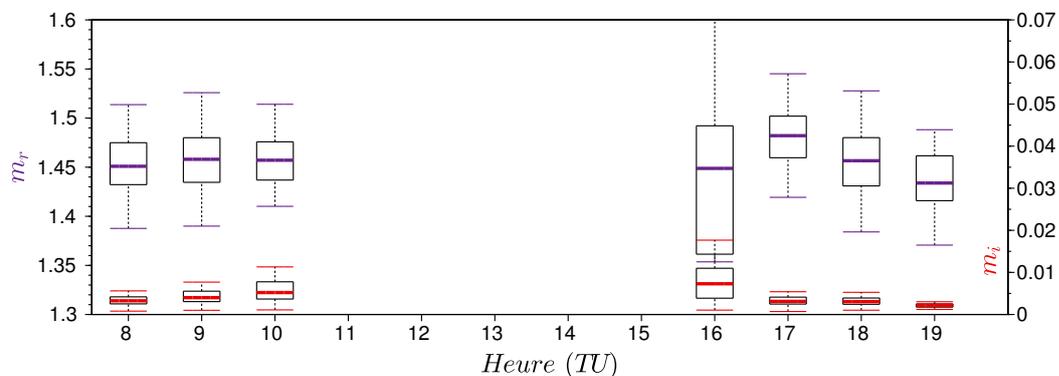
(a) Série temporelle.



(b) Variation annuelle.



(c) Variation mensuelle.



(d) Variation horaire.

FIGURE 4.14 – Indice de réfraction complexe  $m = m_r - i m_i$  interpolé à 532 nm. Les parties réelle et imaginaire sont tracées respectivement en violet et rouge.

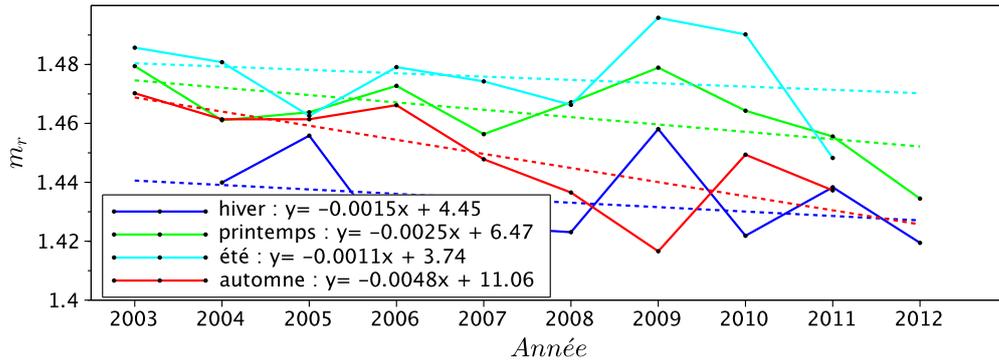


FIGURE 4.15 – Moyennes saisonnières de la partie réelle  $m_r$  de l'indice de réfraction. En pointillés, la régression linéaire obtenue pour chacune des séries saisonnières (méthode des moindres carrés).

### 4.3.6 Rapport lidar $S_a$

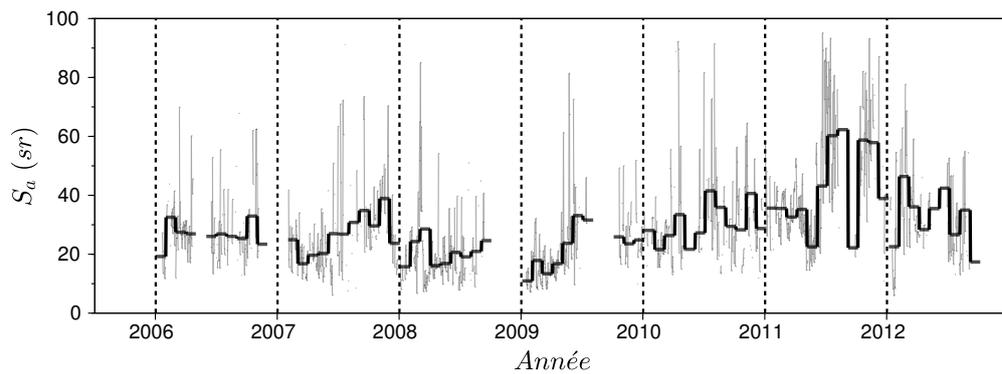
De 2006 à 2012, plus de 28000 inversions lidar-photomètre ayant passé les critères de qualité sont totalisées.

Sur l'ensemble de la base de données, le rapport lidar moyen  $S_a$  est de  $30 \pm 16$  sr. Il est donc cohérent avec le rapport lidar associé aux particules désertiques (voir discussion, partie 3.5.3 page 125), bien qu'étant dans la moyenne basse. Une première explication pourrait résider dans la proximité des sources de poussières minérales, réduisant alors le transport des particules. Un faible transport implique, en effet, un faible dépôt (privilégié pour les aérosols de plus grande taille) et une population de particules plus grosses que celle associée à un panache de particules observé plus loin des sources. Puisque le rapport lidar varie, globalement, de manière inverse à la taille des particules, il est logique d'observer de plus faibles valeurs de  $S_a$  au voisinage des sources de poussières minérales. D'autre part, étant donnée la proximité de l'océan, et au regard des rétro-trajectoires (Figure 4.2), une contribution des aérosols marins ne peut certainement pas être négligée. Ces aérosols, qui sont les particules naturelles de plus grande dimension, sont associés à de faibles valeurs de rapports lidar, de l'ordre de 20-30 sr à 532 nm (Müller et al. (2007)).

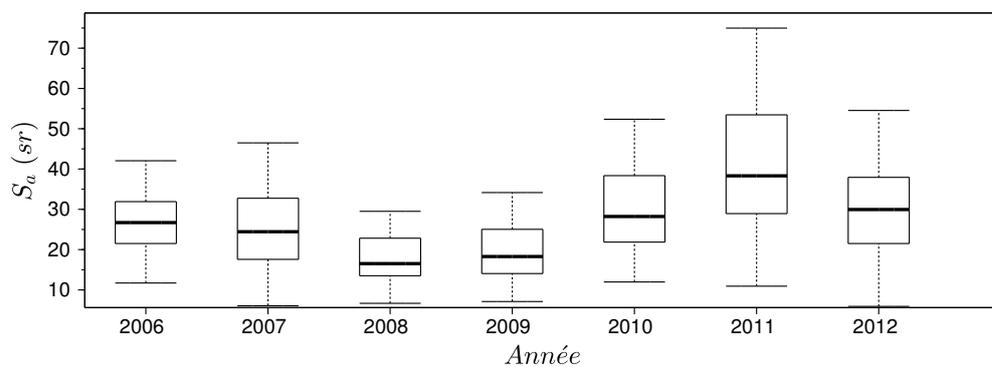
Le calcul de  $S_{a,photo}$  (voir équation 3.1 page 98) sur l'ensemble de la base de données (721 inversions en considérant les moyennes journalières) donne une moyenne de  $63 \pm 11$  sr, soit un écart de plus de 30 sr avec les valeurs issues des inversions lidar. Les valeurs de  $S_{a,photo}$  sont distribuées selon un cycle annuel dont le maximum est atteint en hiver ( $\approx 75$  sr) et le minimum en été ( $\approx 50$  sr).

Ce cycle n'est pas si net, concernant le rapport lidar  $S_a$ , compte tenu de la dispersion des valeurs (4.16c). Nous constatons, au contraire, une moyenne saisonnière plus importante lors de l'été (34 sr) que lors de l'hiver (26 sr) (Tableau 4.2).

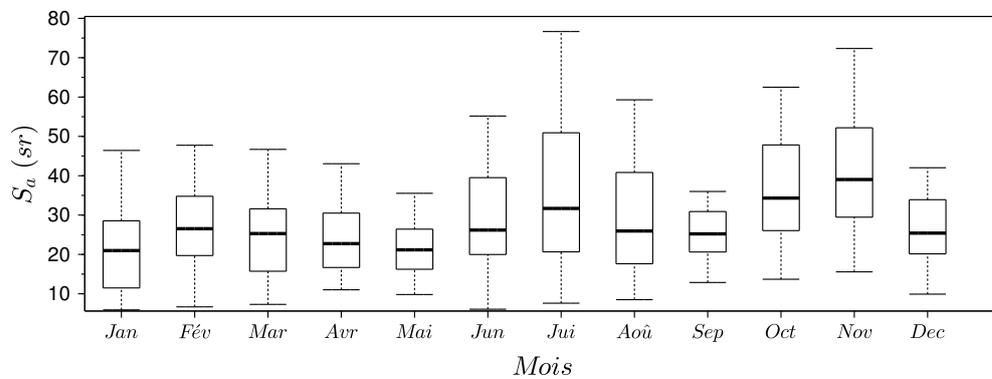
Nous constatons, d'après la Figure 4.16b, une variabilité inter-annuelle d'environ 10



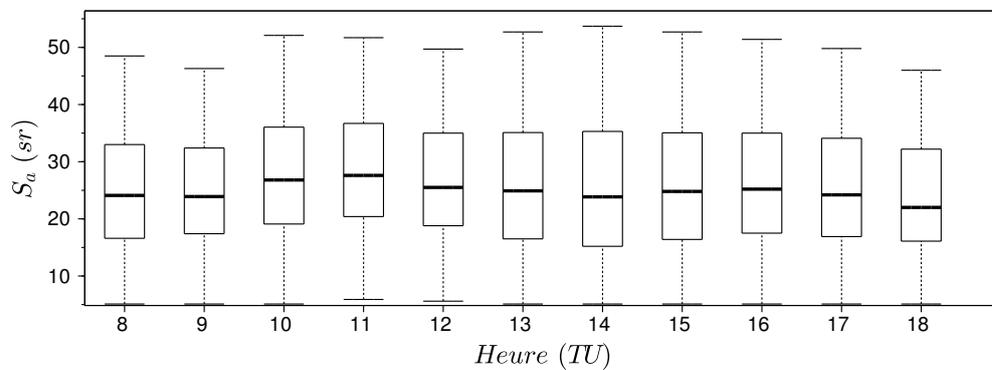
(a) Série temporelle.



(b) Variation annuelle.



(c) Variation mensuelle.



(d) Variation horaire.

FIGURE 4.16 – Rapport lidar  $S_a$  à 532 nm issu des inversions lidar/photomètre.

%. Nous ne pouvons affirmer, malgré le soin apporté aux calibrations, qu'il ne s'agit pas ici d'une dépendance instrumentale. Les caractéristiques instrumentales ont en effet évolué au cours de la période d'observation (changement de laser, de fibre optique, ...).

À l'échelle journalière, nous constatons des valeurs légèrement plus élevées autour de 10h00 et 16h00 ( $\approx 25$  sr) que celles correspondant au milieu, au début ou à la fin de journée (23 sr à 08h00-09h00, 24 sr entre 13h00 et 15h00 et moins de 22 sr à 18h00). L'amplitude de la tendance est cependant faible compte tenu de la variabilité du paramètre.

	Hiver	Printemps	Été	Automne
$\tau$	$0,32 \pm 0,20$	$0,50 \pm 0,32$	$0,56 \pm 0,31$	$0,38 \pm 0,24$
$\alpha$	$0,49 \pm 0,27$	$0,29 \pm 0,18$	$0,23 \pm 0,17$	$0,45 \pm 0,25$
$\varpi_0$	$0,86 \pm 0,04$	$0,92 \pm 0,02$	$0,94 \pm 0,03$	$0,92 \pm 0,04$
$m_r$	$1,43 \pm 0,06$	$1,46 \pm 0,03$	$1,47 \pm 0,04$	$1,45 \pm 0,05$
$m_i$	$0,011 \pm 0,007$	$0,004 \pm 0,002$	$0,003 \pm 0,001$	$0,005 \pm 0,004$
$r_{fine}$ ( $\mu\text{m}$ )	$0,13 \pm 0,02$	$0,14 \pm 0,03$	$0,15 \pm 0,03$	$0,13 \pm 0,02$
$r_{coarse}$ ( $\mu\text{m}$ )	$1,81 \pm 0,24$	$1,70 \pm 0,16$	$1,70 \pm 0,14$	$1,75 \pm 0,19$
$n_{0,c}/n_{0,f}$	$6,37 \pm 5,57$	$10,89 \pm 6,26$	$13,15 \pm 6,12$	$7,10 \pm 5,86$
$S_a$ (sr)	$26 \pm 13$	$25 \pm 13$	$34 \pm 20$	$37 \pm 17$
$PM_{10}$ ( $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ )	$149 \pm 107$	$145 \pm 153$	$56 \pm 29$	$75 \pm 57$

TABLE 4.2 – Principales propriétés intégrées des aérosols et concentration mesurée au niveau du sol par le TEOM (moyenne  $\pm \sigma$ ).

## 4.3.7 Interprétation

### 4.3.7.1 Tendances à long-terme

Peu de tendances à long-terme ont pu être dégagées de l'application du test saisonnier de Mann-Kendall.

Nous avons néanmoins constaté, premièrement, une légère diminution de la partie réelle de l'indice de réfraction,  $m_r$ , pendant l'automne. Ce changement d'indice coïncide avec un changement de la distribution des vents, au niveau du sol, sur la période de mesures météorologiques disponibles (2005-2010), comme l'indiquent les roses des vents saisonnières, présentées sur la Figure 4.17. Si le vent vient majoritairement de l'Ouest en 2006, une déviation progressive s'est déroulée au cours de la période d'observation. En 2010, la direction privilégiée est, ainsi, le Nord-Est. La contribution des aérosols marins, au niveau du sol, est donc susceptible d'être plus importante en 2006 qu'en 2010. L'indice de réfraction,  $m_r$ , associé à 2006 devrait donc être inférieur à celui de 2010. Or, c'est une tendance inverse que nous observons. De plus, les aérosols marins étant non-absorbants, nous aurions dû observer simultanément une diminution de la partie imaginaire, ce qui n'est pas le cas. La direction des masses d'air d'altitudes supérieures a probablement

également varié, ce qui impliquerait un transport d'aérosols provenant de régions sources différentes. La différence de nature des particules transportées en altitude pourrait-être à l'origine du changement d'indice moyen sur la colonne d'atmosphère. Notons cependant que la précision espérée sur l'indice de réfraction, pour des aérosols dominés par le mode grossier, est de l'ordre de 50 %. La tendance à long-terme observée n'est donc pas majeure.

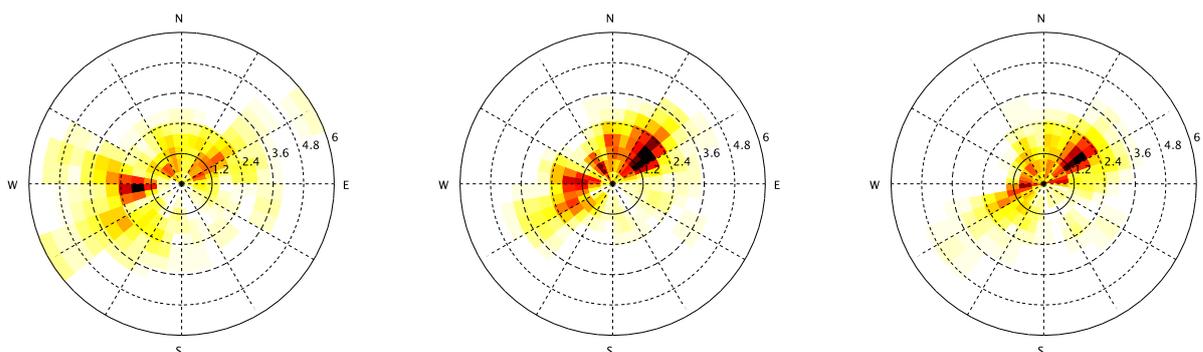


FIGURE 4.17 – Roses des vents correspondant à l'automne pour les années 2006, 2008 et 2010 (de gauche à droite).

La seconde tendance observée concerne les rayons modaux de la distribution en taille. Nous constatons, ainsi, au printemps, une diminution du rayon effectif du mode fin,  $r_{fine}$ , de l'ordre de 20 % associée à une augmentation de celui du mode grossier,  $r_{coarse}$  de l'ordre de 10 %. Aucune variation de paramètres (paramètres météorologiques inclus) ne permet d'expliquer une telle tendance pour cette saison.

#### 4.3.7.2 Tendances saisonnières

Les tendances saisonnières des différents paramètres mettent en évidence deux saisons contrastées : l'été (saison humide) et l'hiver (saison sèche), entre lesquelles viennent s'interposer les saisons « intermédiaires » que sont le printemps et l'automne.

Les cycles annuels observés pour chacun des paramètres, d'amplitudes relatives différentes, sont soit en phase, soit en opposition de phase.

L'été est caractérisé par une forte charge en aérosols (épaisseur optique maximale) associée à des particules de grande dimension, comme l'indique la faible valeur de  $\alpha$  et le rapport  $n_{0,c}/n_{0,f}$  maximal. Ces particules sont moyennement absorbantes ( $\varpi_0 = 0,94$ ). Cela est confirmé par l'indice de réfraction dont la partie imaginaire est minimale (mais non nulle) pour cette saison (0,003). Ces valeurs sont cohérentes avec la présence de particules désertiques. La présence de sels marins, suggérée par les rétro-trajectoires aux faibles altitudes, n'est cependant pas contradictoire avec ces observations. Nous constatons logiquement, pendant cette saison, le maximum d'humidité relative, qui n'affecte

cependant que peu les propriétés optiques (dont l'extinction) des poussières désertiques (Gasso et al. (2000)) et n'est donc probablement pas la cause de l'augmentation d'épaisseur optique. Les rétro-trajectoires à 3000 m et 5000 m indiquent, pour cette saison, des vents provenant des régions sources Saharienne et Sahélienne. Le transport des masses d'air relatives, alors massivement chargées en poussières minérales, vers l'Océan Atlantique, est responsable d'une augmentation de la charge en particules sur la colonne, et donc de l'augmentation de l'épaisseur optique. Cette saison est pourtant associée aux plus faibles concentrations mesurées au niveau du sol (Tableau 4.2). L'apparente contradiction avec les fortes valeurs d'épaisseur optique (Chiapello et al. (1995)) semble témoigner du transport des poussières en altitude.

L'hiver est associé à une charge totale en particules bien inférieure. La valeur maximale de  $\alpha$  et le minimum du rapport  $n_{0,c}/n_{0,f}$  sont révélateurs d'une diminution de la taille des particules, dont la distribution est néanmoins toujours dominée par le mode grossier. Ces particules sont de nature absorbante, comme l'indique la valeur minimale de l'albédo de diffusion simple ( $\varpi_0 = 0,86$ ) à laquelle est attribuée la plus forte partie imaginaire de l'indice de réfraction (0,011). Ces valeurs correspondent à un mélange de poussières désertiques et d'aérosols issus de la combustion de biomasse (Derimian et al. (2008b)). Comme nous l'indiquions précédemment, cette saison est sujette à des feux de végétation provenant des pratiques agricoles (Liousse et al. (2010)). La détection d'événements de feux de biomasse par télédétection a ainsi pu être réalisée, pendant la saison sèche, à proximité des zones concernées : Pelon et al. (2008) à Djougou (Bénin), ou encore Cavalieri et al. (2010) à Banizoumbou (Niger), Cinzana (Mali) et même à Mbour, pour les trois premières années d'observation lidar. Une étude récente basée sur des mesures in-situ (et leur composition en aromatiques) effectuées pendant la saison sèche, à Mbour, montre que les particules organiques du site proviennent plutôt de sources locales (cuisine au feu de bois, brûlage à basse température d'herbes/feuilles sèches) que du transport des feux de végétation de la zone Sahélienne (Flament et al. (2011)).

#### 4.3.7.3 Tendances journalières

Cette contribution locale en émission d'aérosols carbonés est probablement responsable d'une partie des tendances journalières observées. Nous avons précédemment mis en évidence des cycles journaliers (ou des parties de cycle, selon la disponibilité temporelle des données). Ces cycles ne sont pas dus à un effet saisonnier (mesures plus fréquentes à 08h00 et 18h00 lors de la saison estivale) puisqu'ils sont observés pour toutes les saisons (Figure 4.18).

Le coefficient d'Angström,  $\alpha$ , présente des valeurs plus faibles en début et fin de journée (qu'au milieu de journée). Il lui sont associées des valeurs importantes du rapport  $n_{0,c}/n_{0,f}$  ainsi que des valeurs plus faibles de rapport lidar  $S_a$ . La variation de l'ensemble de ces paramètres est cohérente et indique que les aérosols sont de plus petite dimension au

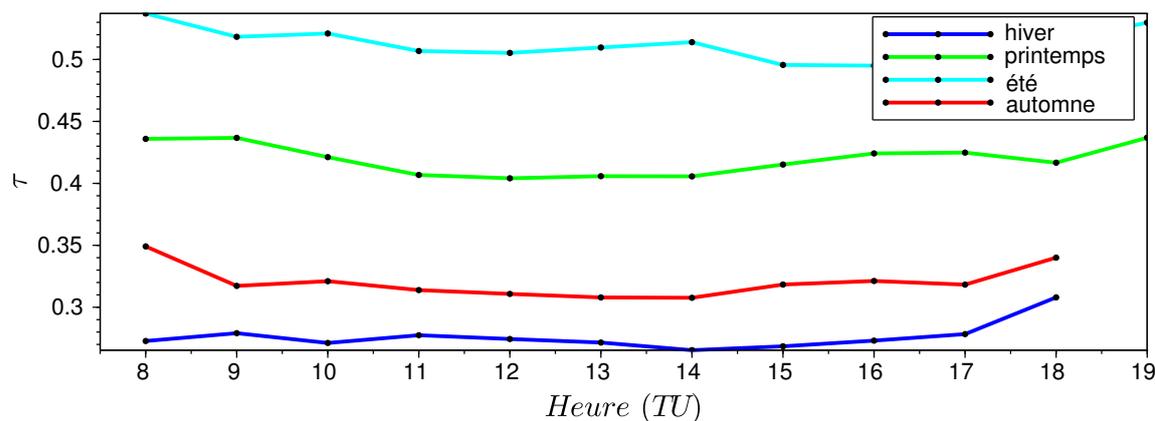
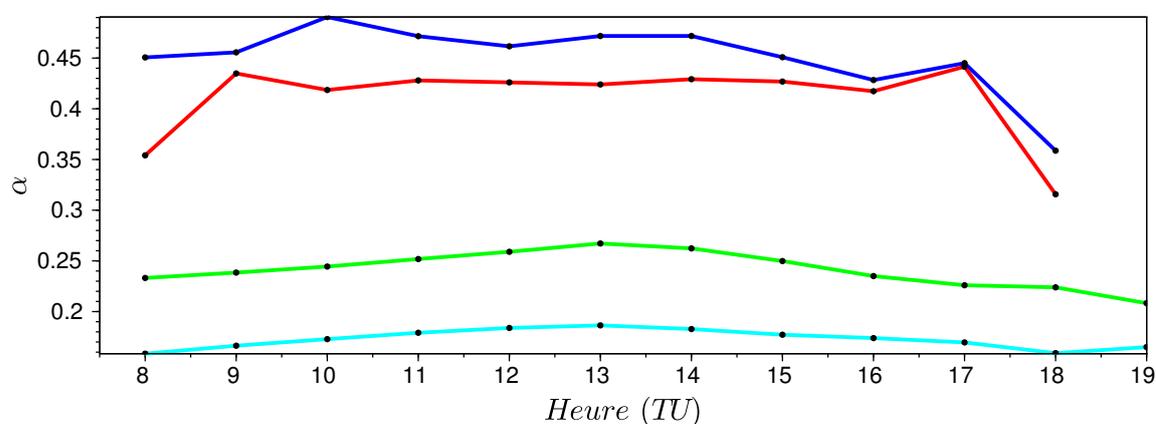
(a) Épaisseur optique  $\tau$ .(b) Coefficient d'Angström  $\alpha$ .

FIGURE 4.18 – Variation journalière des paramètres optiques en fonction de la saison.

milieu de journée. L'humidité relative correspondante y est minimale (60 % à 12h00 contre 80 % à 06h00), ce qui pourrait expliquer les cycles journaliers plus marqués, concernant le coefficient d'Angström, en hiver et en automne, lorsque la contribution des poussières minérales (peu affectées par l'humidité) est relativement moins importante.

Nous observons, simultanément à cette variation diurne de taille de particules, des cycles pour les paramètres  $\varpi_0$  et  $m_i$ . Ceux-ci sont, logiquement, opposés. Des valeurs plus faibles (importantes) de  $\varpi_0$  ( $m_i$ ) sont observées au lever et au coucher du Soleil et indiquent donc la présence de particules plus absorbantes en milieu de journée. Cette variation peut-être expliquée par l'émission locale, le jour, d'aérosols carbonés provenant par exemple du mode de cuisson local au feu de bois. La proportion alors plus importante de ces aérosols, de petite dimension, pourrait également expliquer la variation de taille des particules, intégrée sur la colonne.

L'étude des paramètres aérosols à l'échelle journalière a également permis de mettre en évidence un cycle concernant l'épaisseur optique  $\tau$ , dont le minimum est généralement observé entre 12h00 et 14h00. Cette tendance, pour des sites de nature similaire (Nigeria), a déjà été observée, sans pour autant être expliquée (Smirnov et al. (2002)). Les données météorologiques (limitées à 4 par jour) indiquent des vitesses de vent plus importantes à 12h00 ( $\approx 3 \text{ m.s}^{-1}$ ) qu'à 18h00 ou 06h00 ( $\approx 1,5 \text{ m.s}^{-1}$ ). Cette différence de vitesse pourrait être à l'origine d'une meilleure dispersion des particules la journée, ce qui expliquerait donc les plus faibles niveaux d'épaisseur optique associés.

Dans notre étude, la faible fréquence des données météorologiques ne nous permet pas de traiter du phénomène de brise de mer, qui affecte assez régulièrement le site d'observation. Ce changement brutal de direction de vent modifie la température, l'humidité et logiquement, les propriétés optiques apparentes des particules transportées.

#### 4.3.7.4 Tendances hebdomadaires

Nous nous concentrons, à l'échelle hebdomadaire, comme nous l'avons fait pour Lille, sur les variations d'épaisseur optique  $\tau$ , du coefficient d'Angström  $\alpha$  et de la concentration en particules  $\text{PM}_{10}$  (Figure 4.19).

Les variations relatives des paramètres sont moins importantes que celles observées à Lille. Elles ne sont pas, non plus, comme c'était le cas pour le site urbain, en phase. La variation hebdomadaire du coefficient d'Angström ne présente pas de tendance marquée (diminutions et augmentations successives inférieures à 5 %). Nous constatons, néanmoins un cycle, concernant l'épaisseur optique, d'amplitude d'environ 7 %, dont les minimums sont atteints au début et en fin de semaine, ainsi qu'une augmentation de la concentration en particules au niveau du sol ( $\text{PM}_{10}$ ) de l'ordre de 10 % du lundi au samedi. La population de Mbour avoisine les 200000 habitants, soit une population similaire à la ville de Lille (225000 habitants hors conurbation). Les véhicules utilisés par les habitants sont généralement très vétustes :

« Si le gouvernement appliquait les normes internationales, plus de 90 % du parc automobile du Sénégal iraient en fourrière »

a ainsi affirmé Thierno Alassane Sall, ministre des Infrastructures et des Transports, en juillet 2013. L'émission en particules y est donc largement supérieure, proportionnellement au nombre de véhicules, à celle de Lille. Le cycle hebdomadaire de concentration en particules pourrait ainsi être expliquée par le transport automobile. Les faibles vitesses de vent mesurées au niveau du sol, ne permettant pas une bonne dispersion, provoqueraient une accumulation importante des particules, d'où le décalage entre les cycles d'épaisseur optique  $\tau$  et de  $\text{PM}_{10}$ , qui évoluent en phase à Lille (où des plus grandes vitesses de vent au niveau du sol sont mesurées).

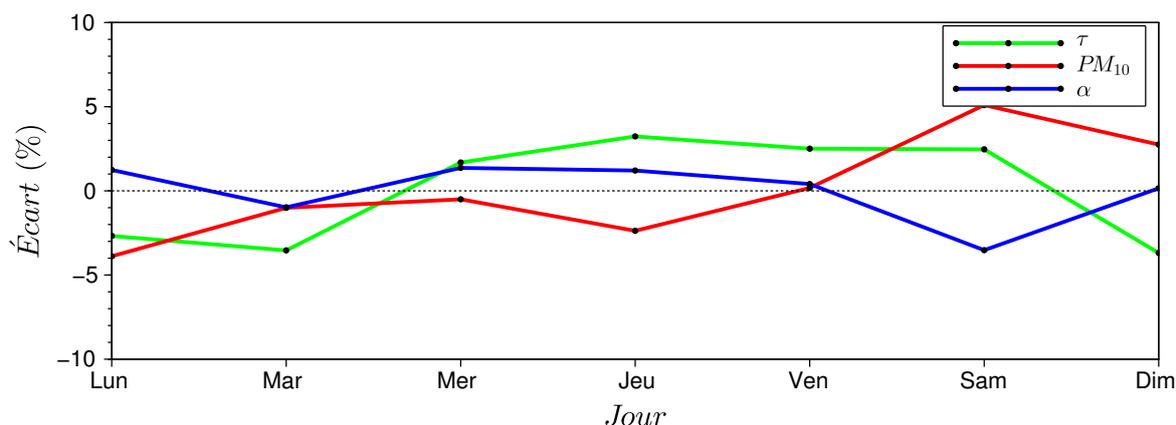


FIGURE 4.19 – Variation hebdomadaire des différences entre les paramètres aérosols (épaisseur optique  $\tau$ , concentration mesurée au niveau du sol  $PM_{10}$  et coefficient d'Angström  $\alpha$ ) et leur valeur moyenne respective.

## 4.4 Distribution verticale

Léon et al. (2009) présentent la distribution verticale des aérosols sur le site de Mbour, issue des observations du lidar, sur une courte période (2006-2008). La base de données a aujourd'hui plus que doublé et les traitements et corrections instrumentales ont évolué. Nous présentons, dans cette partie, les résultats issus de la combinaison lidar-photomètre, pour la période 2006-2012.

### 4.4.1 Profils d'extinction et hauteurs de couches

#### 4.4.1.1 Tendances saisonnières

La série temporelle des profils d'extinctions (moyennés mensuellement) est présentée sur la Figure 4.20. Nous constatons, en premier lieu, que les niveaux d'extinction sont bien supérieurs à ceux mesurés sur Lille. Les valeurs maximales sont observées au niveau du sol, généralement en milieu d'année (été) et peuvent atteindre des valeurs proches de  $0,35 \text{ km}^{-1}$ . Des valeurs significatives d'extinction sont observées au-dessous du sommet de couche ( $TL$ ) jusqu'à 4 km d'altitude en hiver et 5 km en été. Excepté pour 2008 et 2009, nous observons des valeurs importantes d'extinction ( $\sigma_{ext} > 0,1 \text{ km}^{-1}$ ) dans une couche située au-dessus de la couche limite ( $BL$ ) comprise entre 1 km et 3-4 km d'altitude. Malgré la variabilité inter-annuelle, nous retrouvons donc des tendances saisonnières quant à la distribution verticale des aérosols.

Les moyennes saisonnières sont présentées sur la Figure 4.21 et les moyennes mensuelles (qui permettent de constater, pour certains mois, des différences avec les profils

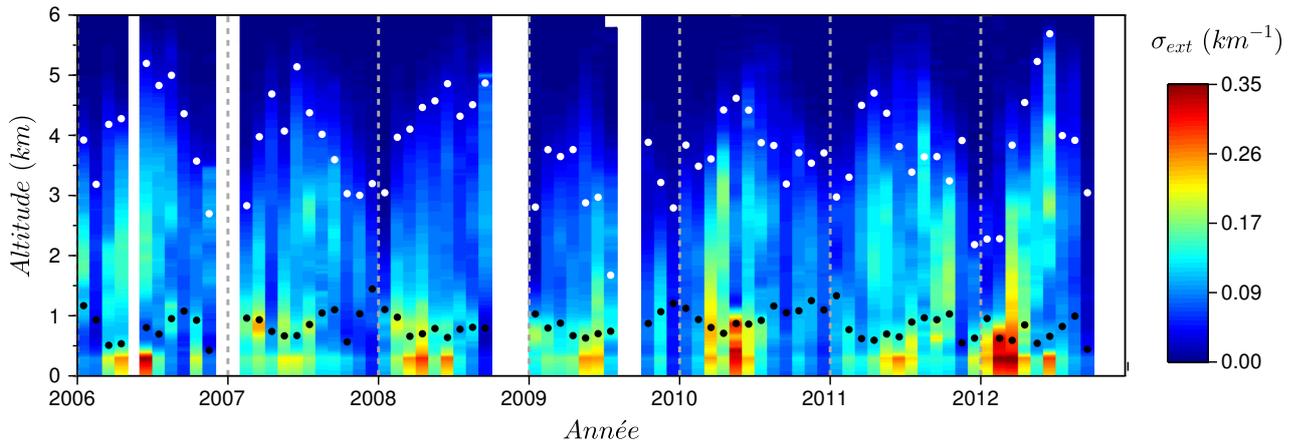


FIGURE 4.20 – Série temporelle des profils verticaux d’extinction mensuels. Les points blancs et noirs correspondent respectivement aux hauteurs de couche limite ( $BL$ ) et de sommet de couche ( $TL$ ).

présentés par Léon et al. (2009)) sur la Figure 4.22. Les valeurs moyennes saisonnières des principaux paramètres sont reportées dans le Tableau 4.3 page 185.

L’hiver est caractérisé, en général, par une décroissance relativement monotone de l’extinction avec l’altitude. La moyenne saisonnière au niveau du sol est de  $\sigma_{ext}(z_0) = 0,12 \text{ km}^{-1}$ , contre  $0,04 \text{ km}^{-1}$  à 3 km d’altitude, soit une diminution relative de plus de 60 %.

Au printemps, nous constatons une augmentation des valeurs d’extinction au niveau du sol (+ 50 %), mais surtout en altitude (+ 125 % à 3 km d’altitude). Ceci est cohérent avec les rétro-trajectoires (et les propriétés intégrées sur la colonne précédemment décrites) qui indiquent une influence des sources désertiques à 3 km d’altitude pour cette saison. L’augmentation de l’extinction, dans les plus basses couches pourrait être attribuée à la contribution des aérosols marins suggérée par les rétro-trajectoires au niveau du sol.

Lors de l’été, nous observons une légère diminution de l’extinction au niveau du sol (importante, au mois d’août), pour une augmentation des niveaux d’extinction aux altitudes supérieures. La couche d’aérosols transportée en altitude (Saharan Air Layer) est ici nettement visible, au-dessus de la couche limite. À 5 km d’altitude, l’extinction passe, en moyenne, de  $0,01 \text{ km}^{-1}$ , au printemps, à  $0,03 \text{ km}^{-1}$  en été. Ceci est cohérent avec les rétro-trajectoires qui indiquent, pour cette altitude, une contribution des sources de poussières désertiques plus tardive que pour les masses d’air situées à 3 km d’altitude. La proportion de poussières désertiques sur la colonne est maximale cette saison, ce qui est en accord avec les variations des propriétés micro-physiques et optiques des aérosols.

L’automne est caractérisé par les plus faibles valeurs d’extinction au niveau du sol ( $0,10 \text{ km}^{-1}$ ). Si l’on ne considère pas les années 2008 et 2012 pour lesquelles les moyennes saisonnières sont effectuées sur un faible nombre d’inversion, des valeurs importantes

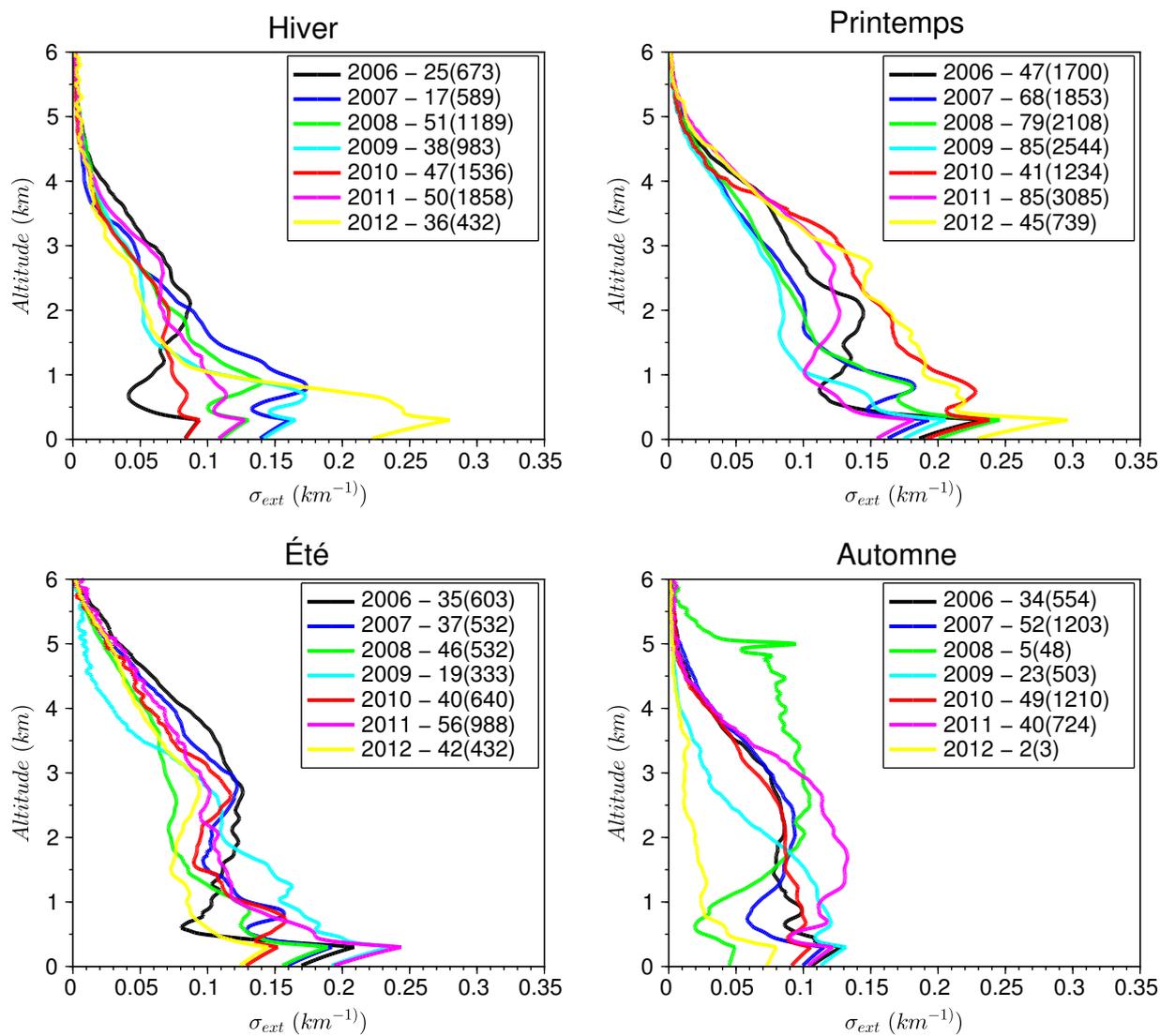


FIGURE 4.21 – Profils verticaux d’extinction saisonniers, par année. À côté de chaque année, le nombre de jours différents coïncidant avec la période spécifique, ainsi que le nombre total d’inversions pour cette même période (entre parenthèses).

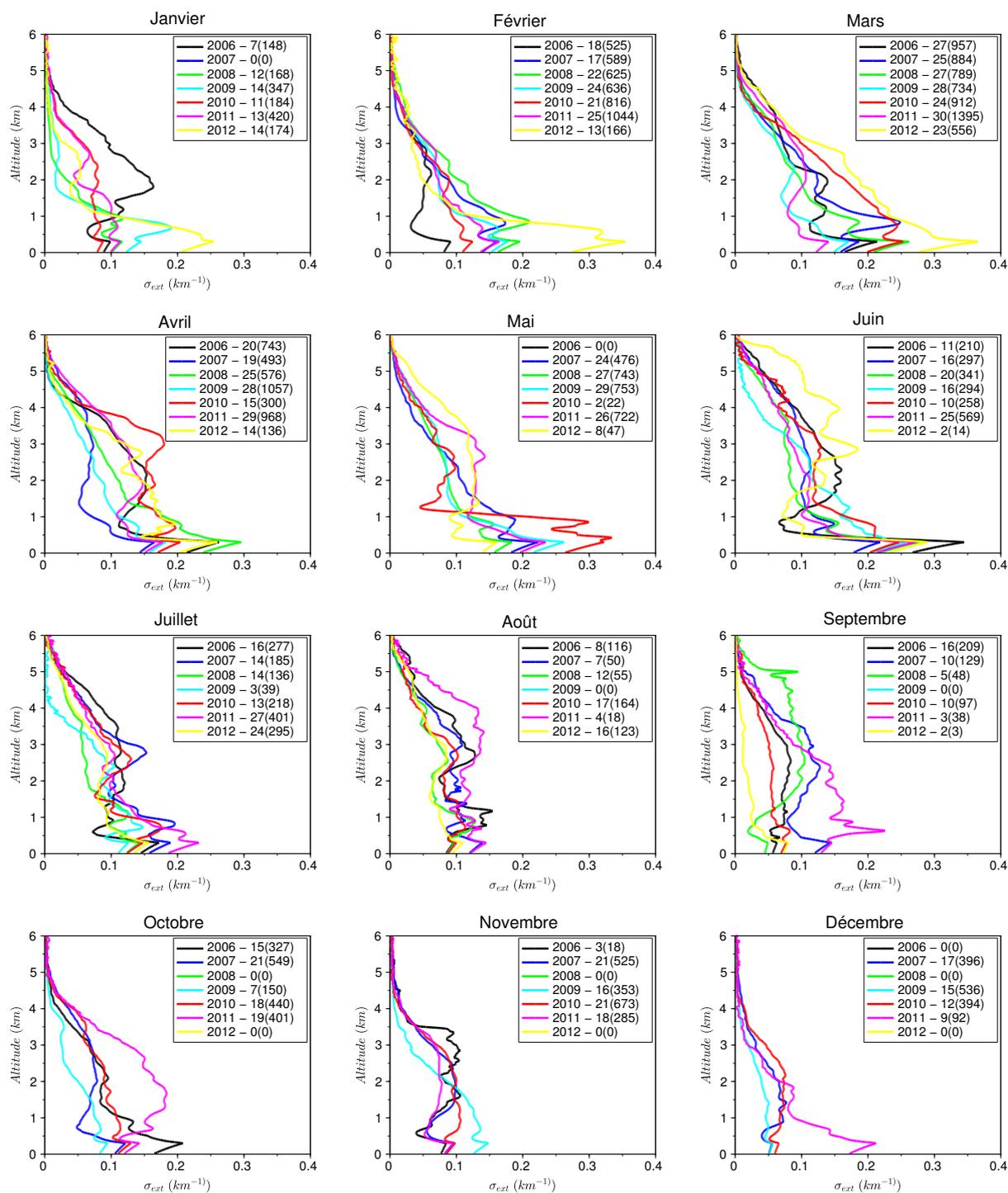


FIGURE 4.22 – Identique à la Figure 4.21 pour les moyennes mensuelles.

d’extinction à 3 km sont encore observées. Les rétro-trajectoires associées à cette saison indiquent, en accord, une contribution résiduelle des sources, à cette altitude.

À la différence de Lille, le sommet de la couche limite  $BL$  n’est pas corrélé avec la température. Les plus faibles valeurs sont même constatées lors de l’été. La différence de température inter-saisonnière est très faible à Mbour. En effet, seuls 3 degrés séparent l’hiver (26°C) de l’été (29°C). Le minimum de  $BL$  observé pendant l’été pourrait être dû au lessivage plus fréquent (saison humide) qui permet de nettoyer les basses couches de l’atmosphère.

Le cycle annuel du sommet de couche  $TL$  d’amplitude de plus de 1000 m, est la signature du transport en altitude de la couche de poussières désertiques (Léon et al. (2009)).

	Hiver	Printemps	Été	Automne
$\sigma_{ext}(z_0)$ (km <sup>-1</sup> )	0,12±0,09	0,18±0,10	0,16±0,10	0,10±0,07
$\sigma_{ext}(3 km)$ (km <sup>-1</sup> )	0,04±0,04	0,09±0,06	0,10±0,06	0,07±0,05
$BL$ (m)	870±590	680±490	740±490	840±630
$TL$ (m)	2760±1440	3880±1330	3340±1700	3040±1400

TABLE 4.3 – Moyennes saisonnières et écarts types des coefficients d’extinction au niveau du sol  $\sigma_{ext}(z_0)$  et à 1 km d’altitude et des hauteurs de couche limite ( $BL$ ) et sommet de couche ( $TL$ ).

#### 4.4.1.2 Tendances journalières

À l’échelle journalière, comme à l’échelle saisonnière, les températures sont très stables. La plus grosse variation de température au cours de la journée correspond, au printemps, à une différence de 4,1 °C (Figure 4.23 et Tableau 4.4). En automne, avec  $\Delta T \approx 2,4$  °C, la variation est minimale. Les différences de convection entre le jour et la nuit, dépendant de la température, sont donc également très faibles, ce qui implique alors une relative stabilité des couches. Nous observons néanmoins au printemps et principalement en été un gonflement de la couche limite de 09h00 à 14h00 ( $\Delta BL \approx 200$  m) suivi d’un affaissement, de même amplitude, se terminant à 21h00.

La variation horaire de  $TL$  est probablement affectée par l’effet de condensation, voire de gouttelettes d’eau stagnantes issues des précipitations importantes lors de la saison humide, sur la lentille de l’instrument. Dans ces cas, la propagation du faisceau laser peut être fortement atténuée. Le nettoyage de la lentille est effectué chaque matin vers 08h00, ce qui coïncide avec une augmentation du paramètre.

Les faibles variations de hauteur de couche n’ont, à leur tour, que peu d’effet sur la variation diurne du coefficient d’extinction  $\sigma_{ext}(z_0)$  mesuré au niveau du sol, dont les variations constatées pour chaque saison peuvent difficilement être expliquées par les

différences de hauteur de couche. De l'automne au printemps, nous observons les plus grandes valeurs d'extinction en milieu de journée. En hiver, celles-ci connaissent plutôt une diminution importante au cours de la journée. Elles passent ainsi de  $0,22 \text{ km}^{-1}$  à 08h00 à  $0,16 \text{ km}^{-1}$  à 19h00, soit une diminution de près de 30 %.

	Hiver	Printemps	Été	Automne
$\Delta T$ (°C)	3,11	4,10	2,80	2,42
$\Delta BL$ (m)	157	170	200	160
$\Delta TL$ (m)	240	620	1120	480

TABLE 4.4 – Variations moyennes journalières de température et des hauteurs de couches  $BL$  et  $TL$  par saison.

#### 4.4.2 Estimation de la concentration

Dans le chapitre précédent, nous déduisons la section correspondante (3.4.2) par une comparaison quantitative de différentes méthodes d'estimation de la concentration au niveau du sol. Nous nous attacherons, dans cette partie, à l'estimation de la concentration massique au niveau du sol à partir de la synergie des inversions du photomètre (distribution en taille, indice de réfraction) et de l'extinction dérivée du lidar.

Nous disposons, pour ce site, d'un grand nombre d'inversions photométriques. Nous ne nous contraignons donc pas, comme ce fut le cas pour Lille, à une distribution en taille et un indice de réfraction donnés, mais utilisons ceux issus, chaque journée, des inversions photométriques. Nous utilisons une masse volumique  $\rho = 2,6 \text{ g.cm}^{-3}$ , qui correspond à celle des poussières minérales (McConnell et al. (2008)). La Figure 4.24 page 188 présente les estimations de concentration massique ainsi que les mesures in situ de  $PM_{10}$  disponibles (2006-2010) effectuées par le LISA.

Si l'estimation semble être acceptable, au regard des mesures du TEOM, pendant la saison sèche, les écarts à partir du mois de mars sont très importants (surestimation de plus de 200 %). La corrélation générale est donc mauvaise, comme l'indiquent les différences sur la restitution de la concentration ainsi que les paramètres de corrélation, reportés dans le Tableau 4.5. Pour presque la moitié des estimations (45 %), nous constatons ainsi une différence de plus de  $100 \mu\text{g.m}^{-3}$  avec les mesures in-situ.

L'étude des paramètres intégrés sur la colonne a permis de mettre en évidence les différences importantes des propriétés optiques et micro-physiques des aérosols, en fonction des saisons. Ce sont sur ces mêmes propriétés que s'appuie la méthode d'estimation de la concentration.

Les variations saisonnières de l'indice de réfraction affectent peu l'estimation de la concentration (Tableau 2.3 page 72). Cette dernière est en revanche sensible à la distri-

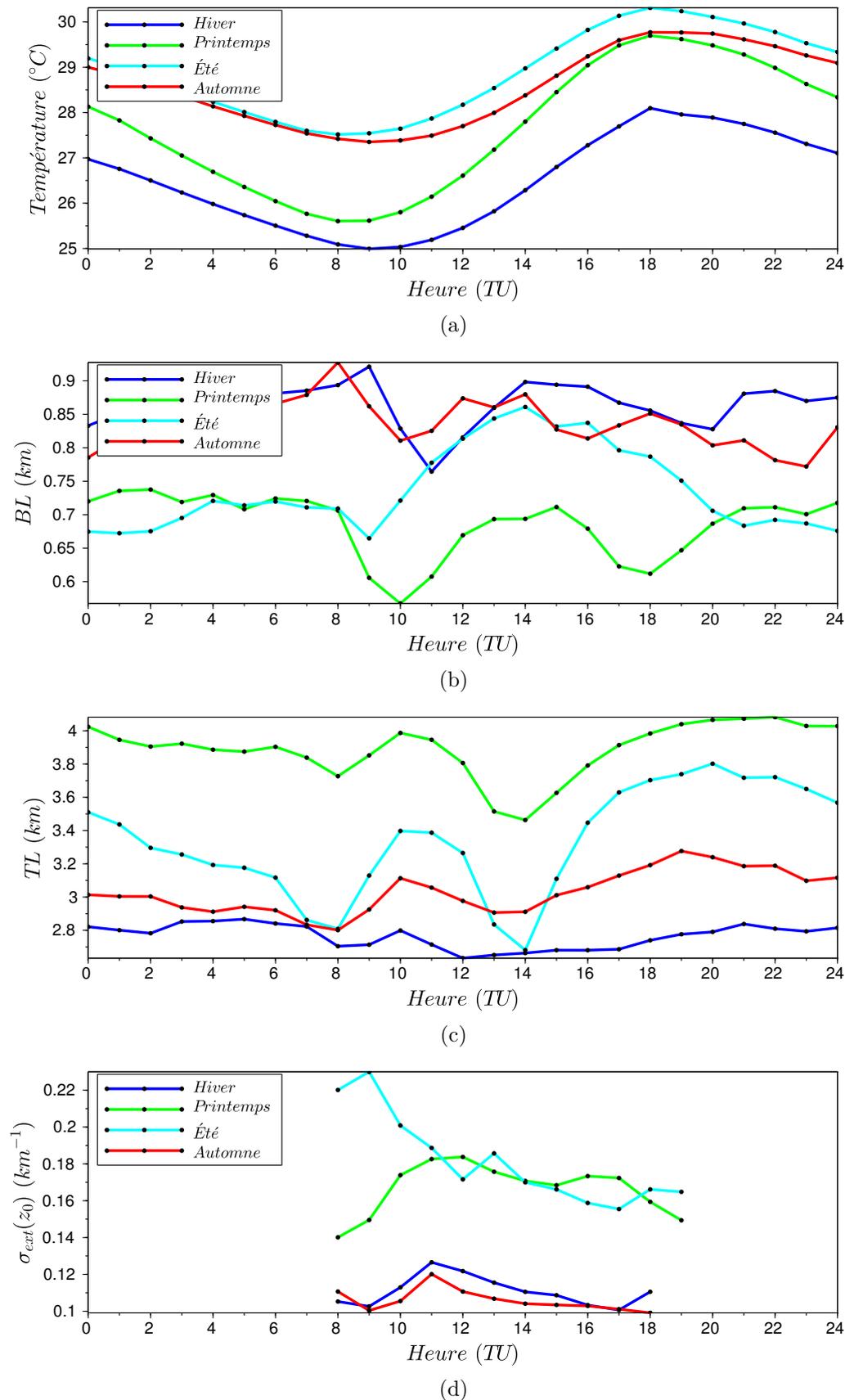


FIGURE 4.23 – Évolutions journalières de la température mesurée au niveau du sol (a), des hauteurs de couche limite (b) et de sommet de couche (c) et du coefficient d'extinction au niveau du sol (d).

bution en taille, qui connaît également des variations importantes au cours de l'année. L'amplitude du mode grossier est ainsi multipliée par 2 durant l'été. Cependant, ce mode est largement dominant, même en hiver. La multiplication du rapport des amplitudes du mode grossier et du mode fin  $n_{0,c}/n_{0,f}$  (de 6 en hiver à 13 en été) n'affecte donc que peu le coefficient  $\eta$ , reliant l'extinction à la masse, comme l'indique la Figure 2.17 page 73. Les variations saisonnières affectent donc peu, au final, le facteur  $\eta$ , qui fluctue tout au long de l'année autour de  $1,5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}$ .

Le paramètre modulant principalement l'estimation de la concentration est donc l'extinction. Cette extinction, au niveau du sol ( $\sigma_{ext}(z_0)$ ), connaît un cycle annuel : les plus fortes valeurs sont mesurées au printemps ( $0,18 \text{ km}^{-1}$ ) et les plus faibles pendant l'automne ( $0,10 \text{ km}^{-1}$ ). En revanche, concernant les  $\text{PM}_{10}$ , dont les moyennes saisonnières sont reportées dans le Tableau 4.2, les valeurs maximales et minimales sont mesurées respectivement en hiver et en été (Marticorena et al. (2010)). Cette différence de cycle explique donc le déphasage apparent entre l'estimation à partir de la synergie lidar-photomètre et les mesures in-situ.

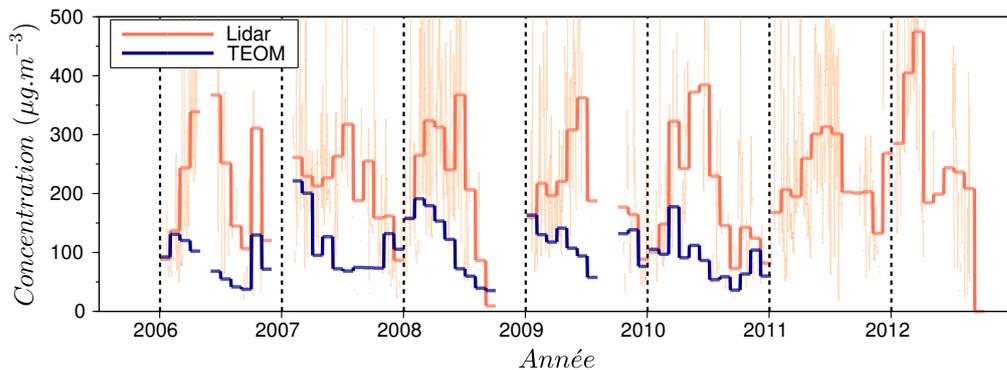


FIGURE 4.24 – Estimation de la concentration massique au niveau du sol à partir des inversions lidar-photomètre (orange) et mesures in situ ( $\text{PM}_{10}$ ) effectuées à l'aide d'un TEOM (bleu).

Nous présentons sur la Figure 4.25 le coefficient  $\eta$  qui permettrait de retrouver, depuis les valeurs d'extinction au niveau du sol, les concentrations  $\text{PM}_{10}$  issues des mesures in-situ :

$$\eta = \frac{PM_{10, in situ}}{\sigma_{ext}(z_0)} \quad (4.1)$$

Ce paramètre suit un cycle annuel dont le maximum est atteint pendant la saison sèche autour de  $1,5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}$ , ce qui explique la relative bonne restitution des  $\text{PM}_{10}$  lors de cette saison. Le minimum est atteint en été autour de  $0,5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}$  et implique, logiquement, la plus grande différence dans la restitution des  $\text{PM}_{10}$ .

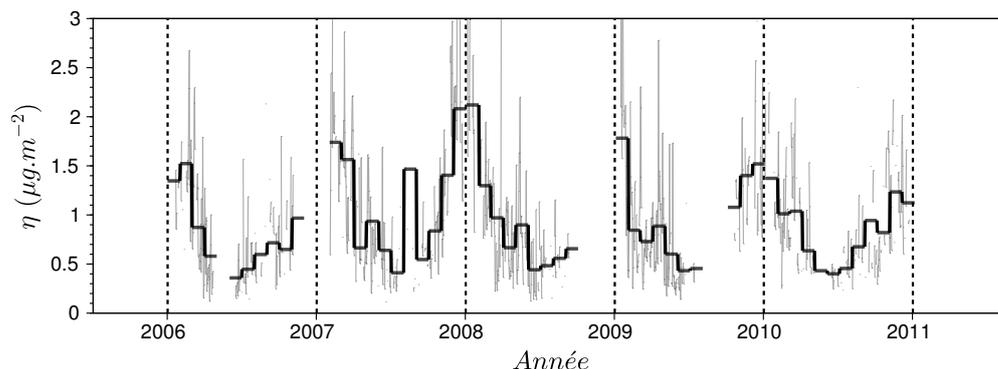


FIGURE 4.25 – Série temporelle du coefficient reliant l’extinction à la concentration massique mesurée au sol (PM<sub>10</sub>).

Un tel cycle pourrait être reproduit avec un changement de distribution en taille. Si la distribution en taille évolue en fonction de l’altitude, celle utilisée pour décrire les particules au niveau du sol pourrait, en effet, ne pas correspondre à la distribution en taille moyennée sur la colonne fournie par AERONET. Cependant, afin de reproduire ce cycle, soit, une diminution de  $\eta$ , en été, d’un facteur 2 (voire 3), il faudrait associer aux particules une distribution en taille monomodale correspondant à un mode fin exclusif. Ceci n’est pas réaliste, puisqu’au contraire, une augmentation globale de la taille des grains au niveau du sol est observée lors de cette saison (Skonieczny et al. (2013)).

Un changement de masse volumique pourrait également permettre d’expliquer le cycle de  $\eta$ . Ce dernier est en opposition de phase de celui de la direction des vents au niveau du sol (Figure 4.26). Comme nous l’avons vu précédemment, lors de l’été, les masses d’air ont une origine plutôt océanique. Or, les aérosols marins ont une masse volumique proche de celle de l’eau ( $1\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) bien inférieure à celle des particules désertiques.

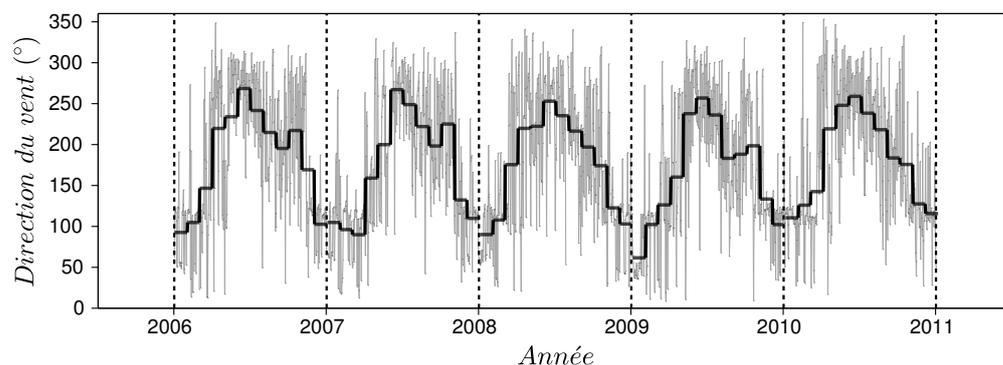


FIGURE 4.26 – Série temporelle de la direction du vent mesurée au niveau du sol.

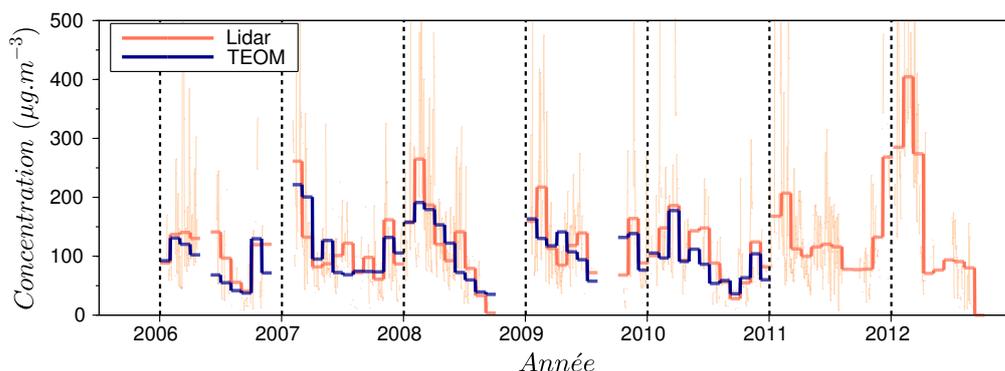
La Figure 4.27 représente la restitution des  $PM_{10}$  avec l'utilisation d'une masse volumique dépendant de la saison et dont la valeur a été choisie en fonction de l'origine des masses d'air au niveau du sol. De novembre à février, le vent venant du Nord-Est, une masse volumique de  $2,6 \text{ g.cm}^{-3}$  a été utilisée afin de caractériser les poussières désertiques. D'avril à août, nous utilisons  $\rho = 1,0 \text{ g.cm}^{-3}$  pour représenter la contribution importante des aérosols marins. La transition pour les mois de mars et de novembre est simulée avec une masse volumique intermédiaire ( $1,5 \text{ g.cm}^{-3}$ ).

La corrélation est nettement meilleure (voir Tableau 4.5) puisque les tendances saisonnières sont désormais bien respectées. Nous retrouvons ainsi une concentration en particules généralement plus faible pendant la saison humide que lors de la saison sèche. Près de 70 % des estimations conduisent à un écart (avec les mesures in-situ) inférieur ou égal à  $50 \mu\text{g.m}^{-3}$ , ce qui, au regard des niveaux de concentration, semble acceptable. À plus fine échelle, nous observons également une bonne reproduction des pics ponctuels de concentration mesurée au niveau du sol. La variation horaire n'est pas ici représentée puisque nous ne disposons que des moyennes journalières des mesures in-situ. Aucune tendance n'a en revanche été constatée, à cette échelle, pour les concentrations estimées à partir de la synergie lidar-photomètre.

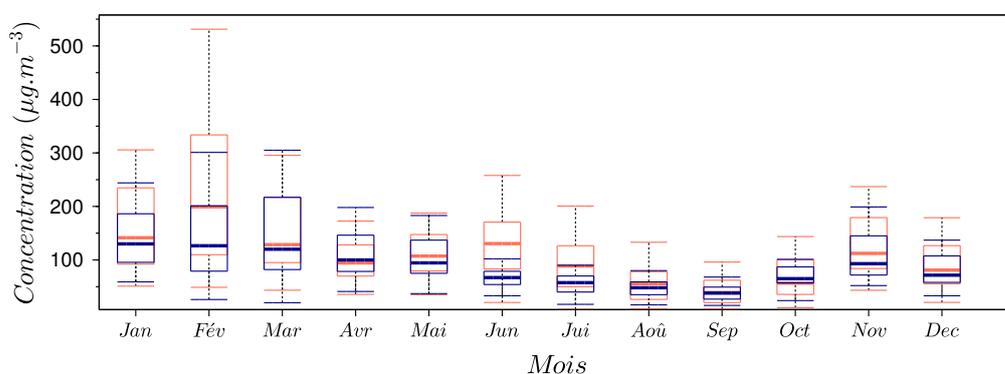
L'utilisation d'une masse volumique de  $1,0 \text{ g.cm}^{-3}$  est peut-être « extrême » étant donné que des poussières désertiques restent présentes (bien qu'en faible concentration) pendant l'été, au niveau du sol (Marticorena et al. (2010); Skonieczny et al. (2013)). L'utilisation d'une masse volumique plus importante conduirait à une concentration estimée supérieure à celle provenant des mesures in-situ. Il est cependant reconnu que l'utilisation des TEOM en milieu côtier, provoque, de part le chauffage des particules, une sous-estimation de la concentration totale. La surestimation *apparente* de l'estimation depuis le lidar-photomètre pourrait alors en partie provenir de la sous-estimation de la concentration depuis le TEOM. Des mesures de concentration de sels marins, au niveau de l'observatoire, permettrait d'apprécier l'ampleur de ce phénomène.

Méthode	$R^2$	RMSE	$\Delta < 10$ $\mu\text{g.m}^{-3}$	$\Delta < 25$ $\mu\text{g.m}^{-3}$	$\Delta < 50$ $\mu\text{g.m}^{-3}$	$\Delta < 100$ $\mu\text{g.m}^{-3}$	$\Delta < 200$ $\mu\text{g.m}^{-3}$
$\sigma_{ext,VSD,\rho}$	0,28	182	9,1 %	21,2 %	35,6 %	55,0 %	77,8 %
$\sigma_{ext,VSD,\rho(t)}$	0,45	83	19.8 %	41.8 %	66.6 %	86.9 %	96,1 %

TABLE 4.5 – Paramètres statistiques et erreurs sur l'estimation de la concentration au niveau du sol à avec une masse volumique fixe ( $\rho$ ) ou dépendant de la saison afin de reproduire l'influence des masses d'air marines ( $\rho(t)$ ). L'effectif est de 815 moyennes journalières (période commune d'observation lidar-photomètre-in situ : 2006-2010).



(a) Série temporelle.



(b) Variation mensuelle.

FIGURE 4.27 – Estimation de la concentration massique au niveau du sol à partir des inversions lidar-photomètre (orange) et mesures in situ ( $PM_{10}$ ) effectuées à l'aide d'un TEOM (bleu).

## 4.5 Évènements

### 4.5.1 Évènements de pollution particulaire et qualité de l'air

Il n'existe pas, à notre connaissance, de réels objectifs quant à la qualité de l'air au Sénégal et plus généralement en Afrique. Les seuils établis par l'Europe et appliqués en France ne peuvent pas simplement être appliqués pour ces régions qui sont affectées de manière importante par des aérosols d'origine naturelle. À Mbour, même la moyenne annuelle de concentration en particules dépasse le seuil journalier d'alerte de  $80 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . Les particules naturelles ne sont pas pour autant inoffensives, puisqu'en irritant les voies respiratoires, les évènements de poussières favoriseraient les épidémies de méningite (Chiapello (2011)).

Nous présentons sur la Figure 4.28 la série temporelle des moyennes journalières des

PM<sub>10</sub> mesurés par le TEOM à Mbour. Deux seuils (arbitraires) ont été appliqués de manière à quantifier les événements de poussières. Le premier, fixé à 200  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  donne lieu à la détection, sur les 5 années de mesures, de plus de 220 journées, réparties sur près d'une centaine d'événements, pour lesquelles la concentration journalière est supérieure au seuil relatif. Seize événements sont comptabilisés en considérant le seuil de 500  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . De part les plus faibles concentrations mesurées pendant la saison sèche, aucun événement n'est constaté lors de la saison humide.

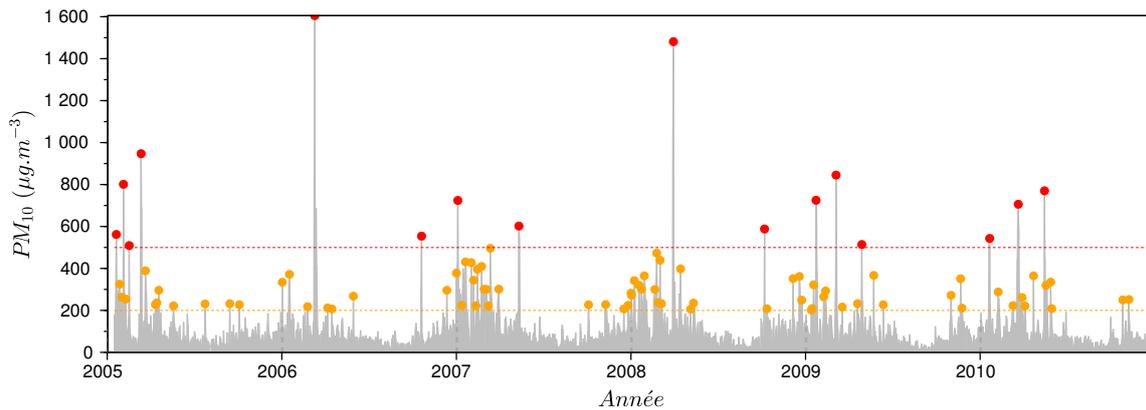


FIGURE 4.28 – Moyennes journalières de PM<sub>10</sub> mesurées à Mbour. Les points oranges et rouges représentent respectivement les maximums de concentration des événements dont les niveaux de PM<sub>10</sub> sont supérieurs à 200  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  à 500  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ .

#### 4.5.2 Classification des événements aérosols observés par télé-détection

Un simple seuil sur l'albédo de diffusion permet de séparer la plupart des événements de particules de combustion, des poussières désertiques (Léon et al. (2009)). Nous utilisons un premier seuil de  $\varpi_0=0,85$  au-dessous duquel, les particules associées (absorbantes) sont considérées comme des particules de combustion. Au delà de  $\varpi_0=0,95$ , les particules sont non-absorbantes et sont donc classées en tant que poussières désertiques. La présence d'aérosols marins, dans les basses couches de l'atmosphère, ne peut être exclue d'après ce paramètre. Finalement, les particules associées à un albédo de diffusion intermédiaire ( $0,85 < \varpi_0 < 0,95$ ) sont classées en tant que mélange de particules de combustion et de poussières désertiques.

La fréquence de détection de chaque classe de particules est représentée, en fonction de la saison, sur la Figure 4.29. Nous avons également séparé chaque classe de particules selon

l'importance de l'évènement, définie en fonction de l'épaisseur optique totale (inférieure ou supérieure à 0,5 à 532 nm). Cette représentation offre l'avantage de pouvoir quantifier la fréquence d'observations associées à chaque classe de particules.

En hiver, près de 40 % des observations correspondent à des évènements d'aérosols de combustion, dont près d'un tiers sont associées à de fortes épaisseurs optiques ( $\tau > 0,5$ ). Aucune observation attribuée à des aérosols uniquement constitués de poussières minérales « pures » n'a été réalisée lors de cette saison.

L'été contraste au maximum avec la saison hivernale, puisqu'à l'inverse, si aucune observation d'aérosols de combustion (uniquement) n'a été réalisée, 26 % des observations sont attribuées à des poussières désertiques, dont la majorité est associée à des valeurs de  $\tau > 0,5$ .

Au printemps et en automne, les observations attribuées à une des deux classes « pures » de particules sont plus rares. La majorité des observations est reliée à des cas de mélanges de particules.

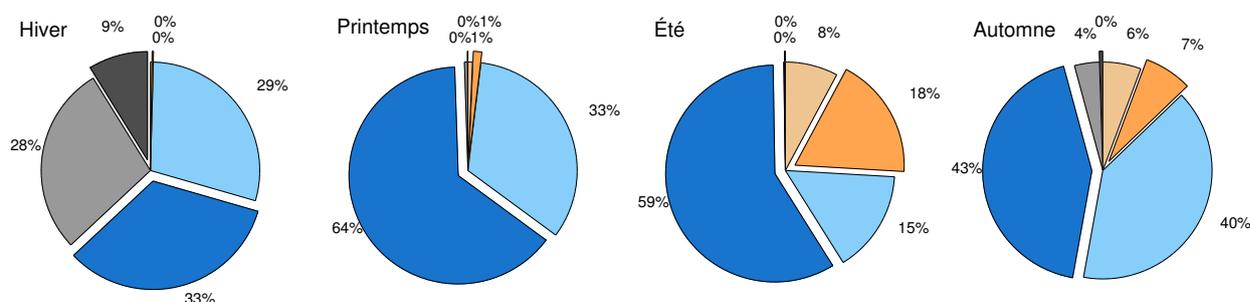


FIGURE 4.29 – Proportion des aérosols selon leur nature en fonction de la saison. En noir, les particules de combustion ( $\varpi_0 < 0,85$ ), en orange les poussières désertiques ( $\varpi_0 > 0,95$ ) et en bleu un contenu mixte ( $0,85 < \varpi_0 < 0,95$ ). Les couleurs claires et foncées sont relatives à des épaisseurs optiques,  $\tau$ , respectivement inférieures et supérieures à 0,5.

La distribution verticale des aérosols est représentée, pour chaque classe de particules, sur la Figure 4.30.

Celle-ci est contrastée en fonction du type de particules considérées. Concernant les poussières désertiques, nous retrouvons la couche de transport en altitude, comprise entre 1 et 5 km, pour laquelle l'extinction maximale est de l'ordre de  $0,15 \text{ km}^{-1}$  autour de 2 km. Pour la classe des particules issues de combustion, nous observons une couche importante comprise entre 1 et 3 km d'altitude. Les différents pics qui y figurent sont un effet de moyenne de couches situées à différentes altitudes. Dans leur article, Johnson et al. (2008) présentent l'observation d'une couche similaire d'aérosols carbonés (19 janvier 2006, Niger), comprise entre 1 et 3 km et associée également à de fortes valeurs d'extinction. En ce qui concerne les situations mixtes (observées pendant chacune des saisons), les profils

verticaux ne présentent pas de couche particulière en altitude. Les valeurs d'extinction décroissent, de manière assez stable, avec l'altitude, ce qui est, d'après l'étude de la variabilité des profils (non représentée), le résultat d'une moyenne effectuée entre des profils verticaux très contrastés.

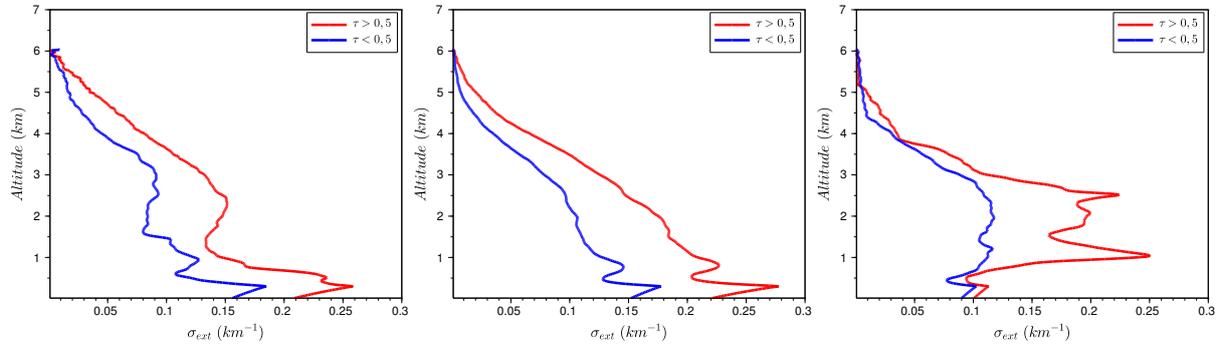


FIGURE 4.30 – Profils verticaux d'extinction saisonniers, par classe d'épaisseur, selon l'albédo de diffusion simple : de gauche à droite,  $\varpi_0 > 0,95$  (poussières désertiques),  $0,85 < \varpi_0 < 0,95$  (mélange) et  $\varpi_0 < 0,85$  (particules issues de combustion).

## 4.6 Impact radiatif

Le site de Mbour est influencé par les aérosols de combustion pendant la saison sèche, et principalement par les poussières minérales lors de la saison humide. Les processus radiatifs à l'oeuvre sur ce site impliquent donc des particules de nature différente, souvent observées sous forme de mélange (Derimian et al. (2008b)). Nous présentons ici les résultats de calcul de forçage radiatif sur l'ensemble de la base de données.

### 4.6.1 Résultats

Les profils verticaux de forçage radiatif (sur 24h00),  $\Delta F$ , sont calculés avec le code de transfert radiatif GAME. Ce dernier est alimenté d'une part par les profils verticaux issus de nos inversions lidar-photomètre et, d'autre part, par les propriétés optiques et microphysiques issues des inversions photométriques. Les moyennes mensuelles sont représentées sur la Figure 4.31. Plus loin, le Tableau 4.6 synthétise les valeurs moyennes de  $\Delta F$  au sommet de l'atmosphère (TOA) et au niveau de la surface (BOA) pour chacune des saisons.

Nous constatons une périodicité annuelle : les plus fortes valeurs de forçage sont observées, au niveau du sol, au printemps ( $\Delta F_{BOA} = -24,26 \text{ W.m}^{-2}$ ) tandis que les plus faibles le sont en hiver ( $\Delta F_{BOA} = -17,43 \text{ W.m}^{-2}$ ). La différence relative est de l'ordre de 30 % entre ces deux saisons. Au sommet de l'atmosphère, si le minimum est toujours

observé en hiver ( $\Delta F_{TOA} = -5,00 \text{ W.m}^{-2}$ ), le maximum l'est, cette fois, en été ( $\Delta F_{TOA} = -11,58 \text{ W.m}^{-2}$ ). La différence relative est, à ce niveau, plus importante ( $\approx 60 \%$ ). Le forçage atmosphérique résultant,  $\Delta F_{Atm}$ , est maximal au printemps et minimal en automne.

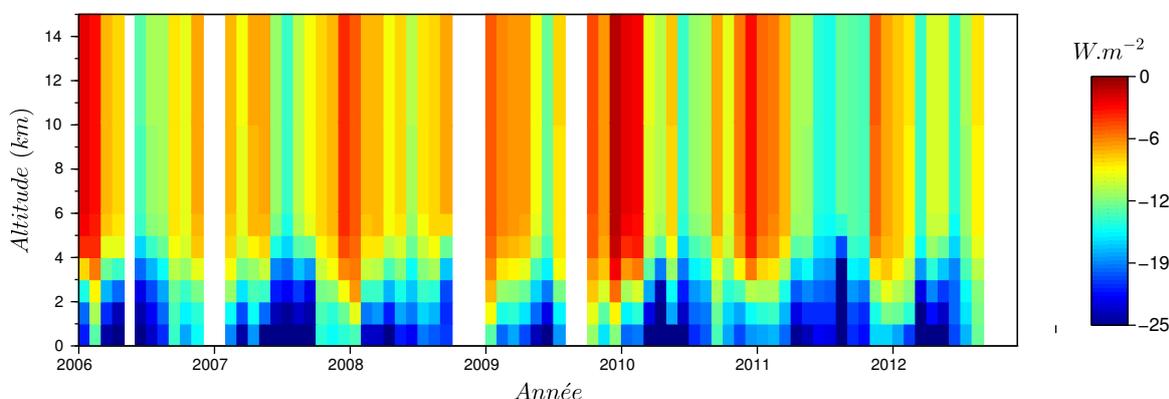


FIGURE 4.31 – Profils verticaux (moyennes mensuelles) du forçage radiatif, de 2006 à 2012, pour Mbour.

Afin de ne pas être affecté par l'important cycle annuel d'épaisseur optique  $\tau$ , nous nous intéressons, dans un second temps, à l'efficacité du forçage radiatif  $\Delta F^{eff}$ . Les valeurs correspondant à la surface et au sommet de l'atmosphère sont présentées sur la Figure 4.32. La faible variation annuelle de l'albédo de surface (entre 0,15 et 0,21) affecte peu l'efficacité (García et al. (2012)). Les maximums d'efficacité, au niveau de la surface, sont à la différence du forçage  $\Delta F$ , retrouvés en hiver ( $-65,65 \text{ W.m}^{-2}$ ). L'efficacité est minimale en été ( $-45,19 \text{ W.m}^{-2}$ ). Le cycle, au sommet de l'atmosphère est également déphasé par rapport au forçage  $\Delta F^{TOA}$ . Le maximum et le minimum sont observés respectivement en automne et au printemps pour une variation relative de près de 40 %.

Le forçage radiatif plus important, observé pendant la saison humide au niveau de la surface, est donc relié à la plus grande concentration en particules. Étant associées à une plus faible absorption, les poussières désertiques, alors prédominantes pendant cette période, présentent en effet une efficacité inférieure aux particules de combustion (au niveau de la surface), très absorbantes, observées préférentiellement pendant la saison sèche.

Pour les différentes composantes atmosphériques, nous présentons les profils verticaux de taux d'échauffement associés,  $\frac{dT}{dt}$ , sur la Figure 4.33.

Le réchauffement des plus basses couches induit par la composante gazeuse est, bien qu'en phase, moins contrasté (en fonction des saisons) que celui observé à Lille. L'échauffement journalier, au niveau du sol, est maximal pendant l'été ( $0,64 \text{ K.jour}^{-1}$ ) et minimal en hiver ( $0,39 \text{ K.jour}^{-1}$ ) (Tableau 4.7).

La plus grande contribution des aérosols, au taux d'échauffement, n'a pas toujours

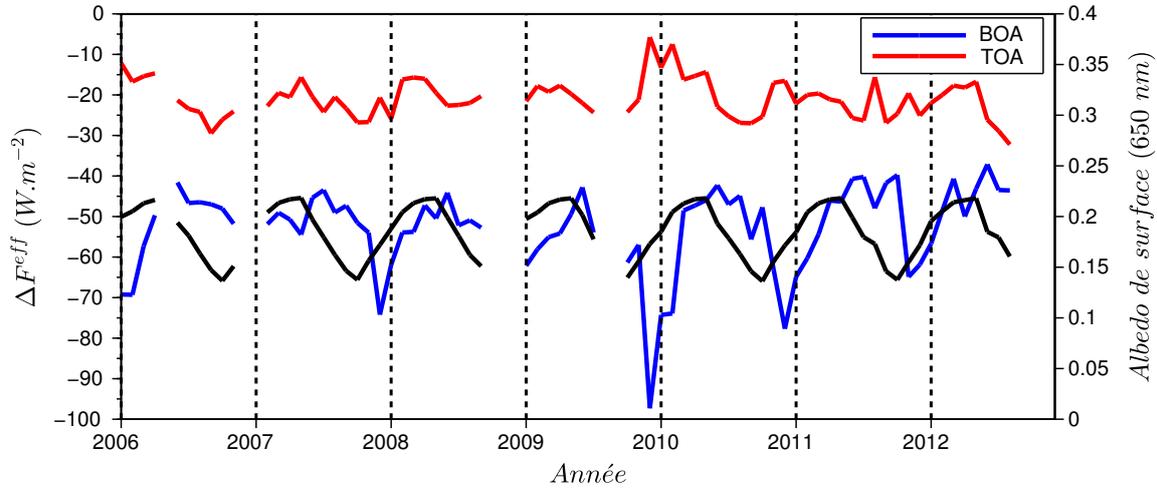


FIGURE 4.32 – Efficacité du forçage radiatif au sommet (en rouge) et à la base (en bleu) de l'atmosphère. L'albédo de surface à 650 nm est représenté par la ligne noire.

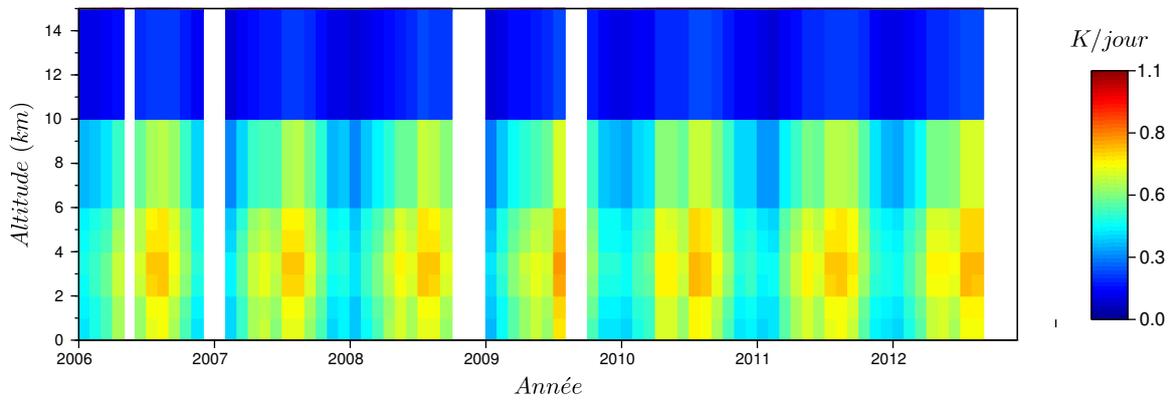
	Hiver	Printemps	Été	Automne
$\Delta F_{BOA}$ ( $\text{W.m}^{-2}$ )	-17,43	-24,26	-22,76	-17,52
$\Delta F_{TOA}$ ( $\text{W.m}^{-2}$ )	-5,00	-8,95	-11,58	-8,18
$\Delta F_{Atm}$ ( $\text{W.m}^{-2}$ )	12,42	15,30	11,17	9,34
$\Delta F_{BOA}^{eff}$ ( $\text{W.m}^{-2}$ )	-65,65	-49,69	-45,19	-52,24
$\Delta F_{TOA}^{eff}$ ( $\text{W.m}^{-2}$ )	-18,00	-17,73	-23,88	-24,17
$\Delta F_{Atm}^{eff}$ ( $\text{W.m}^{-2}$ )	47,66	31,95	21,32	28,07

TABLE 4.6 – Forçage radiatif et efficacité du forçage radiatif des aérosols, intégré sur la journée, en fonction de la saison.

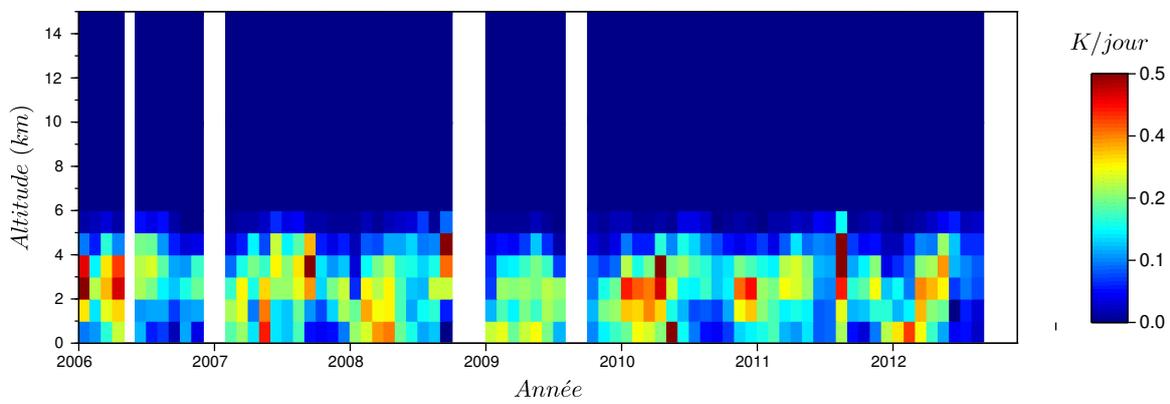
lieu au niveau de la surface. Des maximums relatifs sont ainsi constatés à une altitude de l'ordre de 2 km. Au niveau du sol, la contribution des aérosols au réchauffement total est maximale en hiver (37,5 %) et minimale en automne (<15 %).

#### 4.6.2 Influence du profil vertical de distribution des aérosols

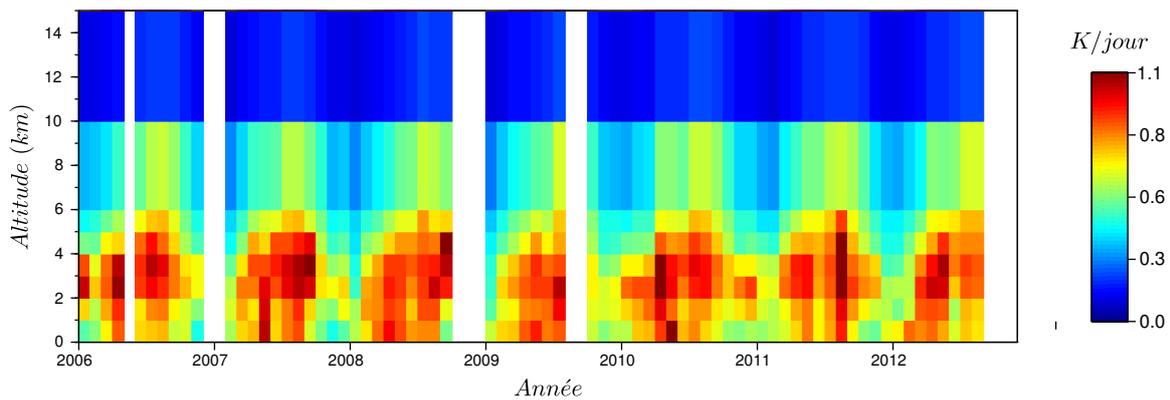
Lorsque la distribution verticale des aérosols est inconnue, des modèles simples de répartition sont utilisés (décroissance exponentielle, gaussienne, ...). Afin d'estimer l'erreur introduite par de telles simplifications, nous avons calculé le forçage radiatif sur l'ensemble des observations, avec les propriétés optiques et micro-physiques données par AERONET, et avec une distribution verticale simple des aérosols, suivant une gaussienne centrée en 2 km.



(a) Composante gazeuse.



(b) Composante aérosols.



(c) Taux d'échauffement total (gaz et aérosols).

FIGURE 4.33 – Taux d'échauffement résultant des différentes composantes atmosphériques

	Hiver	Printemps	Été	Automne
$\frac{dT^{mol}}{dt}_{BOA}$ (K.jour <sup>-1</sup> )	0,39	0,57	0,64	0,49
$\frac{dT^{aer}}{dt}_{BOA}$ (K.jour <sup>-1</sup> )	0,24	0,27	0,14	0,08
$\frac{dT^{total}}{dt}_{BOA}$ (K.jour <sup>-1</sup> )	0,64	0,84	0,78	0,56

TABLE 4.7 – Taux d'échauffement journalier au niveau de la surface, des différentes composantes atmosphériques, en fonction de la saison.

La Figure 4.34 représente les résultats obtenus pour le mois de mars 2006, avec l'utilisation des profils lidar, d'une part, et avec l'utilisation du modèle gaussien d'autre part. Les profils d'erreur relative du forçage et du taux d'échauffement y figurent également. À l'échelle mensuelle (relative faible variation des propriétés optiques des aérosols), les erreurs les plus importantes sont constatées pour les plus grandes différences de profils verticaux. Au niveau du sol, l'erreur sur le forçage est toujours négligeable (<1 %). Elle est plus importante au sommet de l'atmosphère et peut atteindre, dans ce cas plus de 10 %. Les plus fortes erreurs sont en revanche constatées au sein même de la couche d'aérosols. Les différences, positives ou négatives selon l'altitude, peuvent y atteindre plus de 100 %. Des écarts plus importants encore sont constatés au niveau du taux d'échauffement. Au niveau du sol, on note pour la journée dont le profil vertical d'extinction s'écarte le plus du modèle gaussien, une différence de plus de 300 %.

Les résultats de calcul de forçage radiatif avec l'utilisation du modèle gaussien sur l'ensemble de la base de données sont reportés, pour chaque saison dans le Tableau 4.8. Les erreurs commises sur le forçage sont très similaires à celles commises sur l'efficacité. Quelle que soit la saison, l'erreur au niveau de la surface est négligeable (<0,5 %). Les différences constatées au sommet de l'atmosphère sont plus importantes. Nous notons ainsi un écart (minimal) de 2 % en été, et de 5 % pendant l'hiver (écart maximal). Deux phénomènes peuvent expliquer cette dépendance saisonnière.

En premier lieu, les profils d'extinction connaissent plutôt, pendant l'hiver, une décroissance avec l'altitude. La différence avec le modèle gaussien est alors importante. À l'inverse, ce dernier est plutôt adapté pour décrire la distribution verticale des aérosols pendant l'été (nous pourrions néanmoins envisager d'augmenter le centre de la gaussienne à une altitude proche de 3 km afin de reproduire plus fidèlement les observations).

Finalement, l'albédo de diffusion,  $\varpi_0$ , dont le minimum est observé en hiver et le maximum en été, influe sur la sensibilité du forçage en fonction du profil d'extinction.

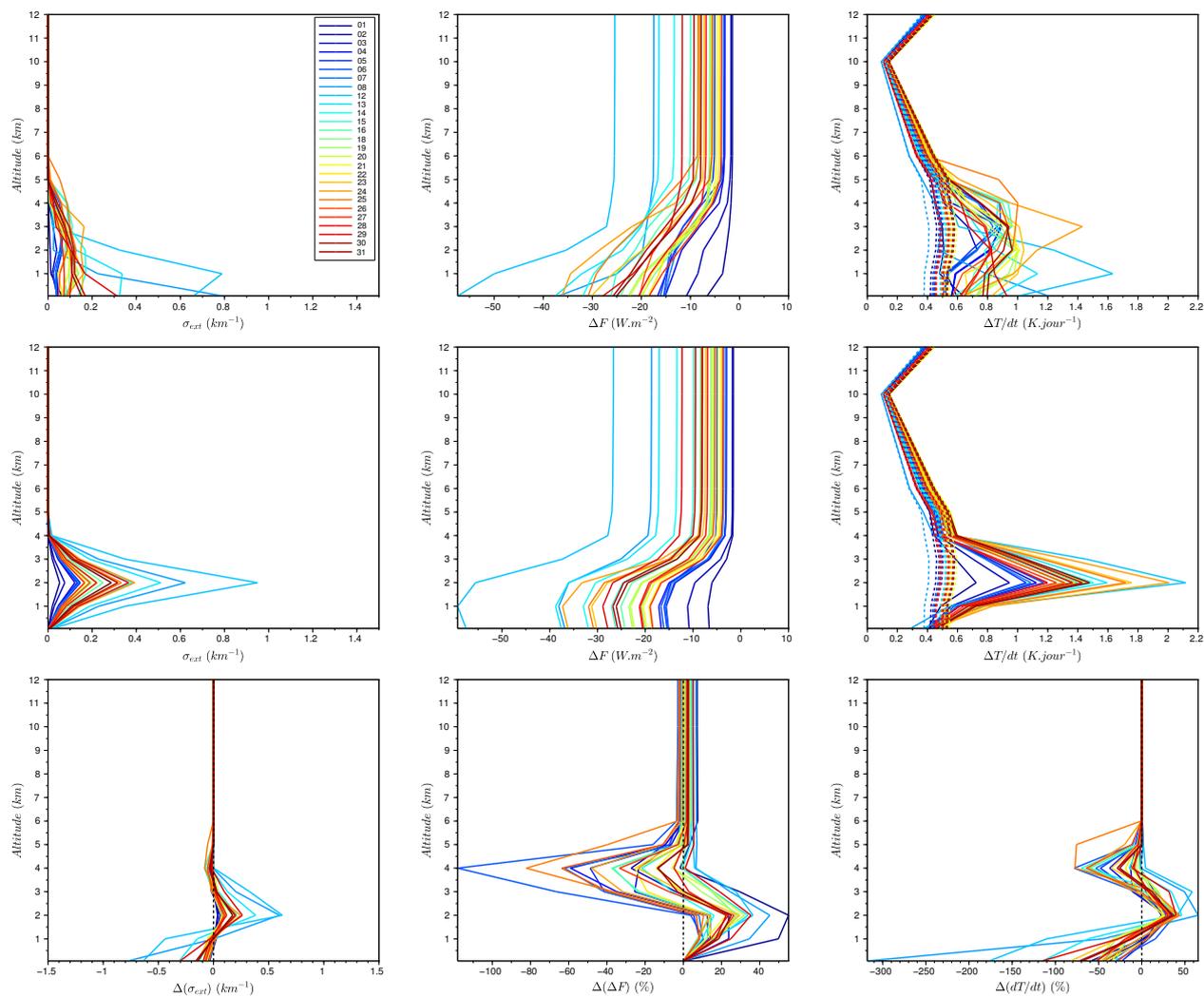


FIGURE 4.34 – Influence du profil vertical d’extinction sur l’estimation du forçage radiatif et du taux d’échauffement. En haut et de gauche à droite, les profils d’extinction journaliers (jour indiqué dans la légende) correspondant au mois de mars 2006, les profils de forçage radiatif  $\Delta F$  et de taux d’échauffement  $\Delta T/dt$  (en pointillés et en trait plein, les contributions respectives moléculaire et totale). Au milieu, identique pour des profils de distribution gaussiens, centrés en 2 km. En bas, les différences absolues entre profils d’extinction réels et profils gaussiens et différences relatives entre les profils de forçage radiatif et de taux d’échauffement associés.

L'estimation du forçage radiatif est plus sensible à la distribution verticale en présence d'aérosols absorbants, qui interagissent différemment, selon leur altitude, avec le rayonnement diffusé par les molécules (Meloni et al. (2005)).

	Hiver	Printemps	Été	Automne
$\Delta F_{BOA}$ (W.m <sup>-2</sup> )	-17,45 (+0.11 %)	-24,31 (+0.21 %)	-22,80 (+0.18 %)	-17,52 (0.00 %)
$\Delta F_{TOA}$ (W.m <sup>-2</sup> )	-5,25 (+5,00 %)	-9,25 (+3,35 %)	-11,81 (+2,00 %)	-8,40 (+2,69 %)
$\Delta F_{Atm}$ (W.m <sup>-2</sup> )	12,19 (-1,85 %)	15,06 (-1,57 %)	11,00 (-1,52 %)	9,12 (-2.36 %)
$\Delta F_{BOA}^{eff}$ (W.m <sup>-2</sup> )	-65,72 (+0.11 %)	-49,80 (+0.42 %)	-45,29 (+0.22 %)	-52,24 (+0.00 %)
$\Delta F_{TOA}^{eff}$ (W.m <sup>-2</sup> )	-18,82 (+4,56 %)	-18,31 (+3,27 %)	-24,44 (+2,35 %)	-24,82 (+2,69 %)
$\Delta F_{Atm}^{eff}$ (W.m <sup>-2</sup> )	46,90 (-1,60 %)	31,49 (-1,44 %)	20,85 (-2,20 %)	27,43 (-2,28 %)

TABLE 4.8 – Forçage radiatif et efficacité du forçage radiatif des aérosols, intégré sur la journée, en fonction de la saison : cas du modèle de distribution gaussienne. Entre parenthèses, l'écart relatif au forçage obtenu avec le profil d'extinction lidar.

## 4.7 Comparaison avec CALIOP

Lancé le 28 avril 2006, le lidar spatial CALIOP, embarqué à bord de CALIPSO (faisant partie de la constellation de satellites A-Train) délivre des informations relatives à la distribution verticale des aérosols à une échelle globale (Lenoble et al. (2013); Winker et al. (2003)). Il effectue des mesures à 1064 nm et 532 nm, longueur d'onde à laquelle la dépolarisation est également mesurée. L'observation des basses couches lui est moins favorable, du fait de la transmission atmosphérique et du bruit instrumental, important, de jour. Des comparaisons locales avec des mesures terrestres permettent une évaluation/validation ponctuelle des mesures spatiales. Nous présentons ici les principaux résultats d'une comparaison systématique des profils CALIOP et des profils issus de notre base de données.

### 4.7.1 Méthodologie

La procédure de comparaison est la suivante. Nous repérons chaque orbite dont la trace au sol est la plus proche de l'observatoire, et en extrayons les profils verticaux d'extinction à 532 nm correspondant au passage précis à proximité de l'observatoire. En moyenne, la distance avec Mbour est inférieure à 30 km et l'heure de passage est d'environ 14h00 (TU). Le niveau 2 de qualité étant utilisé, les profils sont moyennés dans un intervalle de temps correspondant à une trace au sol de 5 km.

Pour chaque passage, nous cherchons le profil inversé du lidar terrestre (avec l'épaisseur optique photométrique) le plus proche en temps.

La répétitivité de l'orbite étant de 16 jours, nous pouvons disposer, au maximum de 22 comparaisons par année, selon cette procédure. Ce nombre pourrait néanmoins être augmenté de manière significative, au risque d'être affecté par la variabilité spatiale des aérosols, en permettant des comparaisons pour des fauchées plus éloignées spatialement de l'observatoire, ou en considérant également les données de nuit.

### 4.7.2 Résultats

Nous disposons de 60 observations communes entre 2008 et 2012 correspondant à des niveaux d'épaisseurs optiques variés ( $0,40 \pm 0,25$ ) allant de 0,06 (le 28 août 2012) à 1,23 (le 21 mars 2012) à 532 nm (Figure 4.35). Toutes les saisons sont représentées et les situations correspondent donc à des observations d'aérosols de nature (et de concentration) variée.

Pour certains des profils, aucun profil CALIOP n'est représenté (09 juillet 2011). Si aucun nuage n'a été détecté par le lidar terrestre à l'heure précise de la comparaison, nous avons constaté en revanche la présence de nuages avant ou après l'heure de passage. Le lidar spatial, dont la position n'est pas rigoureusement celle du lidar terrestre et pour lequel les profils sont moyennés sur une trace de 5 km, a donc probablement détecté la présence de ces nuages. Le contrôle qualité ne permet pas dans ce cas, de disposer du profil d'extinction aérosol.

Qualitativement, les profils sont généralement très proches compte tenu du bruit instrumental du lidar spatial, de jour. Nous constatons un bon accord dans les structures de couches, et dans les valeurs d'extinction.

La différence moyenne quadratique entre les profils d'extinction est de  $\Delta\sigma_{ext} = 0,05 \pm 0,06$   $\text{km}^{-1}$ , pour tous les niveaux d'altitude confondus. Le profil vertical de cette différence (Figure 4.36) indique que les plus grands écarts sont observés au niveau du sol ( $0,08$   $\text{km}^{-1}$ ) et les plus faibles pour les plus hautes altitudes ( $0,04$   $\text{km}^{-1}$ ). Nous noterons que l'extrapolation effectuée sur les signaux (corrigés de l'altitude) du lidar terrestre, au-dessous 300 m, ne conduit pas à une augmentation significative quant aux différences entre les profils. Un seul pic supérieur à  $0,1$   $\text{km}^{-1}$  est constaté. Il correspond à la différence des profils d'extinction à 40 m d'altitude.

Si l'on tient compte des incertitudes associées aux profils de CALIOP, les profils coïncident dans près de 90 % des cas. Les plus grandes différences sont constatées en hiver et au printemps (Tableau 4.9), mais l'effet saisonnier semble peu marqué.

Pour les gros événements de poussière (exemple du 21 mars 2013), nous observons une bonne correspondance : l'extinction maximale de CALIOP est d'environ  $0,6$   $\text{km}^{-1}$  à 2,5 km d'altitude. Pour le lidar terrestre, le maximum est observé à la même altitude pour  $\sigma_{ext} \approx 0,7$   $\text{km}^{-1}$ .

Une mauvaise correspondance est en revanche notée pour la comparaison correspondant à la plus faible épaisseur optique (28 août 2012). L'analyse des profils de rétrodiffusion du lidar terrestre indique, cependant, la présence de nuages bas vers 15h00. Le

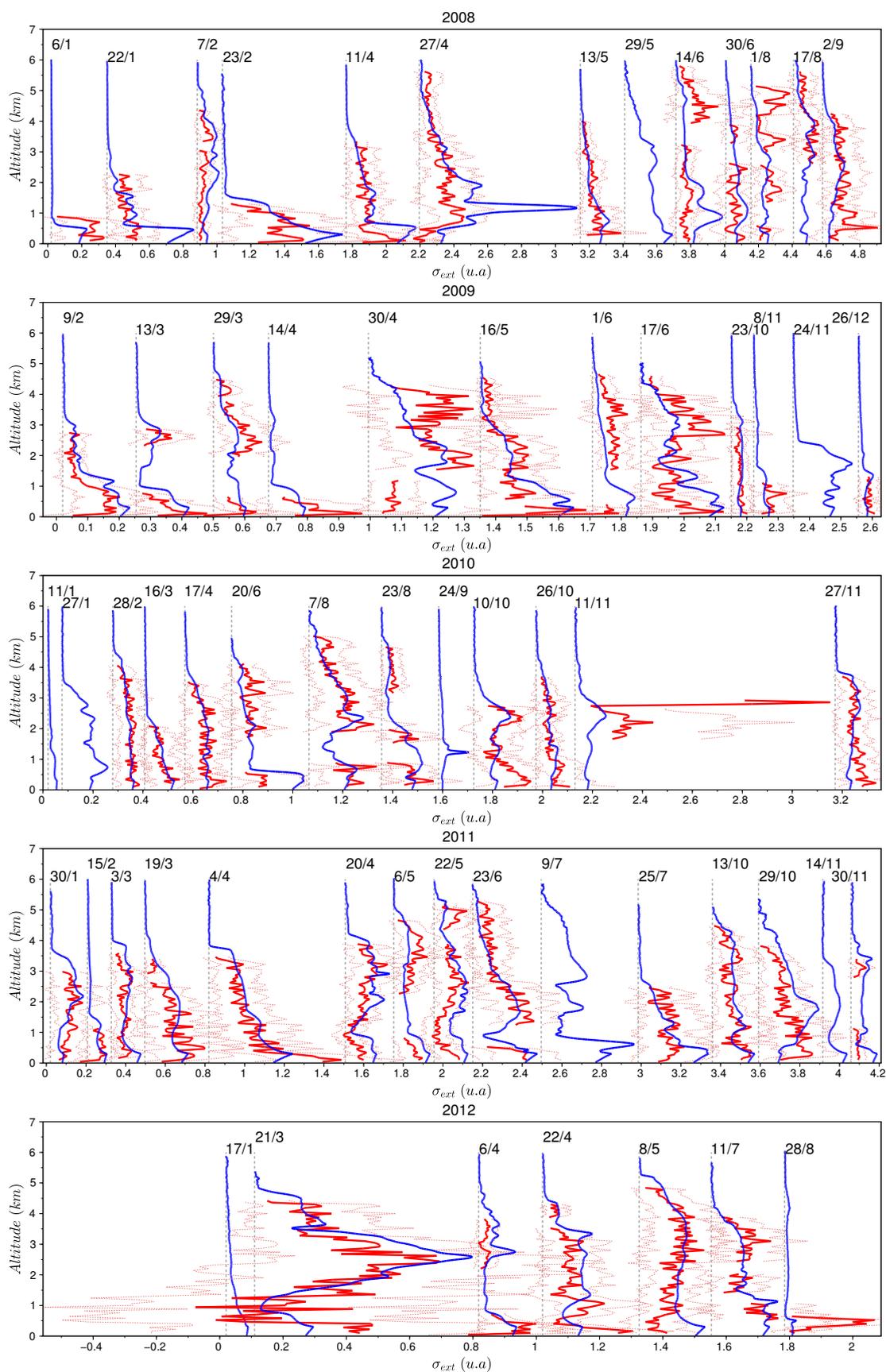


FIGURE 4.35 – Profils d’extinction du lidar terrestre (en bleu) et spatial (en rouge, les incertitudes sont représentées en pointillés). Les barres grises verticales correspondent à  $\sigma_{ext}=0$ , pour chaque profil (dont la date est indiquée au dessus : jour/mois). À partir de cette origine, l’échelle horizontale correspond à des  $\text{km}^{-1}$ .

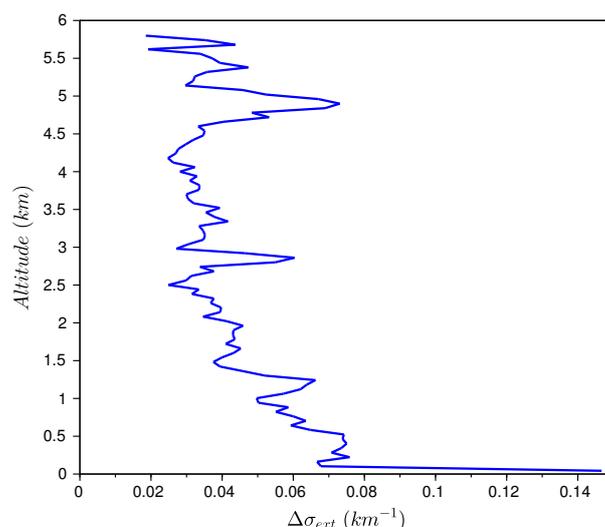


FIGURE 4.36 – Profil vertical moyen (sur 60 comparaisons) des différences d’extinction :  $\Delta\sigma_{ext}(z) = \sqrt{[\sigma_{ext,sol}(z) - \sigma_{ext,CALIOP}(z)]^2}$ .

26 décembre 2012 est également associé à une faible épaisseur optique ( $\tau = 0,075$ ). La comparaison des profils, pour cette journée est très favorable puisque les profils moyens sont superposables, pour les altitudes disponibles avec CALIOP.

Les plus grandes différences sont souvent observées au niveau du sol. Celles-ci ne semblent pas constituer un biais puisqu’elles peuvent être positives (04 avril 2011,  $\Delta\sigma_{ext} \approx 0,20 \text{ km}^{-1}$ ) ou négatives (25 juillet 2011,  $\Delta\sigma_{ext} \approx -0,20 \text{ km}^{-1}$ ). Pour la journée du 25 juillet 2011, la différence est due au profil de rapport lidar utilisé par CALIOP : au-dessous 1 km d’altitude, le rapport lidar  $S_{aCALIOP}$  est de 20 sr (aérosols marins). Il est de 55 sr pour les altitudes supérieures. Puisque nous utilisons un rapport constant verticalement, la non prise en compte de ce profil conduit à une sur-estimation relative d’un facteur 2 des valeurs d’extinction au-dessous de 1 km.

Ne disposant pas de voie Raman, ni de mesure d’épaisseur optique, l’inversion des données de CALIOP est différente de celle effectuée pour les mesures de notre lidar terrestre. Selon la localisation, l’altitude des couches, le taux de dépolarisation et le rapport des couleurs (532 nm et 1064 nm), les aérosols sont classés par catégories (Liu et al. (2005)). Pour chacune d’elles, un rapport lidar est associé et utilisé pour l’inversion des données. Cela explique la forme discrète de la distribution, représentée sur la Figure 4.37, dominée par une valeur de 40 sr relative aux poussières désertiques (voir Tableau 2.2 page 66).

Au-delà de cette comparaison, la combinaison des mesures simultanées CALIOP/sol peut être réalisée grâce à la méthode à deux flux (Cuesta et Flamant (2010)), permettant de combiner les profils de rétrodiffusion spatiaux et terrestres. L’application de cette mé-

	Hiver	Printemps	Été	Automne
$\Delta\sigma_{ext}$ (km <sup>-1</sup> )	0,05	0,05	0,05	0,04
Recouvrement (%)	85,6	84,1	91,4	90,4
$S_{a_{CALIOP}}$ (sr)	43±5	40±4	41±7	44±6
$S_{a_{sol}}$ (sr)	25±12	25±13	26±18	39±23
$N_{obs}$	12	21	14	13

TABLE 4.9 – Comparaison des inversions CALIOP et du lidar sol.  $\Delta\sigma_{ext}$  représente la différence quadratique entre les profils d’extinction. Le recouvrement représente la fréquence de valeurs d’extinction (sur tout le profil) pour lesquelles  $\sigma_{ext,CALIOP}(z) + I(z) \leq \sigma_{ext,sol}(z) \leq \sigma_{ext,CALIOP}(z) + I(z)$  où  $I(z)$  est l’incertitude délivrée par CALIOP. Les valeurs moyennes de rapport lidar (et écart-type) sont reportées pour CALIOP et pour le lidar terrestre, ainsi que le nombre d’observations  $N_{obs}$  correspondant à chaque saison.

thode pourrait-être envisagée pour ce site d’observation, d’après le très bon accord général observé, d’après nos résultats, au niveau des profils d’extinction. De plus, cette méthode ne nécessitant pas de donnée photométrique, pourrait-être réalisée de nuit, situation qui permettrait d’améliorer le rapport signal sur bruit des instruments et particulièrement celui du lidar spatial.

Les observations terrestres permettent de valider, localement et ponctuellement, les observations spatiales, qui offrent l’avantage d’assurer une couverture spatiale globale. Ces observations (terrestres) peuvent, d’autre part, servir pour une évaluation/validation des estimations prédites par des modèles atmosphériques. Peu de données associant lidar et photomètre sont disponibles, en continu et sur le une longue période, pour des sites tels que Mbour, situés près des sources intenses de poussières telles que le Sahara. Notre base de données constitue ainsi également un moyen intéressant d’évaluation des modèles, spécifiques aux poussières désertiques, et cela pour différentes échelles temporelles et sur 7 années (à l’heure actuelle).

## 4.8 Évaluation du modèle NMMB/BSC-Dust

Certains modèles d’émission et de transport permettent de prédire les concentrations en particules à une échelle globale lorsque d’autres sont plus adaptés pour une échelle régionale. Le modèle NMMB/BSC-Dust, développé au Barcelona Supercomputing Center (BSC) et spécifique, comme son nom l’indique, aux poussières désertiques, est un modèle multi-échelle (Pérez et al. (2011)). Il permet des prévisions météorologiques, d’une part, mais aussi celles de la concentration en aérosols (désertiques dans notre cas). La connaissance de la concentration en poussières permet ensuite, via un modèle d’en calculer les propriétés optiques, comme l’extinction à plusieurs niveaux et par intégration l’AOD ou

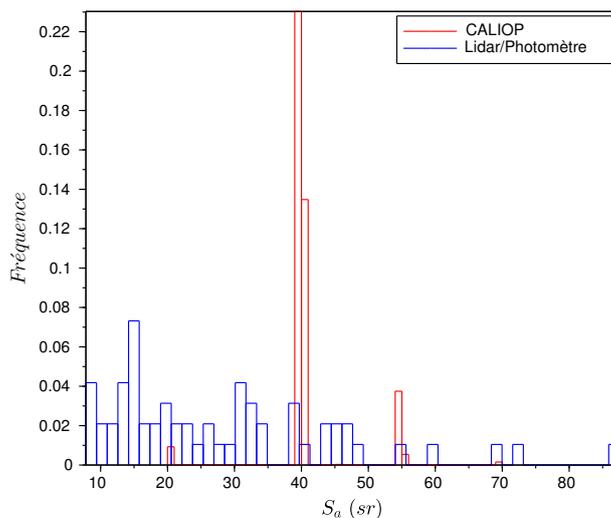


FIGURE 4.37 – Rapports lidar  $S_a$ , pour le lidar spatial (en rouge) et le lidar terrestre (en bleu).

DOD (Dust Optical Depth). C'est d'abord les niveaux d'épaisseur optique que le modèle cherche à valider. Dans notre travail, nous cherchons aussi à évaluer la distribution verticale des aérosols. Ce sont les profils verticaux d'extinction (en plus des concentrations au niveau du sol) issus de ce modèle, que nous nous proposons ici d'évaluer à l'aide de notre base de données.

#### 4.8.1 Brève présentation du modèle et méthodologie

Plusieurs processus physiques doivent être pris en compte afin de pouvoir représenter, le plus fidèlement possible, l'évolution de la concentration en particules.

- La mise en suspension des poussières, dépendant du vent, avec prise en compte de la saltation.
- La distribution en taille des poussières, dépendant initialement de l'origine des sources. Celle-ci est décrite à chaque altitude sur 8 bins, dont 4 sont consacrés à la description des particules submicroniques.
- L'humidité du sol qui affecte la production de poussières.
- L'advection horizontale et verticale des masses d'air.
- La diffusion horizontale et le transport vertical par convection et turbulence.
- Le dépôt sec et humide.

La simulation de ces différents processus fait l'objet d'une description détaillée par Pérez et al. (2011).

Le modèle permettant une simulation à multi-échelle, la comparaison peut se faire précisément au niveau du site d'observation de Mbour, l'un des rares sites Africains disposant d'autant d'observations conjointes lidar/photomètre. Les profils de concentration sont simulés sur 10 niveaux de pression et toutes les 4 heures. L'épaisseur optique est également calculée par le modèle. Cette dernière ne correspond cependant pas à l'épaisseur optique totale  $\tau$  (AOD : Aerosol Optical Depth), mais à DOD (Dust Optical Depth) puisque les seuls aérosols simulés sont, dans cette version de modèle, les poussières désertiques.

Pour chacun des profils d'extinction calculés à partir du lidar et du photomètre, nous recherchons le plus profil modélisé le plus proche temporellement. De plus, afin de limiter une contribution de la part d'autres types d'aérosols (aérosols de combustion), nous nous limitons aux cas où le coefficient d'Angström  $\alpha$  indique la présence de particules de grande dimension ( $\alpha \leq 0, 2$ ).

## 4.8.2 Résultats

Les moyennes mensuelles des profils verticaux d'extinction sont présentées sur la Figure 4.38, pour l'année 2007.

De décembre à mars, nous constatons une excellente correspondance entre le modèle et les mesures. La structure verticale des couches est bien représentée : les plus fortes valeurs d'extinction sont observées dans les basses couches. En particulier, le maximum d'extinction à environ 800 m d'altitude au mois de mars est bien reproduit par le modèle, bien qu'étant sous-estimé d'environ 40 %.

À partir du mois d'avril, nous notons une sous-estimation générale de la part du modèle. Au-dessous de 1 km d'altitude, les extinctions modélisées sont généralement inférieures à  $0,05 \text{ km}^{-1}$ , lorsque celles du lidar sont de l'ordre de  $0,20 \text{ km}^{-1}$ . Cette différence, au niveau du sol, est probablement la signature des sels marins, non simulés par le modèle et dont la présence est suggérée par les rétro-trajectoires. En altitude, en revanche, les particules concernées sont des poussières désertiques. L'écart relatif peut être expliqué par la différence dans les régions émettrices. En hiver, si les poussières minérales observées aux faibles altitudes proviennent du Nord-Est, celles transportées en altitude, lors de la saison humide, ont une origine plus orientale, comme l'indiquent les rétro-trajectoires reportées sur la Figure 4.39. Il est par ailleurs reconnu que l'émission de poussières à la frontière du Mali et de la Mauritanie est globalement sous-estimée (Pérez et al. (2011)). La sous-estimation de l'extinction, ici constatée, est donc probablement due à cette « mauvaise » prise en compte de ces régions sources.

Nous présentons sur la Figure 4.40 les séries temporelles d'épaisseur optique, mesurée d'une part par AERONET et estimée, d'autre part, par le modèle, ainsi que les concentrations au niveau du sol (TEOM, estimation lidar/photomètre et modèle). Les moyennes saisonnières sont reportées dans le Tableau 4.10.

En hiver, le modèle surestime de 50 % la concentration au niveau du sol mesurée par

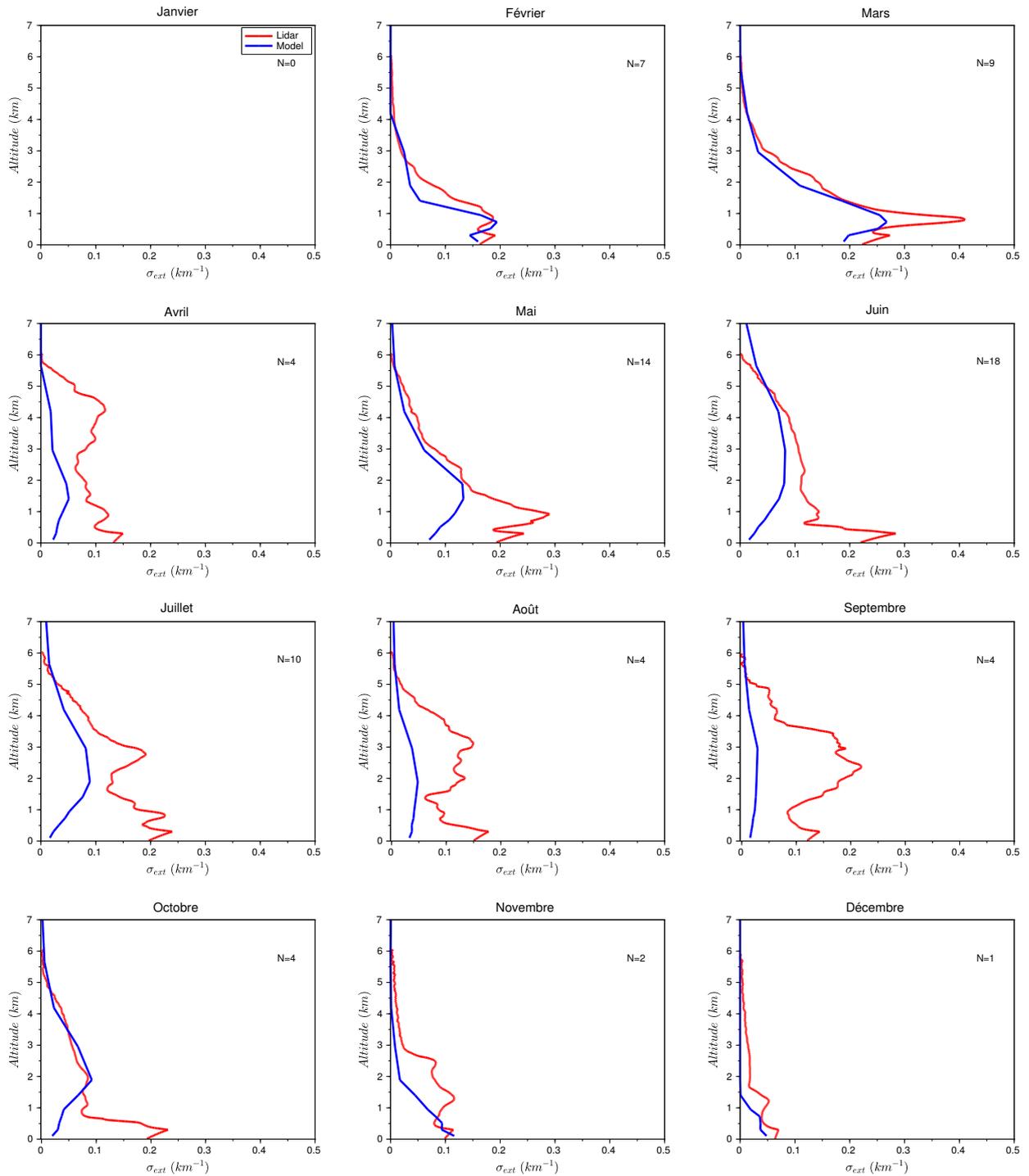


FIGURE 4.38 – Profils mensuels d’extinction issus de la synergie lidar/photomètre (en rouge) et estimés à partir du modèle NMMB/BSC-Dust (en bleu), pour l’année 2007. Le nombre  $N$  correspond aux nombres de journées moyennées chaque mois.

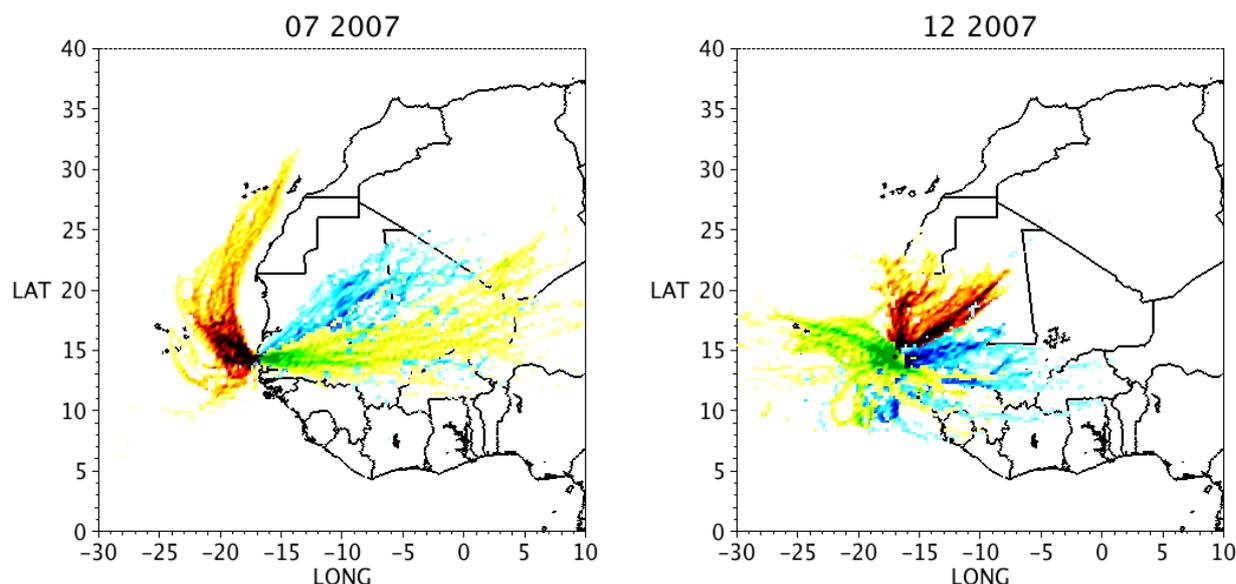


FIGURE 4.39 – Rétrotrajectoires d’une durée de 72h00 pour les mois de juillet et décembre 2007. En rouge, bleu et vert les masses d’air respectivement au niveau du sol, à 3000 m et 5000m.

le TEOM. L’épaisseur optique (DOD) associée est alors équivalente à l’épaisseur optique totale mesurée par AERONET (0,39) bien que la présence de particules de combustion soit maximale lors de cette saison.

Pour les autres saisons, nous constatons une sous-estimation aux niveaux de la concentration et de l’épaisseur optique d’un facteur 2, même en été, lorsque la plupart des observations correspondent (excepté au niveau du sol) au transport de particules désertiques.

À plus fine échelle temporelle, les épisodes ponctuels de poussières sont bien reproduits, comme l’évènement de mai (jours juliens 130-133) pour lequel les évolutions rapides et intenses d’épaisseur optique et de concentration sont bien reproduites.

De futures évaluations du modèle sont envisagées/en cours avec notamment la prise en compte d’un module d’émission de sels marins qui pourrait permettre de valider l’hypothèse expliquant les importantes différences d’extinction au-dessous de 1 km d’altitude d’avril à octobre. L’importante base de données dont nous disposons pourra, finalement, servir à valider/alimenter les prévisions fournies dans le cadre de MACC-II (Monitoring Atmospheric Composition & Climate). L’assimilation des données par les modèles permet, en précisant les conditions limites, d’affiner les estimations.

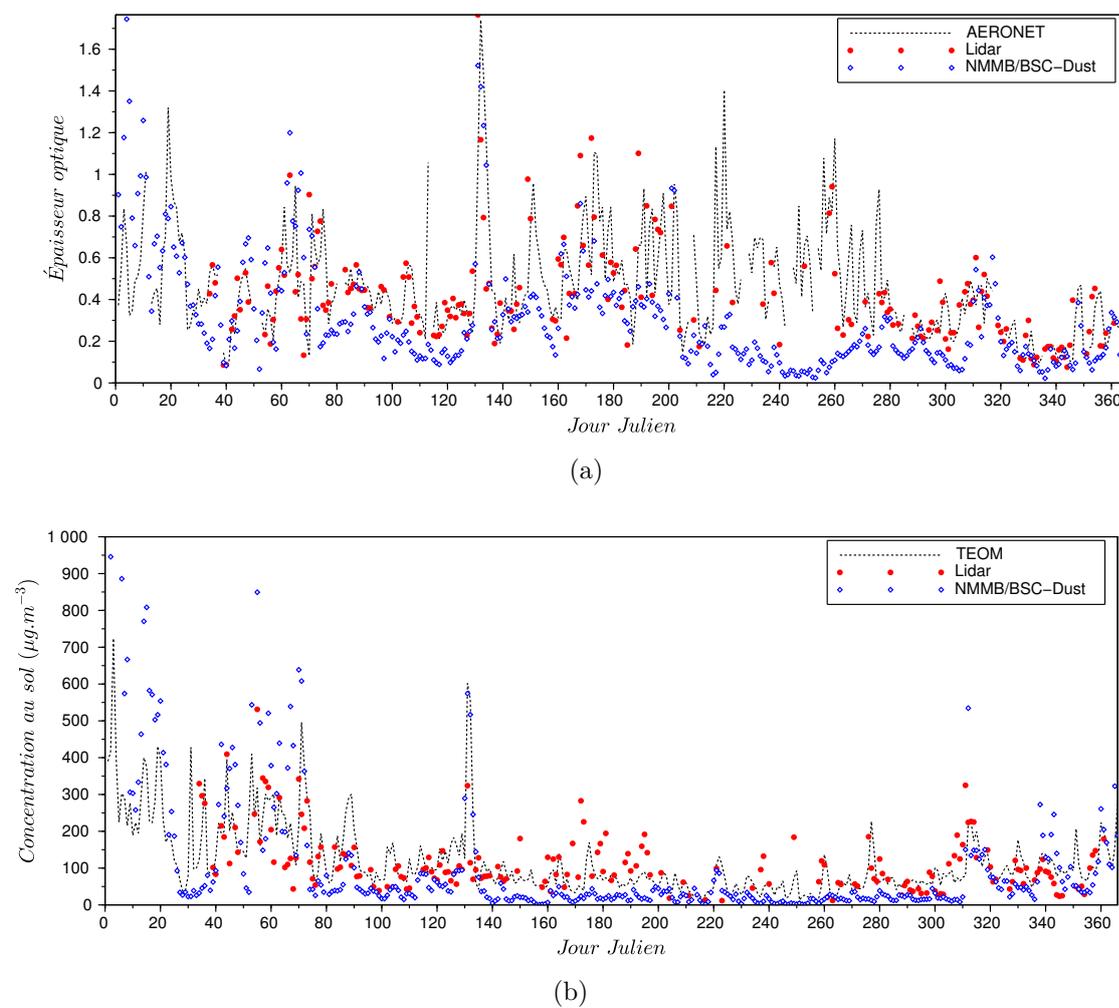


FIGURE 4.40 – Séries temporelles des moyennes journalières d'épaisseur optique (a) et de concentration massique au niveau du sol (b) pour l'année 2007.

	Hiver	Printemps	Été	Automne
$AOD_{AERONET}$	0,39±0,24	0,49±0,27	0,56±0,24	0,41±0,22
$DOD_{NMMB/BSC-Dust}$	0,39±0,33	0,36±0,30	0,30±0,19	0,17±0,11
$PM_{10,TEOM}$ ( $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ )	190±120	145±100	60±30	75±75
$[dust]_{NMMB/BSC-Dust}$ ( $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ )	290±325	110±150	20±15	40±65

TABLE 4.10 – Moyennes saisonnières (et écarts-types) d'épaisseur optique AERONET (Aerosol Optical Depth) et du modèle NMMB/BSC-Dust (Dust Optical Depth) et de concentration massique au niveau du sol mesurée par le TEOM et estimée par le modèle (données relatives à l'année 2007).

### 4.8.3 Conclusion

L'oscillation annuelle de l'ICTZ est responsable des deux périodes très contrastées que connaît Mbour : la saison sèche ( $\sim$  l'hiver) et la saison humide ( $\sim$  l'été). L'origine moyenne des masses d'air associées à ces deux saisons est bien différente. Lors de la saison sèche, les masses d'air au niveau du sol proviennent du Nord-Est (sources désertiques). De mars à octobre, l'orientation privilégiée du vent au niveau du sol est la direction Ouest/Est, ce qui implique pour les masses d'air relatives, une origine plutôt marine. En altitude, l'influence des sources désertiques apparaît en mars à 3 km d'altitude et en juin à 5 km d'altitude, où la contribution de poussières désertiques suggérée est donc maximale.

Les mesures photométriques ont débuté, de manière continue sur ce site, en 2003. À ces données intégrées sur la colonne, se sont ajoutées, à partir de 2006, les mesures de distribution verticale provenant d'un micro-lidar.

L'analyse de ces données montre une relative stabilité des propriétés optiques et micro-physiques des aérosols depuis 2006 (soit 6-7 ans). Seule une légère variation d'indice de réfraction a ainsi été constatée (pendant l'automne), probablement due à une modification de l'origine des masses d'air, en altitude.

À l'échelle saisonnière, les tendances sont en revanche beaucoup plus marquées. La saison humide est caractérisée par une forte charge en particules ( $\tau=0,56$ ) de grande dimension ( $\alpha=0,23$ ). À l'inverse, la saison sèche correspond à de plus faibles valeurs d'épaisseur optique ( $\tau=0,32$ ) associées à de plus fines particules ( $\alpha=0,49$ ), dont la distribution en taille est cependant toujours dominée par le mode grossier. Ces particules sont plutôt absorbantes ( $\varpi_0=0,86$ ), le site étant alors sous l'influence de nombreux feux de biomasse (agriculture) au Sud-Est. Par ailleurs, une contribution locale (aérosols carbonés) est également présente.

Cette composante locale explique probablement une partie des tendances journalières détectées (aérosols plus fins et plus absorbants en milieu de journée) à laquelle vient s'ajouter des effets d'humidité et de dynamique (vitesses de vent) qui, en favorisant le phénomène de dispersion, entraîne une diminution de l'épaisseur optique.

L'influence anthropique à l'échelle hebdomadaire a également pu être mise en évidence sur ce site, pourtant affecté en grande partie par des aérosols naturels. Un cycle d'amplitude de 7 % a ainsi été constaté au niveau de l'épaisseur optique, associé à une augmentation de la concentration en particules au cours de la semaine.

La distribution verticale des aérosols est complexe. Celle-ci est également variable en fonction de la saison. En hiver, l'extinction est généralement décroissante de façon monotone avec l'altitude, en accord avec le transport des poussières à basse altitude, lors de cette saison. En été, nous avons pu constater, au delà de la variabilité inter-annuelle, le transport des aérosols désertiques dans une couche située au-dessus la couche limite, atteignant 5 km d'altitude (Saharan Air Layer). Ce transport est responsable de la variation saisonnière du sommet de la couche d'aérosols *TL*, peu affecté par les faibles différences de température. Le sommet de la couche limite *BL* est d'ailleurs minimal en été, probablement à cause du lessivage alors plus important.

L'estimation de la concentration à partir du couplage lidar/photomètre implique un changement saisonnier supplémentaire des propriétés micro-physiques des aérosols au niveau du sol, afin d'être en accord aux mesures in situ du TEOM. L'utilisation d'une masse volumique dépendant de l'origine des masses d'air au niveau du sol (mer ou terre) permet de simuler une contribution plus ou moins importante des sels marins. Avec cette paramétrisation, la concentration au niveau du sol (calculable pour tout le profil d'extinction) est restituée, dans près de 70 % des cas, à moins de  $50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  de celle mesurée par le TEOM. Notre calcul de concentration reproduit bien les cycles saisonniers et semble quantitativement acceptable au regard des concentrations massiques importantes mesurées lors de la saison sèche. Pendant cette dernière, de nombreux événements associés à des niveaux de concentration journalière supérieure à  $200 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  ont ainsi été détectés (220 journées sur 5 années de mesures).

Le calcul de forçage radiatif a été effectué sur l'ensemble de la base de données. En été, les forçages respectifs au sommet et à la base de l'atmosphère sont de  $-11,58 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$  et  $-22,76 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ . En hiver, ils sont inférieurs :  $-8,95 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$  et  $-17,43 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ , mais sont associés à une efficacité plus importante, due à la plus grande absorption des aérosols. Une étude de l'influence du profil de répartition verticale des aérosols a montré des écarts négligeables au niveau de la surface, mais pouvant atteindre près de 10 % au sommet de la surface, dans certains cas. Sur l'ensemble de la base de données, une erreur de 5 % est commise, en hiver, au sommet de l'atmosphère, lorsqu'un modèle de distribution gaussien est utilisé pour décrire la distribution verticale des particules.

Une comparaison systématique avec les profils du lidar spatial CALIOP a été réalisée. Celle-ci montre un très bon accord général, dans des situations très diverses, puisque près de 90 % des profils d'extinction coïncident, compte tenu des incertitudes des profils

de CALIOP. Quelques différences ont pu être expliquées par les différences dans les méthodes d'inversion, notamment l'utilisation, dans notre cas, d'un rapport lidar constant verticalement.

Notre base de données Africaine a également été utilisée pour un premier exercice de validation du modèle NMMB/BSC-Dust. Si un bon accord a été démontré pendant la saison sèche, une sous-estimation du modèle est constatée le reste du temps. En altitude, les écarts proviennent probablement d'une sous-estimation des sources de poussières à la frontière du Mali et de la Mauritanie. Au niveau du sol, la différence d'extinction est probablement la signature des aérosols marins, non pris en compte par la version du modèle utilisée. Ce travail est en cours d'approfondissement, en collaboration, et fera l'objet d'un article.



La combinaison des données lidar/photomètre permet une bonne caractérisation des propriétés optiques et micro-physiques des aérosols (chapitres 3 et 4). L'observation continue, conduite par le LOA permet une étude sur le long-terme, mais aussi pour de fines échelles temporelles, permettant de caractériser des évènements aérosols ponctuels. La déclinaison mobile (terrestre) de ce système d'observation permet d'étudier la variabilité des aérosols à très haute résolution spatiale. Le déploiement (rapide) d'un tel système peut être envisagé, d'une part pour caractériser des évènements distants des observatoires opérationnels, mais également pour évaluer des mesures satellites sur de fines échelles spatiales, ou encore les estimations de modèles de transport d'aérosols aux échelles méso-gamma (2-20 km<sup>2</sup>) ou méso-beta (20-200 km<sup>2</sup>). Nous présentons, dans ce chapitre, une validation des mesures ainsi que les premiers résultats du système mobile lidar/photomètre, embarqué à bord d'une voiture, lors de la campagne DRAGON (USA, 2011) (Mortier et al. (2012)).

## Préambule

En 2011, le LOA a commencé la mise au point d'un système d'observation terrestre mobile composé d'un micro-lidar et du photomètre mobile PLASMA (Karol et al. (2013)). L'objectif est d'étudier la variabilité spatiale des aérosols, en premier lieu, dans la région Lilloise, à très haute résolution et de manière précise, de part la combinaison des données complémentaires des deux instruments. Ce dispositif a été déployé, à plusieurs reprises, au cours de différentes campagnes (incluant parfois des mesures in situ au sol en collaboration avec le LPCA et le LASIR au travers de CaPPA), notamment dans des transects Lille-Dunkerque (Figure 4.41). La forte industrialisation de cette dernière ville motive, en effet, la caractérisation de la pollution atmosphérique locale.

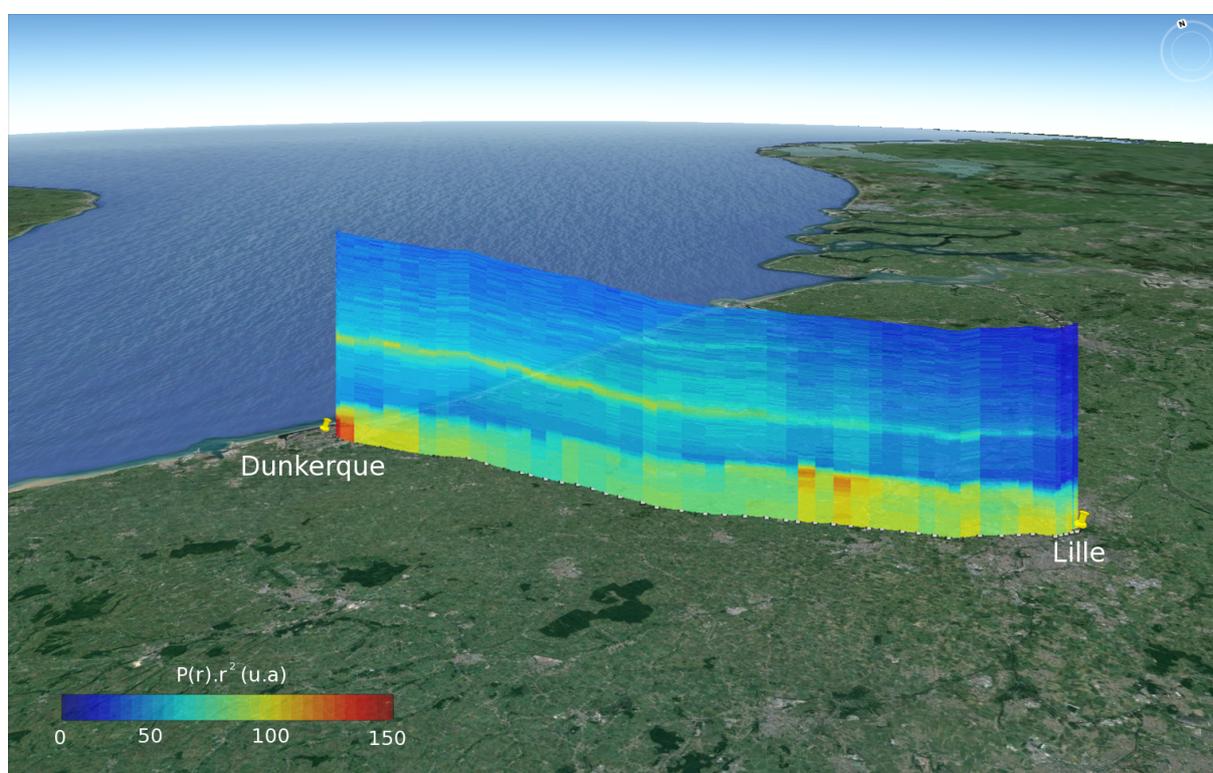


FIGURE 4.41 – Transect Lille-Dunkerque du 07 septembre 2012. Le maximum de rétrodiffusion, associé à l'émission locale de particules, est détecté autour de Dunkerque. Nous observons également une couche d'aérosols au-dessus de la couche limite, à 2 km d'altitude.

Ce système mobile a été déployé au cours de la campagne de mesures, de grande ampleur, DRAGON, qui s'est déroulée dans la région de Washington DC durant l'été

2011. La suite de ce court chapitre est consacrée aux premiers résultats de cette campagne. La richesse et la densité du dispositif expérimental, sur la zone urbaine d'étude, nous a permis de valider notre système au travers des comparaisons avec plusieurs photomètres (AERONET) et plusieurs lidars fixes (et aéroportés) en différents points des trajets effectués.

## Chapitre 5

# Aerosol spatial distribution during DRAGON experiment as seen by a mobile ground-based lidar-sunphotometer system - preliminary results

### Abstract

The DRAGON (Distributed Regional Aerosol Gridded Observation Networks)-USA experiment was held during summer 2011 in the Baltimore/Washington region (Holben et al.) and operated in conjunction with NASA's DISCOVER-AQ campaign (<http://discover-aq.larc.nasa.gov> (2013)). A network of 40 AERONET sun-photometers was deployed during field activities that included overflights by two different research aircraft during the month of July. In this context, a ground-based mobile LIDAR-sunphotometer developed by LOA and operated jointly with GSFC performed several transects through Baltimore/Washington DC area. The paper presents preliminary results of aerosol spatial and temporal variability as retrieved from a mobile ground-based LIDAR-sunphotometer observations.

### 5.1 Introduction

Since a couple of decades, ground-based observations from sun/sky photometers dedicated to aerosol characterization have played an important role in developing, improving and validating satellite algorithms as well as improving our knowledge on aerosol properties and variability. At present, such observations are delivering quite relevant aerosol

parameters and are widely used, especially through the AERONET federation. Current and future research activities involve a combination of such passive instruments/networks as well as active instruments (LIDAR) and in situ measurements. Up to now, satellite validation using AERONET have relied on point observations extrapolated to a two dimensional domain to compare to the satellite retrieval. DISCOVER-AQ/DRAGON-USA provides a data set to better address satellite validation and in situ surface comparisons. The main DRAGON objectives are described in the DRAGON white paper (Holben et al.). This experiment has been designed during Summer 2011 to establish a mesoscale gridded network of sun photometers (Figure 5.1) that encompasses rural and urban landscapes over the Washington-DC/Baltimore metropolitan area.

Simultaneously, several mobile systems were deployed, most of them NASA aircrafts involving both in situ (gaseous and particulate pollution) and remote sensing measurements. Ground-based LIDARs (2) included in the MPLNET network (Welton et al. (2001)) and additional MPLs at other locations coordinated by UMBC. Additionally, and this is our contribution to DRAGON, a mobile ground-based system composed of a french micro-LIDAR (CIMEL) and suntracking photometer designed by LOA was also set up in a car and operated during July experiment. In section 5.2 we present the instruments and obtained dataset. Results are shown in section 5.3.

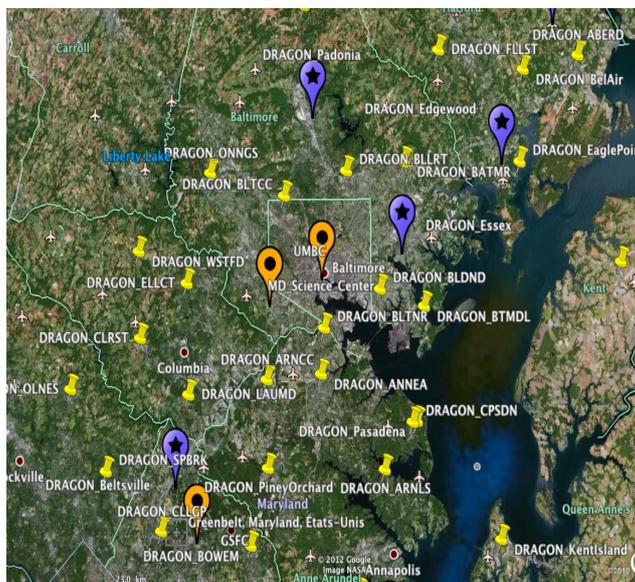


FIGURE 5.1 – DRAGON Network deployed in the metropolitan area of Washington (about 50 km x 100 km). Yellow pins represent AERONET sites whereas other symbols are DRAGON sites.

## 5.2 Instrument and data

### 5.2.1 Micro-Lidar

Since 2006, LOA sets up and operates a sun-photometer/LIDAR system conducting continuous (24 hours a day, 7 days a week) observations at Lille and Dakar AERONET sites. The data are archived in LOA database and are processed routinely to derive aerosol extinction profile,  $\sigma_{ext}$ , and extinction-to-backscatter ratio,  $S_a$  (<http://www-loa.univ-lille1.fr/Instruments/LIDAR/>). The LIDAR is the Cloud and Aerosol Micro-LIDAR (CAML) CE 370-2 is developed by the Cimel company (Pelon et al. (2008); Léon et al. (2009)). This eye-safe micro-pulse LIDAR system operates at 532 nm with power ranging from 50 to 100 mW. Its principle is similar to the one of the micro-pulse LIDAR system (Welton et al. (2001)), with however, some differences, such as the telescope can be placed outside of the building containing the acquisition system. The link from the rack to the telescope is ensured by a 10 m optical fiber and the same telescope is used for both emission and reception avoiding the alignment problem. During DRAGON experiment, this system was setup jointly by LOA and GSFC in a car with air-conditioning system to limit the range of temperature variation. To enable better aerosol retrievals by constraining LIDAR inversion with coincident AOD, a mobile sunphotometer (PLASMA) was set up on the roof of the same car.

### 5.2.2 Mobile sun-photometer

The airborne sun tracking photometer PLASMA (Photomètre Léger Aéroporté pour la Surveillance des Masses d'Air) has been initially developed in LOA in order to provide vertical profiles of atmospheric aerosol and validate AOD and extinction coefficient vertical profiles provided by LIDAR and satellites (CALIPSO, MODIS). When based on board of an aircraft PLASMA measures AOD during flight and therefore provides spectral AOD (0.34–2.25  $\mu\text{m}$ ) as a function of the altitude. Since the instrument covers a large spectral range, it also allows derivation of aerosol size distribution at different altitudes. The head of the instrument contains two parallel optical channels. One for 0.343–1.23  $\mu\text{m}$  range and the second for 1.14  $\mu\text{m}$ – 2.25  $\mu\text{m}$ , both with a field of view of 1.5 degrees; and a four-quadrant detector for tracking the sun with a FOV of 6 degrees. The head can move in elevation (0–90°) and azimuth (0–360°), and rotation in azimuth can be continuous thanks to a ring power connector. One can either use a GPS (on the ground) or a navigation system (on the plane) to locate the sun within the sky then it follows the sun by using a four-quadrant detector. This system was setup on the roof of a standard car during the DRAGON campaign. PLASMA instrument has been declared as a mobile sunphotometer into the AERONET database (#650) and was calibrated (Langley method) at Izana Observatory (2400 m absl) following AERONET master protocol by PHOTONS/AERONET group.

## 5.3 Results and analysis

### 5.3.1 Overview of aerosol optical properties

Washington DC metropolitan area has been selected during summer since, climatologically, it has the greatest loading in July and August (AOD at 500 nm close to 0.45 and Angström exponent (between 440-870 nm) around 1.74) and therefore AERONET retrievals will be sufficiently sensitive to aerosol properties. Thus we participated and deployed the mobile LIDAR- sunphotometer from 30/06 to 22/07. During these weeks, AOD (at 532 nm) varied from 0.08 to 0.65. The mobile system performed about 4300 km (about 80 hours of observation), mainly repeating the Hyattsville- Fair Hill or Hyattsville- Edgewood transects (back and forth). In this short paper, we concentrated our analysis on 20/07/2011 since the days revealed a high level AOD and a strong spatial variability within the area. The following day (21/07) was rather considered for the purpose of LIDAR cross-calibration exercise.

### 5.3.2 Analysis of 20/07 and 21/07 data

All data from PLASMA have been processed to deliver AOD (Figure 5.2), Angström exponent as well as the precipitable water content (Figure 5.3).

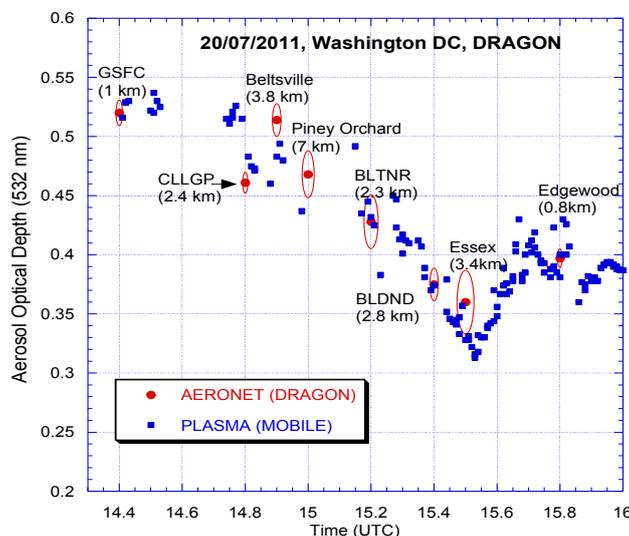


FIGURE 5.2 – AOD (532 nm) variability as measured by the mobile sun-photometer PLASMA and AERONET- DRAGON stations operated in the afternoon of 20/07/2011. Red error bars give standard deviation +/- 30 min.

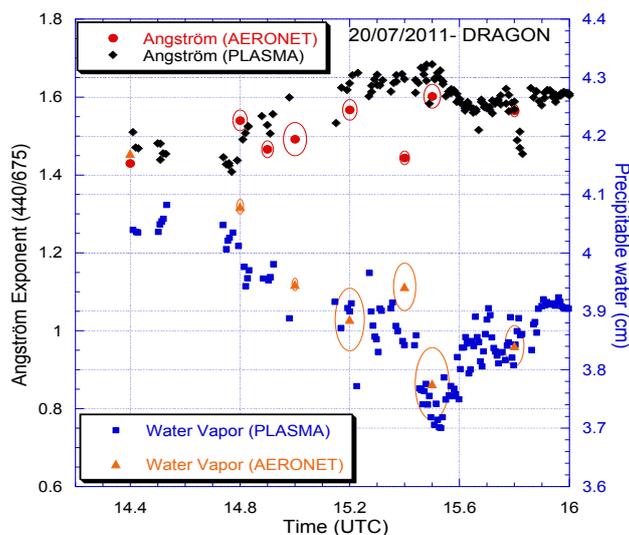


FIGURE 5.3 – Angström exponent (440/670) and water vapor content variability as measured by the mobile sun-photometer PLASMA and AERONET-DRAGON stations operated in the afternoon of 20/07/2011.

For that purpose, data were submitted to the AERONET processing system (as it is done for fix or mobile Microtops (MAN)), now enabling such processing for a mobile sun-photometer. According to these parameters, one can see a strong spatial-variability. PLASMA measured a maximum AOD at around 14.4 h (UTC) very close to GSFC station (0.54) and, later, at about 15.4 h, near the Essex station, a minimum AOD of 0.31 was measured. More to the North, in the direction of the Edgewood, AOD level increased to 0.42. During the time of the experiment, each DRAGON stations never showed individual AOD time-variation larger than 0.04 over 1 hour. Water vapor follows the same trends as AOD whereas Angström exponent shows opposite trends. Figure 5.2 and 5.3 also demonstrated quality/reliability of PLASMA data and retrievals since comparisons with AERONET closest site (both in space and time) are quite consistent. Hence, in our analysis, PLASMA AOD has been used to constrain coincident LIDAR data shown on Fig 5.4.

In general, all along this transect we have aerosol particles distributed up to 3,5-4 km height maximum. Maximum particle concentration occurred near the ground, within the first kilometer, however, we also clearly observed, locally, some secondary maximum between 1,5 and 2,5 km, as for example over Baltimore city (point B in Figure 5.4). AOD measured over Baltimore city (0.4) is below than that of GSFC (G, 0.54) measured at the beginning of this transect and this contrast can be explained by a smaller particle concentration value within the first kilometer as shown by LIDAR in Figure 5.4 over Baltimore. Around 20-30 min later, one reached point M, located somewhere in the middle

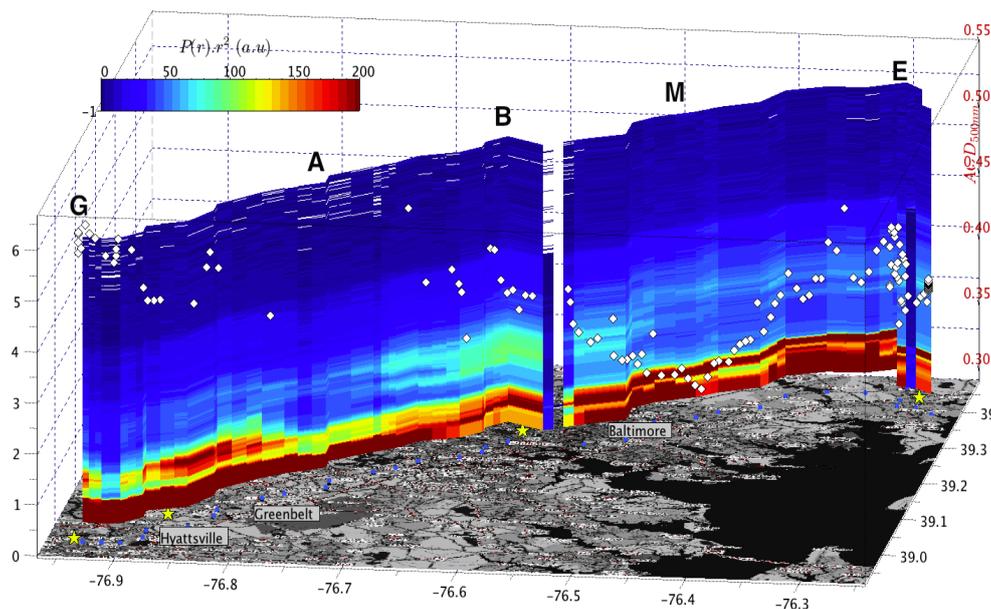


FIGURE 5.4 – Attenuated backscattered LIDAR signal measured between Hyattsville (G, 14h45) and Edgwood (E, 16h). PLASMA AOD is overlaped (white diamond).

between Baltimore center and Edgwood. From B to M, one can notice that AOD still continues to decrease and reaches a minimum of about 0.31. According to LIDAR profile, the atmospheric layer over point M is in general quite less dense in particles, especially over 1 km. Finally, from point M to Edgwood (E), reaching the end of this transect, AOD value increased up to 0.42 which can be mostly attributed to higher particle concentration within the first kilometer. During that morning transect, the sun zenith angle decreased from  $39^\circ$  at GSFC down to  $24^\circ$  near Edgwood. This indicated the atmospheric path of the sunlight to the sun-photometer was becoming shorter and more and more consistent with “local” vertical LIDAR observation. According to weather report, wind speed, at ground level was very weak ( $< 1$  m/s) and mainly oriented to East. Also at ground level and during this transect, the relative humidity keeps varying between 50-60 %.

In the following part of the paper, and before illustrating, for 20/07/2011, the variability of aerosol extinction profiles, we show the results (Figure 5.5) of the cross comparison between our retrievals and MPLNET ones at a coincident time and space (GSFC site, 21/07). Such comparison was performed under cloud-free conditions the day after (21/07) since the same condition were not existing at this site for 20/07.

To cross-compare processing methods, we first evaluated our retrieval scheme by inverting MPLNET Level 1 data (GSFC\* in Figure 5.5) and compared the results to MPLNET Level 1.5 (GSFC in Figure 5.5). These independent retrievals look quite similar and slight

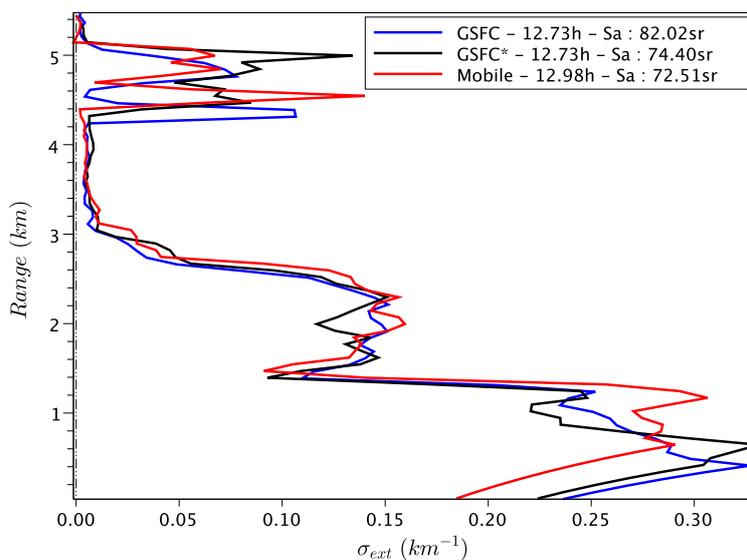


FIGURE 5.5 – Comparison between MPLNET-GSFC and LOA (Mobile) retrievals for 21/07. Inversion applied to an average of 10 profiles (10 minutes) and vertical resolution of 75 m.

difference appears for the LIDAR ratio (82 sr for MPLNET against 74 sr for ours). Knowing the two procedures are not strictly identical (reference altitude may be different, etc...), the residual differences seem quite acceptable. Then, we applied our procedure to the mobile LIDAR data and found comparable results. LIDAR ratio is quite comparable to that computed from AERONET retrievals (70+/-5 sr). Figure 5.5 also evidenced a thin layer of particles between 4 and 5 km corresponding to smoke aerosols emitted by fires in Canada. This cross-comparison exercise demonstrates the reliability of both Mobile LIDAR data and aerosol retrievals. We finally illustrate spatial aerosol variability in Figure 5.6 by showing aerosols extinction profiles and extinction to back-scatter ratio retrieved at some key locations (A(15h), B(15.25), M(15.5) and E(16h) during the 20/07 transect.

The comparison between profiles B and M is interesting because, it allows a first rough estimate (0.08) of the AOD of the layer between 1.5 and 2.5 km over Baltimore, the aerosol particles within this layer probably originating combination of local emission and/or regional transport. The LIDAR ratio retrieved at the 4 locations is shown to be varying from about 30 sr near GSFC where we suspected some possible cloud contamination to 80 sr at the end the transect. For most of the points, the LIDAR ratio ranged between 50 and 80 sr whereas the AERONET retrievals yield a value close to 70sr.

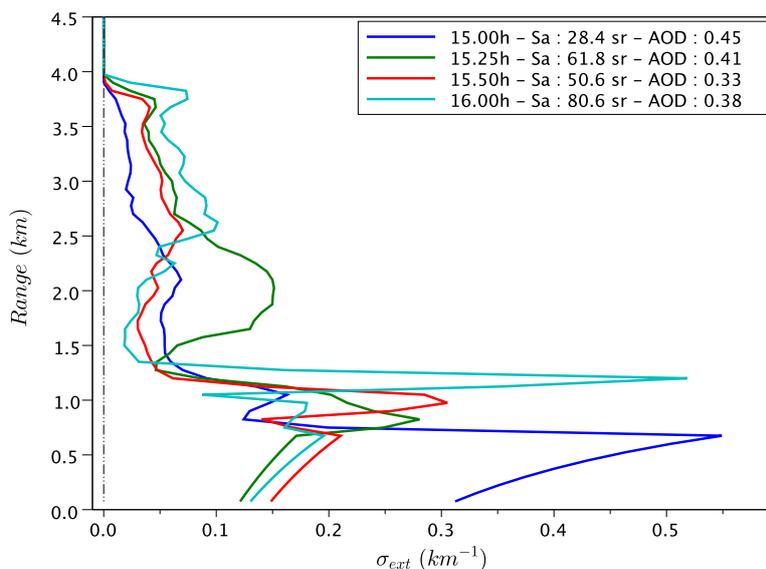


FIGURE 5.6 – Series of aerosol extinction profiles retrieved for 20/07/2011 from Mobile LIDAR and PLASMA combination (vertical resolution is 75 m, accumulation time is 10 min).

## 5.4 Conclusions and perspectives

This preliminary one day (20/07/2011) analysis, of ground-based mobile LIDAR-sunphotometer data showed aerosol spatial variability over industrial/urban area, within a 100 km distance. Comparisons against AERONET and MPLNET have shown consistency of the retrievals from our mobile system. Such light mobile platform has demonstrated that it can be deployed relatively easily and cheaply during a field experiment. This study is a first step in the analysis of the DRAGON database. Further work will be done to derive size distribution from spectral AOD measured by PLASMA and additional comparison will be made with LIDAR operated at Beltsville, Edgewood and possibly HSRL airborne LIDAR.





# Chapitre 6

## Conclusion générale et perspectives

Depuis le milieu des années 90, le LOA joue un rôle moteur dans la mise en place et l'exploitation scientifique de moyens d'observation continue des aérosols atmosphériques par télédétection. Si le niveau de connaissance de cette composante atmosphérique s'est accru, des incertitudes demeurent encore (IPCC 2013) principalement à cause de la diversité de leur nature, de leurs multiples interactions avec le rayonnement et les nuages, ainsi que leur grande variabilité spatio-temporelle, motivant une observation globale et continue.

En surface, cette observation, débutée avec les photomètres qui fournissent des informations sur les propriétés optiques et microphysiques des aérosols relatives à la colonne atmosphérique, s'est enrichie plus récemment avec la mise en place de micro-lidars délivrant, selon la même philosophie, les profils verticaux de rétrodiffusion aérosols, de manière continue, sur les deux super-sites de Lille et Mbour.

La qualité et la cohérence des observations requièrent une normalisation de l'instrumentation et des procédures, qui sont essentielles dans la perspective de réseaux d'observations, qui intègrent une variété d'instruments. Les photomètres font partie du réseau AERONET (NASA) qui centralise le traitement des données et assure, en s'appuyant sur ses composantes nationales et internationales (PHOTONS), la calibration et le bon fonctionnement des instruments. Pour les lidars, la maturité des traitements et procédures n'est pas aussi avancée.

Une partie du travail de cette thèse a donc été consacrée à la qualité des mesures (protocoles de mesures, amélioration des instruments) en interaction avec le constructeur (CIMEL) et à leur mise en valeur par l'application de traitement adéquat. C'est dans ce contexte que nous avons développé un algorithme de traitement des données lidar répondant aux critères d'automatisme, afin de pouvoir traiter l'ensemble de notre base de données (14 années cumulées d'observation) et de permettre une observation en temps réel, et de flexibilité, afin de pouvoir s'adapter aux différentes configurations instrumentales, ainsi qu'aux différentes conditions d'observation selon la localisation des mesures.

Cet algorithme comprend un module de détection nuageuse, de hauteur de couches et d'inversion couplant (ou non) les mesures lidar et photométriques.

La relative simplicité, robustesse et précision de cet algorithme (BASIC) présente un intérêt pour la communauté « Atmosphérique » française qui s'est récemment organisée au sein du système d'observation ORAURE. Les premières évaluations réalisées sur différentes familles de lidars (télescope, longueur d'onde, résolution) sont assez positives et le système est en phase d'intégration au centre de traitement de données ICARE.

S'agissant des deux super-sites maintenus par le LOA, l'analyse des résultats de BASIC, appliqué à l'ensemble de notre base de données, nous a permis de mettre en évidence des tendances et de mesurer la variabilité des aérosols. Un article est en préparation concernant les résultats du site Sénégalais (Mortier et al.).

Lille et Mbour (Dakar) présentent des caractéristiques bien contrastées : les particules présentes sur ce premier sont de type urbain/industriel (origine locale essentiellement) alors que celles observées à Mbour sont principalement constituées, selon les saisons, de poussières désertiques, de particules issues de feux de biomasse et de sels marins.

Des effets saisonniers ont été mis en évidence sur les deux sites. À Lille, des cycles annuels d'épaisseur optique, de coefficient d'Angström ont, entre autres, été constatés, et interprétés par les différences de conditions météorologiques (humidité, précipitations, ensoleillement). L'influence anthropique est très nette à l'échelle hebdomadaire (« week-end effect ») et journalière. À Mbour, nous observons une alternance de deux saisons très contrastées associées à un transport de masses d'air d'origine différentes. La saison humide est caractérisée par le transport en altitude des poussières désertiques, et au sol de sels marins, impliquant les valeurs maximales d'épaisseur optique. La saison sèche est associée à des particules plus petites et plus absorbantes (feux de biomasse et contribution locale). Bien qu'étant influencé tout au long de l'année par des aérosols d'origine naturelle, nous avons également pu mettre en évidence une influence anthropique pour ce site, à de plus fines échelles temporelles.

Des tendances à plus long-terme ressortent principalement pour le site urbain, notamment une diminution d'épaisseur optique de plus de moitié (depuis 1994) pendant la saison estivale.

La distribution verticale est très différente pour les deux sites : à Lille, les aérosols sont essentiellement concentrés dans les basses couches ( $\approx 2$  km), dont la hauteur est influencée par la température (effet journalier, saisonnier). À Mbour, la distribution verticale est plus complexe. Celle-ci reflète le transport des poussières, à basse altitude pendant la saison sèche, et à haute altitude pendant la saison humide (Air Saharan Layer). Les valeurs d'extinction sont, de manière générale bien supérieures à Mbour qu'à Lille. Il en est de même pour la concentration en particules au niveau de la surface. Bien que n'ayant pas le même impact sur la santé (tailles différentes), la concentration moyenne annuelle du site Africain est en effet supérieure au seuil d'alerte journalier imposé en France.

Les micro-lidars utilisés pour cette étude sont des systèmes relativement simples puisque nous ne disposons que d'une seule longueur d'onde. L'exploitation de ces données, en combinaison aux données photométriques permet néanmoins d'accéder à des paramètres microphysiques évolués tels que la concentration massique. Une méthode non empirique (par opposition aux méthodes présentées dans la section 3.4.2 page 113) de détermination de concentration a ainsi été utilisée sur les deux sites. Nous avons pu valider notre méthode, au niveau du sol, avec les mesures in situ effectuées par des TEOM en fonctionnement à proximité des deux observatoires. Sur le site Africain, la première application de cette méthode nous a permis de mettre en évidence une variabilité des propriétés des aérosols au niveau du sol (variation de masse volumique en fonction de l'origine des masses d'air au sol), dont la prise en compte même imparfaite permet, comme pour le site Lillois, une bonne restitution des  $PM_{10}$ .

Cette méthode nous a également permis de caractériser, de manière quantitative, des événements aérosols observés à Lille, comme une intrusion de poussières sahariennes, d'aérosols de feux de biomasse canadiens ou encore le panache de cendres volcaniques du célèbre Eyjafjöll observé pendant plus d'un mois.

Nous avons utilisé l'ensemble des caractéristiques aérosols issues des inversions (propriétés optiques et microphysiques intégrées et profils verticaux d'extinction) pour calculer de manière précise et systématique le forçage radiatif induit par les particules anthropiques sur Lille, et par les aérosols désertiques et carbonés (principalement) observés sur le site Africain. Des tendances saisonnières, dues à la variation de concentration, d'une part, et des propriétés optiques d'autre part (absorption) ont été mises en évidence. De plus, l'erreur commise, sur ces calculs, lorsque l'on utilise un profil standard (si les profils d'extinction ne sont pas disponibles) a été évaluée. Cette dernière peut atteindre, dans certains cas, jusqu'à 10 % d'erreur sur le forçage au sommet de l'atmosphère.

Les données sol permettent aussi un exercice de validation des mesures spatiales qui offrent une couverture globale, mais avec un taux de répétition temporel limité. Une comparaison entre profils d'extinction sol et profils CALIOP (à 532 nm) a été effectuée. Un bon accord a été constaté entre les profils issus d'instruments et de méthodes différents, pour des conditions d'observation très variées. Cela nous motive pour la mise en place d'un traitement permettant l'inversion simultanée des données lidar sol/spatial, activité envisagée dans le cadre d'ORAURE.

Rares sont les sites disposant d'informations lidar et photométriques dans un environnement similaire à celui de Mbour et sur une longue période d'observation. La base de données collectées offre un outil intéressant de validation des modèles atmosphériques prédisant l'émission et le transport des poussières désertiques. Un premier exercice de validation du modèle NMMB/BSC-Dust a indiqué une sous-estimation saisonnière

des poussières causée très probablement par une mauvaise prise en compte de certaines sources désertiques. D'autres exercices de comparaison sont envisagés (certains sont en cours), avec d'autres modèles, dans le cadre de MAAC-II, permettant de simuler la mise en suspension et le transport de poussières désertiques et de sels marins (Cuevas et al.). Le traitement en temps réel des données mis en place au LOA pourrait permettre aux modèles d'assimiler les profils d'extinction afin d'en améliorer la précision.

Les moyens d'observation continue des aérosols, mis en place, permettent d'étudier la variabilité à haute résolution temporelle des aérosols. Nous sommes cependant tributaires, dans ce cas, du déplacement des masses d'air au-dessus des observatoires. La déclinaison mobile terrestre de notre système (micro-lidar et photomètre mobile PLASMA développé au LOA (Karol et al. (2013)) permet une caractérisation à très haute résolution spatiale des aérosols, utile pour la validation de modèles à fine échelle, pour des comparaisons avec des mesures satellites ou pour étudier un événement aérosol d'intérêt, mais distant des observatoires. Le système a été déployé au cours de plusieurs campagnes de mesures. Les premiers résultats de l'une d'entre elles (DRAGON, USA 2011), présentés dans ce travail, ont montré la faisabilité d'un tel système : des comparaisons très satisfaisantes ont été observées avec d'autres lidars et photomètres fixes. Un article est en préparation concernant le déploiement du système mobile dans la région de Milan en juin 2012 (Mortier et al.).

Notre travail démontre également la nécessité de compléter l'observation sur les deux sites avec des mesures in situ complémentaires (distribution en taille au sol) et de chimie. À Lille, ces mesures supplémentaires se feront dans le cadre d'ORAURE et de CaPPA, partenariat entre différents laboratoires (EDM, LPCA, LASIR, LOA). À Mbour, une longue campagne de mesures impliquant ces différents laboratoires est prévue en 2015.

Les efforts d'observation continue vont être poursuivis sur les deux sites de Lille et Mbour. Le site Lillois disposera bientôt d'un lidar Raman, multi longueur-d'onde et doté de mesures de dépolarisation : LILAS (Lille Lidar AtmosphereS). L'inversion de ces nouvelles mesures profitera du développement de récents algorithmes (GARRLiC, Lopatin et al. (2013)) et contribuera à ORAURE et à court terme à EARLINET/ACTRIS.

L'algorithme BASIC utilisé au cours de cette étude va être amélioré. Nous proposerons une intégration du module d'estimation de la concentration à partir des inversions lidar (profils d'extinction) et photomètre (indice de réfraction, distribution en taille). L'implémentation du code de transfert radiatif, permettant un calcul de forçage de manière systématique, est également envisagée.

Nous nous sommes concentrés, dans ce travail, sur deux sites. Cependant, le système mis en place permet d'intégrer d'autres sites d'observation (avec un protocole de me-

---

sure normalisé et des traitements identiques). Ainsi, nous mettons en place de nouvelles collaborations avec l'Algérie (poussières et pollution), l'observatoire d'Izana (poussières transportées et aérosols marins), la Chine (mélange d'aérosols dominés par une forte contribution anthropique, à Beijing) et l'Ukraine (projet) au sein d'un « réseau » coopératif. Forts de notre expérience de l'observation continue, nous nous sommes impliqués dans la formation des personnels concernés par ces instruments au-travers une diffusion des bonnes pratiques.

Au cours de ce travail, de nombreuses interactions ont eu lieu avec l'entreprise CIMEL-Advanced Monitoring qui ont permis de faire évoluer et d'améliorer l'instrumentation ou certaines méthodes de caractérisation. Un lidar double-couche, permettant d'accéder avec plus de précision aux très basses couches, est actuellement en phase de caractérisation au laboratoire et sera couplé au lidar LILAS.

Deux photomètres lunaires sont installés depuis l'été 2013 sur les deux sites d'observation et permettront de profiter des conditions favorables qu'apportent la nuit : absence de fond radiatif, stabilité des couches. L'inversion des données lidar avec les mesures d'épaisseur optique de nuit permettra, d'une part d'augmenter le nombre d'inversions et d'assurer, d'autre part, la continuité des observations et des inversions jour/nuit (étude de la variabilité jour/nuit).

Enfin, le module de détection nuageuse, intégré dans BASIC, permet d'effectuer la séparation entre les situations nuageuses et de ciel clair. Si nous n'avons considéré dans ce document que les situations aérosols, notre travail a aussi permis de construire une base de données des paramètres nuageux (altitude des bases, maximums de rétrodiffusion et sommets des nuages). Cette base de données nous permettra, dans le cas de Mbour, d'analyser la variabilité des propriétés des cirrus aux regards de celle des aérosols désertiques, ou anthropiques dans le cas de Lille, en nous appuyant également sur les outils de modélisation méso-échelle disponibles au laboratoire.



# Bibliographie

Asthme et Allergies [2013]. URL <http://asthme-allergies.org/>.

DISCOVER-AQ [2013]. URL <http://discover-aq.larc.nasa.gov/>.

AEROCOM [2013]. URL <http://aerocom.met.no/>.

A. Ansmann, J. Bösenberg, A. Chaikovsky, A. Comerón, S. Eckhardt, R. Eixmann, V. Freudenthaler, P. Ginoux, L. Komguem, H. Linné, M. Á. L. Márquez, V. Matthias, I. Mattis, V. Mitev, D. Müller, S. Music, S. Nickovic, J. Pelon, L. Sauvage, P. Sobolewsky, M. K. Srivastava, A. Stohl, O. Torres, G. Vaughan, U. Wandinger, et M. Wiegner. Long-range transport of Saharan dust to northern Europe : The 11–16 October 2001 outbreak observed with EARLINET. *Journal of Geophysical Research*, 108(D24) [2003].

A. Ansmann, M. Riebesell, et C. Weitkamp. Measurement of atmospheric aerosol extinction profiles with a Raman lidar. *Opt. Lett.*, 15(13) :746–748 [1990]. URL <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-15-13-746>.

A. Ansmann, M. Tesche, S. Groß, V. Freudenthaler, P. Seifert, A. Hiebsch, J. Schmidt, U. Wandinger, I. Mattis, D. Müller, et M. Wiegner. The 16 April 2010 major volcanic ash plume over central Europe : EARLINET lidar and AERONET photometer observations at Leipzig and Munich, Germany. *Geophysical Research Letters*, 37(13) [2010].

H. Baars, A. Ansmann, R. Engelmann, et D. Althausen. Continuous monitoring of the boundary-layer top with lidar. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(23) :7281–7296 [2008].

T. A. Berkoff, E. J. Welton, J. R. Campbell, V. S. Scott, et J. D. Spinhirne. *Investigation of Overlap Correction Techniques for the Micro-Pulse Lidar NETWORK (MPLNET)*, tome 7. Geoscience and Remote Sensing Symposium [2003].

H. Bian, M. Chin, S. R. Kawa, H. Yu, T. Diehl, et T. Kucsera. Multiscale carbon monoxide and aerosol correlations Multiscale carbon monoxide and aerosol correlations

- from satellite measurements and the GOCART model : from satellite measurements and the GOCART model : Implication for emissions and atmospheric evolution. *Journal of Geophysical Research*, 115(D07302) [2010].
- J. Bösenberg et R. Hoff. Plan for the implementation of the GAW Aerosol Lidar Observation Network. Rapport technique, GAW [2007].
- J. Bösenberg et V. Matthias. EARLINET : A European Aerosol Research Lidar Network to Establish an Aerosol Climatology. Rapport technique, Max-Planck-Institute for Meteorology [2003].
- O. Boucher. *Aérosols atmosphériques*. Springer [2012].
- N. Boyouk, J.-F. Léon, H. Delbarre, T. Podvin, et C. Deroo. Impact of the mixing boundary layer on the relationship between PM<sub>2.5</sub> and aerosol optical thickness. *Atmospheric Environment*, 44(23) :271–277 [2010].
- M. Brauer, G. Hoek, H. A. Smit, J. C. de Jongste, J. Gerritsen, D. S. Postma, M. Kerkhof, et B. Brunekreef. Air pollution and development of asthma, allergy and infections in a birth cohort. *European Respiratory Journal*, 29(5) :879–888 [2007].
- I. M. Brooks. Finding Boundary Layer Top : Application of a Wavelet Covariance Transform to Lidar Backscatter Profiles. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 20(8) :1092–1105 [2003].
- S. M. Burrows, W. Elbert, M. G. Lawrence, et U. Pöschl. Bacteria in the global atmosphere - Part1 : Review and synthesis literature data for different ecosystems. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(23) :9263–9280 [2009].
- S. P. Burton, R. A. Ferrare, C. A. Hostetler, J. W. Hair, R. R. Rogers, M. D. Obland, C. F. Butler, A. L. Cook, D. B. Harper, et K. D. Froyd. Aerosol classification using airborne High Spectral Resolution Lidar measurements – methodology and examples. *Atmospheric Measurement Techniques*, 5 :73–98 [2012].
- C. Cattrall, J. Reagan, K. Thome, et O. Dubovik. Variability of aerosol and spectral lidar and backscatter and extinction ratios of key aerosol types derived from selected Aerosol Robotic Network locations. *Journal of Geophysical Research*, 110(D10) [2005].
- O. Cavalieri, F. Cairo, F. Fierli, G. D. Donfrancesco, M. Snels, M. Viterbini, F. Cardillo, B. Chatenet, P. Formenti, et B. Marticorena. Variability of aerosol vertical distribution in the Sahel. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(24) :12 005–12 023 [2010].
- B. N. Cew, J. R. Campbell, J. S. Reid, D. M. Giles, S. V. Salinas, et S. C. Liew. Optically thin cirrus cloud contamination in sunphotometer data. *Asian Conference on Remote Sensing* [2010].

- M. L. Chanin, A. Garnier, A. Hauchecorne, et J. Porteneuve. A Doppler lidar for measuring winds in the middle atmosphere. *Geophysical Research Letters*, 16(11) :1273–1276 [1989]. ISSN 1944-8007. URL <http://dx.doi.org/10.1029/GL016i011p01273>.
- P. Chazette, M. Bocquet, P. Royer, V. Winiarek, J.-C. Raut, P. Labazuy, M. Gouhier, M. Lardier, et J.-P. Cariou. Eyjafjallajökull ash concentrations derived from both lidar and modeling. *Journal of Geophysical Research*, 117(D4) [2012].
- I. Chiapello. Apport des observations satellitaires pour l'étude des aérosols et de leurs impacts, Habilitation à Diriger des Recherches [2011].
- I. Chiapello, G. Bergametti, L. Gomes, B. Chatenet, F. Dulac, J. Pimenta, et E. S. Soares. An additional low layer transport of Sahelian and Saharan dust over the north-eastern Tropical Atlantic. *Geophysical Research Letters*, 22(23) :3191–3194 [1995].
- E. E. Clothiaux, G. G. Mace, et T. P. Ackerman. An automated Algorithm for Detection of Hydrometeor Returns in Micropulse Lidar Data. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 15(4) :1035–1042 [1998].
- J. Cuesta et P. H. Flamant. Lidar beams in opposite directions for quality assessment of Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization spaceborne measurements. *Applied optics*, 49(12) :2232–2243 [2010].
- E. Cuevas, C. Camino, S. Basart, J. M. Baldasano, E. Terradellas, A. Benedetti, J. J. Morcrette, P. Goloub, A. Mortier, A. Berjón, Y. García, et M. Gil. Validation of dust in the MACC reanalysis over Northern Africa and Middle East. *Atmospheric Chemistry and Physics* [En préparation].
- R. Damoah, N. Spichtinger, C. Forster, P. James, I. Mattis, U. Wandinger, S. Beirle, T. Wagner, et A. Stohl. Around the world in 17 days – hemispheric-scale transport of forest fire smoke from Russia in May 2003. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 4 :1311–1321 [2004].
- J. Davis, P. Knippertz, et A. H. Fink. The predictability of precipitation episodes during the West African dry season The predictability of precipitation episodes during the West African dry season. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 139(673) :1047–1058 [2013].
- R. Delmas, G. Mégie, et V.-H. Peuch. *Physique et chimie de l'atmosphère*. Belin [2005].
- Y. Derimian, O. Dubovik, D. Tanre, P. Goloub, T. Lapyonok, et A. Mortier. Optical properties and radiative forcing of the Eyjafjallajökull volcanic ash layer observed over Lille, France, in 2010. *Journal of Geophysical Research*, 117(D20) [2012].

- Y. Derimian, A. Karnieli, Y. J. Kaufman, M. O. Andreae, T. W. Andreae, O. Dubovik, W. Maenhaut, et I. Koren. The role of iron and black carbon in aerosol light absorption. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8 :3623–3637 [2008a].
- Y. Derimian, J.-F. Léon, O. Dubovik, I. Chiapello, D. Tanré, A. Sinyuk, F. Auriol, T. Podvin, G. Brogniez, et B. N. Holben. Radiative properties of aerosol mixture observed during the dry season 2006 over M’Bour, Senegal (African Monsoon Multidisciplinary Analysis campaign). *Journal of Geophysical Research*, 113(D23) [2008b].
- P. C. S. Devara, R. S. Mahes Kumar, P. E. Raj, K. K. Dani, et S. M. Sonbawne. Some features of columnar aerosol optical depth, ozone and precipitable water content observed over land during the INDOEX-IFP99. *Meteorologische Zeitschrift*, 10(2) :122–130 [2001].
- O. Dubovik, B. Holben, T. F. Eck, A. Smirnov, Y. J. Kaufman, M. D. King, D. Tanré, et I. Slutsker. Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 59(3) [2002a].
- O. Dubovik, B. N. Holben, A. Sinyuk, M. I. Mishchenko, P. Yang, et I. Slutsker. Non-spherical aerosol retrieval method employing light scattering by spheroids. *Geophysical Research Letters*, 29(10) :54-1–54-4 [2002b].
- O. Dubovik et M. King. A flexible inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from Sun and sky radiance measurements. *Journal of Geophysical Research*, 105(D16) :20 673–20 696 [2000].
- O. Dubovik, A. Sinyuk, T. Lapyonok, B. N. Holben, M. Mishchenko, P. Yang, T. F. Eck, H. Volten, O. Muñoz, B. Veihelmann, W. J. van der Zande, J.-F. Leon, M. Sorokin, et I. Slutsker. Application of spheroid models to account for aerosol particle nonsphericity in remote sensing of desert dust. *Journal of Geophysical Research*, 111(D11) [2006].
- O. Dubovik, A. Smirnov, B. N. Holben, M. D. King, Y. J. Kaufman, T. F. Eck, et I. Slutsker. Accuracy assessments of aerosol optical properties retrieved from Aerosol Robotic Network (AERONET) Sun and sky radiance measurements. *Journal of Geophysical Research*, 105(D8) :9791–9806 [2000].
- P. Dubuisson, J. C. Buriez, et Y. Fouquart. High spectral resolution solar radiative transfer in absorbing and scattering media : application to the satellite simulation. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 55 :103–126 [1996].
- E. G. Dutton et J. R. Christy. Solar radiative forcing at selected locations and evidence for global lower tropospheric cooling following the eruptions of El Chichón and Pinatubo. *Geophysical Research Letters*, 19(23) :2313–2316 [1992].

- M. Esselborn, M. Wirth, A. Fix, B. Weinzierl, K. Rasp, M. Tesche, et A. Petzold. Spatial distribution and optical properties of Saharan dust observed by airborne high spectral resolution lidar during SAMUM 2006. *Tellus B*, 61(1) :131–143 [2009].
- M. Fiebig, A. Petzold, U. Wandinger, M. Wendisch, C. Kiemle, A. Stifter, M. Ebert, T. Rother, et U. Leiterer. Optical closure for an aerosol column : Method, accuracy, and inferable properties applied to a biomass-burning aerosol and its radiative forcing. *Journal of Geophysical Research*, 107(D21) :LAC 12–1–LAC 12–15 [2002].
- C. Flamant, J. Pelon, P. H. Flamant, et P. Durand. Lidar determination of the entrainment zone thickness at the top of the unstable marine atmospheric boundary layer. *Boundary-Layer Meteorology*, 83(2) :247–284 [1997].
- P. Flament, K. Deboudt, H. Cachier, B. Châtenet, et X. Mériaux. Mineral dust and carbonaceous aerosols in West Africa : Source assessment and characterization. *Atmospheric Environment*, 45(22) :3742–3749 [2011].
- Food et A. Organisation. Le temps est-il venu de sauver la mer d’Aral? [1998]. URL <http://www.fao.org/ag/fr/magazine/9809/spot2.htm>.
- E. O. Fors, J. Rissler, A. Massling, B. Svenningsson, M. O. Andreae, U. Dusek, G. P. Frank, A. Hoffer, M. Bilde, G. Kiss, S. Janitsek, S. Henning, M. C. Facchini, S. Decesari, et E. Swietlicki. Hygroscopic properties of Amazonian biomass burning and European background HULIS and investigation of their effects on surface tension with two models linking H-TDMA to CCNC data. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(12) :5625–5639 [2010].
- O. García, J. Díaz, F. Expósito, A. Díaz, O. Dubovik, Y. Derimian, P. Dubuisson, et J.-C. Roger. Shortwave radiative forcing and efficiency of key aerosol types using AERONET data. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12 :5129–5145 [2012].
- S. Gasso, D. Hegg, D. Covert, D. Collins, K. Noone, E. Öström, B. Schmid, P. Russell, J. Livingston, et P. Durkee. Influence of humidity on the aerosol scattering coefficient and its effect on the upwelling radiance during ACE-2. *Tellus B*, 52(2) :546–567 [2000].
- A. Geiger. Mid-infrared light hydrocarbon dial lidar [1993]. URL <http://www.google.com/patents/US5250810>. US Patent 5,250,810.
- R. O. Gilbert. *Statistical Methods for Environmental Pollution Monitoring*. John Wiley & Sons [1987].
- A. S. Goudie et N. J. Middleton. Saharan dust storms : nature and consequences. *Earth-Science Reviews*, 56 :179–204 [2001].

- D. Griffin, C. Kellogg, V. Garrison, et E. Shinn. Les microbes de l'atmosphère. *Pour la Science*, Dossier N°78 :29–33 [2013].
- S. Gross, M. Wiegner, V. Freudenthaler, et C. Toledano. Lidar ratio of Saharan dust over Cape Verde Islands : Assessment and error calculation. *Journal of Geophysical Research*, 116(D15) [2011].
- H. Guan, B. Schmid, A. Bucholtz, et R. Bergstrom. Sensitivity of shortwave radiative flux density, forcing, and heating rate to the aerosol vertical profile. *Journal of Geophysical Research*, 115(D6) [2010].
- M. Hervo. *Étude des propriétés optiques et radiatives des aérosols en atmosphère réelle : Impact de l'hygroscopicité*. Thèse de doctorat, Université Blaise Pascal, Clermont Ferrand [2013].
- A. Hoffer, A. Gelencsér, P. Guyon, G. K. O. S. G. P. F. P. Artaxo, et M. O. Andreae. Optical properties of humic-like substances (HULIS) in biomass-burning aerosols. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(11) :3563–3570 [2006].
- C. J. Hogan, E. M. Kettleston, M. H. Lee, B. Ramaswami, L. T. Angenent, et P. Biswas. Sampling methodologies and dosage assessment techniques for submicrometre and ultrafine virus aerosol particles. *Journal of Applied Microbiology*, 99 :1422–1434 [2005].
- B. Holben, T. Eck, J. Schafer, D. Giles, et M. Sorokin. Distributed Regional Aerosol Gridded Observation Networks (DRAGON) White Paper [].
- B. N. Holben, T. F. Eck, I. Slutsker, D. Tanré, J. P. Buis, A. Setzer, E. Vermote, J. A. Reagan, Y. J. Kaufman, T. Nakajima, F. Lavenu, I. Jankowiak, et A. Smirnov. AERONET-A Federated Instrument Network and Data Archive for Aerosol Characterization. *Remote Sensing of Environment*, 66(1) :1–16 [1998].
- M. Z. Jacobson. Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols. *Nature*, 409 :695–697 [2001].
- M. Jin, J. M. Shepherd, et M. D. King. Urban aerosols and their variations with clouds and rainfall : A case study for New York and Houston. *Journal of Geophysical Research*, 110(D10) [2005].
- B. Johnson, S. Osborne, J. Haywood, et Harrison. Aircraft measurements of biomass burning aerosol over West Africa during DABEX. *Journal of Geophysical Research*, 113(D23) [2008].
- B. Johnson, K. Turnbull, P. Brown, R. Burgess, J. Dorsey, A. J. Baran, H. Webster, J. Haywood, R. Cotton, et Z. Ulanowski. In situ observations of volcanic ash clouds

- from the FAAM aircraft during the eruption of Eyjafjallajökull in 2010. *Journal of Geophysical Research*, 117(D8) [2012].
- N. P. Johnson et J. Mueller. Updating the accounts : global mortality of the 1918-1920 "Spanish" influenza pandemic. *Bull Hist Med*, 76(1) :105–15 [2002].
- Y. Karol, D. Tanré, P. Goloub, C. Vervaerde, J. Balois, L. Blarel, T. Podvin, A. Mor-tier, et A. Chaikovskiy. Airborne sun photometer PLASMA : concept, measurements, comparison of aerosol extinction vertical profile with lidar. *Atmospheric Measurement Techniques*, 6(9) [2013].
- V. M. Karyampudi, S. P. Palm, J. A. Reagen, H. Fang, W. B. Grant, R. M. Hoff, C. Moulin, H. F. Pierce, O. Torres, et E. V. Browell. Validation of the Saharan dust plume conceptual model using lidar, Meteosat, and ECMWF data. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 80(6) :1045–1075 [1999].
- M. G. Kendall. *Rank Correlation Methods*, 4th ed. Charles Griffin [1975].
- J. D. Klett. Stable analytical inversion solution for processing lidar returns. *Applied Optics*, 20(211-220) [1981].
- J. D. Klett. Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratios. *Applied Optics*, 24(11) :1638–1643 [1985].
- I. Koren, Y. J. Kaufman, R. Washington, M. C. Todd, Y. Rudich, J. V. Martins, et D. Rosenfeld. The Bodélé depression : a single spot in the Sahara that provides most of the mineral dust to the Amazon forest. *Environmental Research Letters*, 1(1) [2006].
- V. G. Kruchinenko, P. N. Kozak, Y. G. Taranukha, A. A. Rozhilo, G. M. Kruchenitskii, L. V. Kozak, V. N. Ivchenko, et L. M. Belokrinitskaya. Meteoroids as a source of aerosol in the upper atmosphere. *Atmospheric and Oceanic Optics*, 24(3) :261–270 [2011].
- P. Laj, J. Klausen, M. Bilde, C. Plaß-Duelmer, G. Pappalardo, C. Clerbaux, U. Baltensperger, J. Hjorth, D. Simpson, S. Reimann, P. F. Coheur, A. Richter, M. De Mazière, Y. Rudich, G. McFiggans, K. Torseth, A. Wiedensohler, S. Morin, M. Schulz, J. D. Allan, J. L. Attié, I. Barnes, W. Birmili, J. P. Cammas, J. Dommen, H. P. Dorn, D. Fowler, S. Fuzzi, M. Glasius, C. Granier, M. Hermann, I. S. A. Isaksen, S. Kinne, I. Koren, F. Madonna, M. Maione, A. Massling, O. Moehler, L. Mona, P. S. Monks, D. Müller, T. Müller, J. Orphal, V. H. Peuch, F. Stratmann, D. Tanré, G. Tyndall, A. Abo Riziq, M. Van Roozendaal, P. Villani, B. Wehner, H. Wex, et A. A. Zardini.

- Measuring atmospheric composition change. *Atmospheric Environment*, 43(33) :5351–5414 [2009].
- T. L. Latham, P. Kumar, A. Nenes, J. Dufek, I. N. Sokolik, M. Trail, et A. Russel. Hygroscopic of volcanic ash. *Geophysical Research Letters*, 38(11) [2011].
- J. Lenoble, L. Remer, et D. Tanré. *Aerosol Remote Sensing*. Springer [2013].
- J. F. Léon, Y. Derimian, I. Chiapello, D. Tanré, T. Podvin, B. Chatenet, A. Diallo, et C. Deroo. Aerosol vertical distribution and optical properties over M'Bour (16.96° W ; 14.39° N), Senegal from 2006 to 2008. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(23) :9249–9261 [2009].
- C. Liousse, B. Guillaume, J. M. Grégoire, M. Mallet, C. Galy, V. Pont, A. Akpo, M. Bedou, P. Castéra, L. Dungall, E. Gardrat, C. Granier, A. Konaré, F. Malavelle, A. Mariscal, A. Mieville, R. Rosset, D. Serça, F. Solmon, F. Tummon, E. Assamoi, V. Yoboué, et P. Van Velthoven. Updated African biomass burning emission inventories in the framework of the AMMA-IDAF program, with an evaluation of combustion aerosols. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(19) :9631–9646 [2010].
- Z. Liu, A. Omar, Y. Hu, M. Vaughan, D. Winker, L. Poole, et T. Kovacs. CALIOP algorithm theoretical basis document. Part 3 : Scene classification algorithms. *NASA-CNES document PC-SCI-203* [2005].
- Z. Liu, A. Omar, M. Vaughan, J. Hair, C. Kittaka, Y. Hu, K. Powell, C. Trepte, D. Winker, et C. Hostetler. CALIPSO lidar observations of the optical properties of Saharan dust : A case study of long-range transport. *Journal of Geophysical Research*, 113(D7) [2008].
- A. Lopatin, O. Dubovik, A. Chaikovsky, P. Goloub, T. Lapyonok, D. Tanré, et P. Litvinov. Enhancement of aerosol characterization using synergy of lidar and sun-photometer coincident observations : the GARRLiC algorithm. *Atmospheric Measurement Techniques Discussions*, 6 :2253–2325 [2013].
- G. Malin, S. M. Turner, et P. S. Liss. Sulfur : The Plankton/Cimate Connection. *Journal of Phycology*, 28(5) :590–597 [1992].
- H. B. Mann. Non-Parametric tests against trend. *Econometrica*, 13 :245–259 [1945].
- L. C. Marr et R. A. Harley. Spectral analysis of weekday–weekend differences in ambient ozone, nitrogen oxide, and non-methane hydrocarbon time series in California. *Atmospheric Environment*, 36(14) :2327–2335 [2001].

- B. Marticorena, B. Chatenet, J. L. Rajot, S. Traoré, M. Coulibaly, A. Diallo, I. Koné, A. Maman, T. NDiaye, et A. Zakou. Temporal variability of mineral dust concentrations over West Africa : analyses of a pluriannual monitoring from the AMMA Sahelian Dust Transect. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(18) :8899–8915 [2010].
- N. Martiny, I. Chiapello, B. Sultan, et B. Fontaine. Les aérosols désertiques, un facteur potentiel des épidémies de méningite en Afrique de l'Ouest. *Santé Décision Management*, 10 :31–39 [2007].
- I. Mattis, A. Ansmann, D. Müller, U. Wandinger, et D. Althausen. Dual-wavelength Raman lidar observations of the extinction-to-backscatter ratio of Saharan dust. *Geophysical Research Letters*, 29(9) [2002].
- C. McConnell, E. Highwood, H. Coe, P. Formenti, B. Anderson, S. Osborne, S. Nava, K. Desboeufs, G. Chen, et Harrison. Seasonal variations of the physical and optical characteristics of Saharan dust : Results from the Dust Outflow and Deposition to the Ocean (DODO) experiment. *Journal of Geophysical Research*, 113(D14) [2008].
- D. Meloni, A. di Sarra, T. Di Iorio, et G. Fiocco. Influence of the vertical profile of Saharan dust on the visible direct radiative forcing. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 93(4) :397–413 [2005].
- L. Menut, C. Flamant, J. Pelon, et P. H. Flamant. Urban boundary-layer height determination from lidar measurements over the Paris area. *Applied Optics*, 38(6) :945–954 [1999].
- G. Mie. Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen. *Annalen der Physik*, 330(3) :377–445 [1908].
- M. I. Mishchenko, A. A. Lacis, B. E. Carlson, et L. D. Travis. Nonsphericity of dust-like tropospheric aerosols : Implications for aerosol remote sensing and climate modeling. *Geophysical Research Letters*, 22(9) :1077–1080 [1995].
- E. C. Monahan. Sea spray as a function of low elevation wind speed. *Journal of Geophysical Research*, 73(4) :1127–1137 [1968].
- A. Mortier, P. Goloub, Y. Derimian, D. Tanré, T. Podvin, L. Blarel, B. Marticorena, A. Diallo, T. NDiaye, et C. Deroo. Aerosol variability and radiative impact over Dakar - En préparation [2014a].
- A. Mortier, P. Goloub, C. Deroo, A. Chaikovsky, N. Ajtai, L. Blarel, D. Tanré, et Y. Derimian. Detection and characterization of volcanic ash plumes over Lille during the Eyjafjallajökull eruption. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(7) :3705–3720 [2013].

- A. Mortier, P. Goloub, B. Holben, T. Podvin, L. Blarel, C. Verwaerde, Y. Karol, I. Slutsker, J.-Y. Balois, D. Tanré, T. Berkoff, S. Victori, et R. Mathieu. Aerosol spatial distribution during DRAGON experiment as seen by a mobile ground-based lidar-sunphotometer system - preliminary results. *International Laser and Radar Conference* [2012].
- A. Mortier, P. Goloub, T. Podvin, et L. Blarel. Aerosol Spatial and Vertical Distribution over Milano region as seen by a mobile ground-based Lidar-Sunphotometer system - En préparation [2014b].
- D. Müller, A. Ansmann, I. Mattis, M. Tesche, U. W. D. Althausen, et G. Pisani. Aerosol-type-dependent lidar ratios observed with Raman lidar. *Journal of Geophysical Research*, 112(D16) [2007].
- A. Omar, Z. Liu, M. Vaughan, K. Thornhill, C. Kittaka, S. Ismail, Y. Hu, G. Chen, K. Powell, et D. Winker. Extinction-to-backscatter ratios of Saharan dust layers derived from in situ measurements and CALIPSO overflights during NAMMA. *Journal of Geophysical Research*, 115(D24) [2010].
- S. R. Pal, W. Steinbrecht, et A. I. Carswell. Automated method for lidar determination of cloud-base height and vertical extent. *Applied Optics*, 31(10) :1448–1494 [1992].
- A. Papayannis, V. Amiridis, L. Mona, G. Tsaknakis, D. Balis, J. Bösenberg, A. Chai-kovski, F. D. Tomasi, I. Grigorov, I. Mattis, V. Mitev, D. Müller, S. Nickovic, C. Pérez, A. Pietruczuk, G. Pisani, F. Ravetta, V. Rizi, M. Sicard, T. Trickl, M. Wiegner, M. G. R. E. Mamouri, G. D’Amico, et G. Pappalardo. Systematic lidar observations of Saharan dust over Europe in the frame of EARLINET (2000–2002). *Journal of Geophysical Research*, 113(D10) [2008].
- A. Papayannis, R. Mamouri, V. Amiridis, E. Giannakaki, I. Veselovskii, P. Kokkalis, G. Tsaknakis, D. Balis, N. Kristiansen, A. Stohl, M. Korenskiy, K. Allakhverdiev, M. Huseyinoglu, et T. Baykara. Optical properties and vertical extension of aged ash layers over the Eastern Mediterranean as observed by Raman lidars during the Eyjafjallajökull eruption in May 2010. *Atmospheric Environment*, 48(0) [2012].
- H. Patashnicka et E. G. Rupprecht. Continuous PM-10 Measurements Using the Tapered Element Oscillating Microbalance. *Journal of the Air and Waste Management Association*, 41(8) :1079–1083 [1991].
- J. Pelon, M. Mallet, A. Mariscal, P. Goloub, D. Tanré, D. B. Karam, C. Flamant, J. Haywood, B. Pospichal, et S. Victori. Microlidar observations of biomass burning aerosol over Djougou (Benin) during African Monsoon Multidisciplinary Analysis Special Observation Period 0 : Dust and Biomass-Burning Experiment. *Journal of Geophysical Research*, 113(23) [2008].

- C. Pérez, K. Haustein, Z. Janjic, O. Jorba, N. Huneus, J. Baldasano, T. Black, S. Basart, S. Nickovic, R. Miller, et al. Atmospheric dust modeling from meso to global scales with the online NMMB/BSC-Dust model–Part 1 : Model description, annual simulations and evaluation. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(24) :13 001–13 027 [2011].
- A. K. Piironen et E. W. Eloranta. Convective boundary layer mean depths and cloud geometrical properties obtained from volume imaging lidar data. *Journal of Geophysical Research*, 10(D12) :25 569–25 576 [2012].
- D. M. Powell, J. A. Reagan, M. A. Rubio, W. H. Erxleben, et J. D. Spinhirne. ACE-2 multiple angle micro-pulse lidar observations from Las Galletas, Tenerife, Canary Island. *Tellus B*, 52(2) [2000].
- J. M. Prospero et T. N. Carlson. Saharan air outbreaks over the tropical North Atlantic. *Pure and Applied Geophysics*, 119(3) :677–691 [1981].
- H. Randriamiarisoa, P. Chazette, P. Couvert, J. Sanak, et G. Mégie. Relative humidity impact on aerosol parameters in a Paris suburban area. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6 :1389–1407 [2006].
- G. Raymond. Le diesel et la France : Une histoire d’amour qui dure depuis 30 ans. *Le Huffington Post* [2013].
- A. Robock. Volcanic Eruptions And Climate. *Reviews Of Geophysics*, 38(2) :191–219 [2000].
- P. Rossini, E. Molinaroli, G. D. Falco, F. Fiesoletti, S. Papa, E. Pari, A. Renzulli, P. Tentoni, A. Testoni, L. Valentini, et G. Matteucc. April–May 2010 Eyjafjallajökull volcanic fallout over Rimini, Italy. *Atmospheric Environment*, 48(0) :122–128 [2012].
- P. Royer, P. Chazette, K. Sartelet, Q. J. Zhang, M. Beekmann, et J.-C. Raut. Comparison of lidar-derived PM<sub>10</sub> with regional modeling and ground-based observations in the frame of MEGAPOLI experiment. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(20) :10 705–10 726 [2011].
- H. C. de la Santé Publique. Pollution par les particules dans l’air ambiant Synthèse et recommandations Pollution par les particules dans l’air ambiant : Synthèse et recommandations pour protéger la santé [2012].
- S. K. Satheesh et K. K. Moorthy. Radiative effects of natural aerosols : A review. *Atmospheric Environment*, 39(11) :2089–2110 [2005].
- U. Schumann, B. Weinzierl, O. Reitebuch, H. Schlager, A. Minikin, C. Forster, R. Baumann, T. Sailer, K. Graf, et H. Mannstein. Airborne observations of the Eyjafjalla

- volcano ash cloud over Europe during air space closure in April and May 2010. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(5) :2245–2279 [2011].
- P. Seibert, F. Beyrich, S.-E. Gryning, S. Joffre, A. Rasmussen, et P. Tercier. Review and intercomparison of operational methods for the determination of the mixing height. *Atmospheric Environment*, 34(7) :1001–1027 [2000].
- J. H. Seinfeld et S. Pandis. *Atmospheric chemistry and physics : from air pollution to climate change*. Wiley [1998].
- C. Skonieczny, A. Bory, V. Bout-Roumazeilles, W. Abouchami, S. Galer, X. Crosta, A. Diallo, et T. Ndiaye. A three-year time series of mineral dust deposits on the West African margin : Sedimentological and geochemical signatures and implications for interpretation of marine paleo-dust records. *Earth and Planetary Science Letters*, 364 :145–156 [2013].
- C. S. Sloane. Optical properties of aerosols of mixed composition. *Atmospheric Environment*, 18 :871–878 [1984].
- A. Smirnov, B. Holben, T. Eck, O. Dubovik, et I. Slutsker. Cloud-screening and quality control algorithms for the AERONET database. *Remote Sensing of Environment*, 73(3) :337–349 [2000].
- A. Smirnov, B. N. Holben, T. F. Eck, I. Slutsker, B. Chatenet, et R. T. Pinker<sup>5</sup>. Diurnal variability of aerosol optical depth observed at AERONET (Aerosol Robotic Network) sites. *Geophysical Research Letters*, 29(23) :30–1 30–4 [2002].
- J. Spinhirne. Micro pulse lidar. *Geoscience and Remote Sensing*, 31(1) :48–55 [1993].
- D. Tanré, J. Haywood, J. Pelon, J. F. Léon, B. Chatenet, P. Formenti, P. Francis, P. Goloub, E. J. Highwood, et G. Myhre. Measurement and modeling of the Saharan dust radiative impact : Overview of the Saharan Dust Experiment (SHADE). *Journal of Geophysical Research*, 108(D18) [2003].
- H. Thibault. La Chine adopte un plan national de lutte contre la pollution de l'air. *Le Monde* [2013].
- B. Torres. *Study on the influence of different error sources on sky radiance measurements and inversion-derived aerosol products in the frame of AERONET*. Thèse de doctorat, Universidad de Valladolid, Departamento de Física Teórica, Atómica y Óptica [2012].
- C. Tsamalis, A. Chédin, et V. Capelle. The seasonal vertical distribution of the Saharan Air Layer and its modulation by Climate of the Past Climate of the Past Discussions The seasonal vertical distribution of the Saharan Air Layer and its modulation by the wind. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 13 :4727–4784 [2013].

- S. Twomey. Pollution and the planetary albedo. *Atmospheric Environment*, 8 :1256–1281 [1974].
- J.-P. Vernier. *Les aérosols et le transport dans la haute troposphère et la stratosphère tropicale à partir des mesures du lidar spatial CALIPSO*. Thèse de doctorat, Université de Versailles Saint-Quentin en Yvelines [2012].
- P. J. Villeneuve, M. S. Goldberg, D. Krewski, R. T. Burnett, et Y. Chen. Fine particulate air pollution and all-cause mortality within the Harvard Six-Cities Study : variations in risk by period of exposure. *Annals of Epidemiology*, 12(8) :568–576 [2002].
- U. Wandinger, D. Müller, C. Böckmann, D. Althausen, V. Matthias, J. Bösenberg, V. Weiß, M. Fiebig, M. Wendisch, A. Stohl, et A. Ansmann. Optical and microphysical characterization of biomass-burning and industrial-pollution aerosols from multiwavelength lidar and aircraft measurements. *Journal of Geophysical Research*, 107(D21) :LAC 7–1–LAC 7–20 [2002].
- F. Waquet, F. Peers, F. Ducos, P. Goloub, S. Platnick, J. Riedi, D. Tanré, et F. Thieuleux. Global analysis of aerosol properties above clouds. *Geophysical Research Letters* [2013].
- C. Weitkamp. *Lidar : Range-Resolved Optical Remote Sensing of the Atmosphere*. Springer [2005].
- E. J. Welton, J. R. Campbell, J. D. Spinhirne, et V. S. Scott III. *Global monitoring of clouds and aerosols using a network of micropulse lidar systems*. International Society for Optics and Photonics [2001].
- E. J. Welton, K. J. Voss, H. R. Gordon, H. Maring, A. Smirnov, B. Holben, B. Schmid, J. M. Livingston, P. B. Russell, P. A. Durkee, P. Formenti, et M. O. Andreae. Ground-based lidar measurements of aerosols during ACE-2 : instrument description, results, and comparisons with other ground-based and airborne measurements. *Tellus B*, 52(2) :636–651 [2000].
- D. M. Winker, J. Pelon, et M. P. McCormick. The CALIPSO mission : Spaceborne lidar for observation of aerosols and clouds. *Proc. Spie*, 4893(1) [2003].
- D. M. Winker, M. A. Vaughan, A. Omar, Y. Hu, K. A. Powell, Z. Liu, W. H. Hunt, et S. A. Young. Overview of the CALIPSO mission and CALIOP data processing algorithms. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 26(11) :2310–2323 [2009].
- Y. Zhang, H. Yu, T. F. Eck, A. Smirnov, M. Chin, L. A. Remer, H. Bian, Q. Tan, R. Levy, B. N. Holben, et S. Piazzolla. Aerosol daytime variations over North and South America derived from multiyear AERONET measurements. *Journal of Geophysical Research*, 117(D5) [2012].



# Liste des acronymes

- 3MI : Multi-viewing Multi-channel Multi-polarisation Imager
- AASQA : Association Agréée de Surveillance de la Qualité de l’Air
- ACTRIS : Aerosols, Clouds, and Trace gases Research InfraStructure Network
- AD-Net : Asian Dust Network
- AE : Angström Exponent
- AEROCOM : AEROSol Comparisons between Observations and Models
- AERONET : AErosol RObotic NETwork
- ALINE : American LIdar NETwork
- AMC : Aerosol Mass Concentration
- AMMA : Analyses Multidisciplinaire de la Mousson Africaine
- AMS : Aerosol Mass Spectrometer
- AOD : Aerosol Optical Depth
- APD : Avalanche PhotoDiode
- BL : Boundary Layer
- BOA : Bottom Of Atmosphere
- BRDF : Bidirectionnal Reflectance Distribution Function
- BSC : Barcelona Supercomputing Center
- CALIOP : Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization
- CALIPSO : Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observations
- CAML : Cloud and Aerosol Micro Lidar
- CaPPA : Chemical And Physical Properties of the Atmosphere
- CCN : Cloud Condensation Nuclei
- CHARMEX : CHEmistry-AeROSol Mediterranean EXperiment
- CLRTAP : Convention on Long-Range Transboundary Air Pollution
- CNRS : Centre National de la Recherche Scientifique
- COV : Composés Organiques Volatils
- CSIRO : Commonwealth Scientific and Industrial Research Organisation
- DIAL DIfferential Absorption Lidar
- DOD : Dust Optical Depth
- DRAGON : Distributed Regional Aerosol Gridded Observation Networks EARLI-  
NET : European Aerosol Research Lidar Network

- EARTHCARE : EARTH Clouds, Aerosols and Radiation Explore
- EDM : École Des Mines
- ESRL : Earth System Research Laboratory
- FAP : Filtres À Particules
- FFT : Fast Fourier Transform
- FP7 : 7th Framework Programme for research
- FPGA : Field Programmed Gate Array
- GAARLIC : Generalized Aerosol Retrieval from Radiometer and Lidar Combined data
- GALION : GAW Atmospheric Lidar Observation Network
- GAME : Global Atmospheric Model
- GAW : Global Atmosphere Watch
- GDAS : Global Data Assimilation System
- GES : Gaz à Effets de Serre
- GHCN : Global Historical Climatology Network
- GIEC : Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Évolution du Climat
- GRASP : Generalized Retrieval of Aerosol and Surface Properties
- GSFC : Goddard Space Flight Center
- HSRL : High Spectral Resolution Lidar
- HYSPLIT : HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory
- IASI-NG : Infrared Atmospheric Sounder Interferometer - New Generation
- ICARE : Cloud-Aerosol-Water-Radiation Interactions
- INDOEX : INDIan Ocean EXperiment
- IPCC : Intergovernmental Panel on Climate Change
- IRD : Institut de Recherche pour le Développement
- ISCCP : International Satellite Cloud Climatology Project
- LACE : Lindenberg Aerosol Characterization Experiment
- LASIR : LABORatoire de Spectrochimie Infrarouge et Raman
- LGGE : Laboratoire de Glaciologie et Géophysique de l'Environnement
- LIDAR : LIght Detection And Ranging
- LILAS : Lille Lidar AtmosphereS
- LISA : Laboratoire Inter-universitaire des Systèmes Atmosphériques
- LOA : Laboratoire d'Optique Atmosphérique
- LPCA : Laboratoire de Physicochimie de l'Atmosphère
- MAAC : Monitoring Atmospheric Composition & Climate
- MODIS : MODerate resolution Imaging Spectroradiometer
- MPLNET : Micro Pulse Lidar NETwork
- NASA : National Aeronautics and Space Administration
- NCEP : National Weather Service's National Centers for Environmental Prediction
- NDACC : Network for the Detection of Atmospheric Composition Change

- NMMB : Nonhydrostatic Multiscale Meteorological Model on the B grid
- OMS : Organisation Mondiale de la Santé
- ORAURE : Observations en Réseaux des Aérosols à Usage de Recherches Environnementales
- PC2A : laboratoire de PhysicoChimie des Processus de Combustion et de l'Atmosphère
- PhLAM : laboratoire de Physique des Lasers, Atomes et Molécules
- PIB : Produit Intérieur Brut
- PLASMA : Photomètre Léger Aéroporté pour la Surveillance des Masses d'Air
- PM : Particule Matter
- POLDER : POLarization and Directionality of the Earth's Reflectances
- RCS : Range Corrected Signal RSB : Rapport Signal sur Bruit
- SA : Seuil d'Alerte
- SHADE : SaHAran Dust Experiment
- SMPS : Scanning Mobility Particle Sizer
- SOERE : Systèmes d'Observation et d'Expérimentation pour la Recherche en Environnement
- SRI : Seul de Recommandation et d'Information
- TEOM : Tapered Element Oscillating Microbalance
- TL : Top Layer
- TOA : Top Of Atmosphere
- UMBC : University of Maryland, Baltimore County
- USGS : U.S. Geological Survey
- WMO : World Meteorological Organization
- ZCIT : Zone de Convergence InterTropicale



# Table des figures

1.1	Évolution de la température globale (barres de couleurs) et de la concentration en CO <sub>2</sub> (trait noir) depuis 1880, reconstruites puis mesurées. L'anomalie de la température est ici représentée et exprime la différence avec la température de référence moyennée entre 1950 et 1980. . . . .	4
1.2	Particules aérosols vues au microscope à balayage électronique (à différents grossissements). . . . .	6
1.3	Processus d'émission d'aérosols primaires a) et secondaires b) . . . . .	7
1.4	Stratification verticale de l'Atmosphère. . . . .	12
1.5	Schéma de l'appareil respiratoire de l'Homme et transport des aérosols inhalés en fonction de leur dimension. . . . .	15
1.6	Les voies respiratoires sont la porte d'entrée de l'organisme pour les particules atmosphériques. . . . .	16
1.7	Forçage radiatif induit par les différentes composantes atmosphériques. . . . .	18
1.8	Représentation des différents effets radiatifs des aérosols. . . . .	20
1.9	Distributions en taille bi-modale en nombre (à gauche) et en volume (à droite). . . . .	21
1.10	Augmentation du rayon $r$ d'une particule avec l'humidité. . . . .	23
1.11	Représentation de l'angle solide élémentaire $d\omega$ . . . . .	25
1.12	Variation du facteur d'extinction en fonction du paramètre de taille $x$ pour différents indices de réfraction. . . . .	27
1.13	Transmission d'un rayonnement au travers un volume $dV$ contenant un milieu diffusant et absorbant . . . . .	28
1.14	Diffusion d'un rayonnement par un volume élémentaire $dV$ composé de centres de diffusion. . . . .	30
1.15	Fonctions de phase. . . . .	31
1.16	Réseaux de lidars et photomètres. . . . .	35
1.17	Super-sites instrumentés du LOA. . . . .	38
1.18	La plateforme d'observation de Mbour. . . . .	38
2.1	TEOM 1400A (à gauche) et une cheminée de prélèvement (à droite). . . . .	43
2.2	Photomètre CE-318. . . . .	45

2.3	Les deux scénarios de mesures de rayonnement diffus par le photomètre : l'almucantar (à gauche) et le plan principal (à droite). . . . .	47
2.4	Principe de détection du lidar. . . . .	50
2.5	Photographie du rack lidar et parcours du faisceau laser (en vert). . . . .	51
2.6	Facteur de correction de la non linéarité des détecteurs (à gauche) et signal d'écho enregistré lors d'une mesure d'After Pulse (à droite) . . . . .	54
2.7	À gauche : en noir, le signal rétrodiffusé en configuration horizontale (Lille, 18/02/2013) ; en couleur, les différents fits linéaires effectués pour différentes zones d'ajustement. À droite : les fonctions de recouvrement résultantes. La zone de recouvrement total est atteinte pour $z_{fo} \approx 4 \text{ km}$ . . . . .	56
2.8	À gauche, le signal rétrodiffusé mesuré à Lille, le 10/10/2010 et le signal moléculaire simulé (Rayleigh). À droite, les fonctions de recouvrement obtenues lors de tirs horizontaux (vert), et par comparaison avec le signal moléculaire simulé (noir). . . . .	57
2.9	Signal lidar original (noir) et filtré pour différentes largeurs de gaussiennes (à gauche) - Lille, 16/07/2013. À droite, le spectre du signal original (noir) et les différentes gaussiennes utilisées dans les filtrages. . . . .	58
2.10	Détection des nuages à partir de l'étude du fond radiatif. . . . .	59
2.11	Détection nuageuse basée sur la variabilité verticale des profils. . . . .	62
2.12	La corrélation entre le signal lidar (a) et une ondelette de Haar (b) donne un pic de corrélation au niveau de la hauteur de la couche limite (c). La corrélation dépend de la dilatation de l'ondelette. (Source : Baars et al. (2008)). . . . .	64
2.13	Couche limite (points noirs) et sommet de la couche (points blancs) pour les deux sites d'observation. . . . .	65
2.14	Épaisseur optique lidar en fonction de l'altitude de référence. . . . .	68
2.15	Détection de l'altitude optimale de référence $z_0$ . . . . .	69
2.16	Incertitudes sur les inversions, Lille 06/04/2010. . . . .	70
2.17	Sensibilité du coefficient, $\eta$ , reliant l'extinction à la concentration massique, au rapport d'amplitude du mode grossier, $n_{0,c}$ , et du mode fin, $n_{0,f}$ . . . . .	73
2.18	Interface web lidar du LOA - <a href="http://www-loa.univ-lille1.fr/Instruments/lidar/">http://www-loa.univ-lille1.fr/Instruments/lidar/</a> . . . . .	74
3.1	Moyennes saisonnières des rétro-trajectoires d'une durée de 72h00 se terminant à Lille au niveau du sol (rouge), à 3000 m (bleu) et 5000 m (vert). . . . .	78
3.2	Rose des vents (rayon : vitesse ( $\text{m.s}^{-1}$ ), angle : direction ( $^\circ$ )) issues de mesures horaires à 10 m du sol à proximité de l'observatoire de Lille pour la période 2006-2012 (données MétéoFrance). . . . .	80
3.3	Fraction nuageuse pour la période 2008 - 2012 . . . . .	81
3.4	Fraction nuageuse journalière de 2008 à 2012 avec distinction jour/nuit (cumulatives). . . . .	82

3.5	Fraction nuageuse (cumulative) journalière de 2008 à 2012 en fonction des classes d'altitude des nuages distinguées par l'ISCCP. . . . .	83
3.6	Taux d'ensoleillement de 2008 à 2012. . . . .	84
3.7	Épaisseur optique $\tau$ mesurée à Lille à 532 nm. . . . .	86
3.8	Moyennes saisonnières d'épaisseur optique $\tau$ en fonction de l'année. . . . .	87
3.9	Coefficient d'Angström $\alpha$ mesuré à Lille. (Schéma de figures identique à la Figure 3.7) . . . . .	88
3.10	Rayons effectifs $r_{fine}$ (en bleu) et $r_{coarse}$ (en rouge) des modes fin et grossier de la distribution en taille. . . . .	90
3.11	Moyennes saisonnières du rayon effectif du mode grossier $r_{coarse}$ . . . . .	91
3.12	Rapport des amplitudes du modes grossier $n_{0,c}$ et du mode fin $n_{0,f}$ de la distribution en taille. . . . .	92
3.13	Albédo de diffusion simple $\varpi_0$ interpolé à 532 nm. . . . .	94
3.14	Indice de réfraction complexe $m = m_r - i m_i$ interpolé à 532 nm. Les parties réelle et imaginaire sont tracées respectivement en violet et rouge. . . . .	96
3.15	Rapport lidar $S_a$ à 532 nm issu des inversions lidar/photomètre de BASIC. . . . .	97
3.16	Variations mensuelles de la hauteur des précipitations (a) et de la concentration en particules (de diamètre $< 10\mu\text{m}$ ) mesurée au niveau du sol (b). . . . .	102
3.17	Représentations polaires de l'épaisseur optique $\tau$ , du coefficient d'Angström $\alpha$ , du rapport lidar $S_a$ et du nombre total d'observations en fonction de la direction du vent. . . . .	104
3.18	Variation journalière des $\text{PM}_{10}$ . . . . .	105
3.19	Variation hebdomadaire des différences entre les paramètres aérosols (épaisseur optique $\tau$ , concentration mesurée au niveau du sol $\text{PM}_{10}$ et coefficient d'Angström $\alpha$ ) et leur valeur moyenne respective. . . . .	106
3.20	Le 15 mai 2003, des aérosols fortement absorbants on été observés au dessus de Lille. . . . .	107
3.21	Série temporelle des profils verticaux d'extinction mensuels. Les points blancs et noirs correspondent respectivement aux hauteurs de couche limite ( $BL$ ) et de sommet de couche ( $TL$ ). . . . .	109
3.22	Profils verticaux d'extinction saisonniers, par année. . . . .	110
3.23	Évolutions journalières de la température mesurée au niveau du sol (a), des hauteurs de couche limite (b), de sommet de couche (c) et du coefficient d'extinction au niveau du sol (d). . . . .	112
3.24	Comparaison des méthodes d'estimation de concentration : corrélation avec l'épaisseur optique $\tau$ , épaisseur optique corrigée de l'altitude de la couche limite $\tau_{BL}$ , extinction au niveau du sol $\sigma_{ext}$ , et extinction utilisant la distribution en taille AERONET $\sigma_{ext,VSD}$ . . . . .	116

3.25	Estimation de la concentration massique au niveau du sol à partir des inversions lidar-photomètre (orange) et mesures in situ ( $PM_{10}$ ) effectuées à l'aide d'un TEOM (bleu). . . . .	117
3.26	Moyennes journalières de $PM_{10}$ mesurées à proximité de l'observatoire de Lille. . . . .	119
3.27	Profils de rétrodiffusion à Lille le 26 juin 2013 : détection d'un panache d'aérosols issus de feux de combustion de biomasse au Canada. . . . .	122
3.28	Profils d'extinction $\sigma_{aer}(z)$ à 532 nm pour les journées majeures de l'évènement d'aérosols de feux de biomasse (à gauche) et les rétro-trajectoires associées (à droite). . . . .	124
3.29	Profils de rétrodiffusion à Lille le 07 avril 2011 : détection d'un panache de poussières désertiques originaires du Sahara. . . . .	126
3.30	Profils d'extinction $\sigma_{aer}(z)$ à 532 nm correspondants au passage du panache principal de poussières désertiques à Lille, le 07 Avril 2011 (à gauche). À droite, image MODIS (07/04/2011) montrant l'arrivée du nuage de poussières depuis le Sahara jusqu'au Nord de la France. . . . .	127
3.31	Photographie aérienne de l'Eyjafjöll lors de sa seconde phase éruptive, le 17 Avril 2010. . . . .	129
3.32	Profils verticaux (moyennes mensuelles) du forçage radiatif, pour Lille, de 2008 à 2012. . . . .	148
3.33	Efficacité du forçage radiatif au sommet (en rouge) et à la base (en bleu) de l'atmosphère. L'albédo de surface à 650 nm est représenté par la ligne noire. . . . .	149
3.34	Taux d'échauffement résultant des différentes composantes atmosphériques	151
4.1	Moyennes saisonnières des rétro-trajectoires d'une durée de 72h00 se terminant à Mbour au niveau du sol (rouge), à 3000 m (bleu) et 5000 m (vert). . . . .	156
4.2	Identique à la Figure 4.1, pour les moyennes mensuelles. . . . .	158
4.3	Rose des vents (rayon : vitesse ( $m.s^{-1}$ ), angle : direction ( $^{\circ}$ )) issues de mesures horaires (4 mesures par journée) à l'observatoire de Mbour pour la période 2005-2010 (données LISA). . . . .	159
4.4	Fraction nuageuse pour la période 2006 - 2012 . . . . .	160
4.5	Fractions nuageuse journalières de 2006 à 2012 de nuit et de jour (cumulatives). . . . .	161
4.6	Fraction nuageuse (cumulative) journalière de 2006 à 2012 en fonction des classes d'altitude des nuages distinguées par l'ISCCP. . . . .	162
4.7	Taux d'ensoleillement de 2006 à 2012. . . . .	163

4.8	Épaisseur optique $\tau$ mesurée à Mbour à 532 nm. La série temporelle (a) représente les moyennes journalières (vert clair) et mensuelles (vert foncé) du paramètre. Les boîtes des autres figures représentent les premier et troisième quartiles (de hauteur IQR). Le trait coloré qu'elles contiennent est la médiane. Les moustaches, les valeurs maximales et minimales obtenues dans l'intervalle $[médiane - 1,5 IQR; médiane + 1,5 IQR]$ . . . . .	164
4.9	Coefficient d'Angström $\alpha$ mesuré à Lille. (Schéma de figures identique à la Figure 4.8) . . . . .	166
4.10	Rayons effectifs $r_{fine}$ (en bleu) et $r_{coarse}$ (en rouge) des modes fin et grossier de la distribution en taille. . . . .	168
4.11	Moyennes saisonnières des rayons effectifs des deux modes, $r_{fine}$ et $r_{coarse}$ . En pointillés, la régression linéaire obtenue pour chacune des séries saisonnières (méthode des moindres carrés). . . . .	169
4.12	Rapport des amplitudes des modes grossier $C$ et fin $F$ de la distribution en taille. . . . .	170
4.13	Albédo de diffusion simple $\varpi_0$ interpolé à 532 nm. . . . .	171
4.14	Indice de réfraction complexe $m = m_r - i m_i$ interpolé à 532 nm. Les parties réelle et imaginaire sont tracées respectivement en violet et rouge. . . . .	173
4.15	Moyennes saisonnières de la partie réelle $m_r$ de l'indice de réfraction. . . . .	174
4.16	Rapport lidar $S_a$ à 532 nm issu des inversions lidar/photomètre. . . . .	175
4.17	Roses des vents correspondant à l'automne pour les années 2006, 2008 et 2010 (de gauche à droite). . . . .	177
4.18	Variation journalière des paramètres optiques en fonction de la saison. . . . .	179
4.19	Variation hebdomadaire des différences entre les paramètres aérosols (épaisseur optique $\tau$ , concentration mesurée au niveau du sol $PM_{10}$ et coefficient d'Angström $\alpha$ ) et leur valeur moyenne respective. . . . .	181
4.20	Série temporelle des profils verticaux d'extinction mensuels. Les points blancs et noirs correspondent respectivement aux hauteurs de couche limite ( $BL$ ) et de sommet de couche ( $TL$ ). . . . .	182
4.21	Profils verticaux d'extinction saisonniers, par année. . . . .	183
4.22	Identique à la Figure 4.21 pour les moyennes mensuelles. . . . .	184
4.23	Évolutions journalières de la température mesurée au niveau du sol (a), des hauteurs de couche limite (b) et de sommet de couche (c) et du coefficient d'extinction au niveau du sol (d). . . . .	187
4.24	Estimation de la concentration massique au niveau du sol à partir des inversions lidar-photomètre (orange) et mesures in situ ( $PM_{10}$ ) effectuées à l'aide d'un TEOM (bleu). . . . .	188
4.25	Série temporelle du coefficient reliant l'extinction à la concentration massique mesurée au sol ( $PM_{10}$ ). . . . .	189
4.26	Série temporelle de la direction du vent mesurée au niveau du sol. . . . .	189

4.27	Estimation de la concentration massique au niveau du sol à partir des inversions lidar-photomètre (orange) et mesures in situ (PM <sub>10</sub> ) effectuées à l'aide d'un TEOM (bleu). . . . .	191
4.28	Moyennes journalières de PM <sub>10</sub> mesurées à Mbour. . . . .	192
4.29	Proportion des aérosols selon leur nature en fonction de la saison. . . . .	193
4.30	Profils verticaux d'extinction saisonniers, par classe d'épaisseur, selon l'albédo de diffusion simple : de gauche à droite, $\varpi_0 > 0,95$ (poussières désertiques), $0,85 < \varpi_0 < 0,95$ (mélange) et $\varpi_0 < 0,85$ (particules issues de combustion). . . . .	194
4.31	Profils verticaux (moyennes mensuelles) du forçage radiatif, de 2006 à 2012, pour Mbour. . . . .	195
4.32	Efficacité du forçage radiatif au sommet (en rouge) et à la base (en bleu) de l'atmosphère. L'albédo de surface à 650 nm est représenté par la ligne noire. . . . .	196
4.33	Taux d'échauffement résultant des différentes composantes atmosphériques	197
4.34	Influence du profil vertical d'extinction sur l'estimation du forçage radiatif et du taux d'échauffement . . . . .	199
4.35	Profils d'extinction du lidar terrestre (en bleu) et spatial (en rouge, les incertitudes sont représentées en pointillés). . . . .	202
4.36	Profil vertical moyen (sur 60 comparaisons) des différences d'extinction. .	203
4.37	Rapports lidar $S_a$ , pour le lidar spatial (en rouge) et le lidar terrestre (en bleu). . . . .	205
4.38	Profils mensuels d'extinction issus de la synergie lidar/photomètre (en rouge) et estimés à partir du modèle NMMB/BSC-Dust (en bleu), pour l'année 2007. . . . .	207
4.39	Rétrotrajectoires d'une durée de 72h00 pour les mois de juillet et décembre 2007. . . . .	208
4.40	Séries temporelles des moyennes journalières d'épaisseur optique (a) et de concentration massique au niveau du sol (b) pour l'année 2007. . . . .	209
4.41	Transect Lille-Dunkerque du 07 septembre 2012. . . . .	215
5.1	DRAGON Network deployed in the metropolitan area of Washington (about 50 km x 100 km). Yellow pins represent AERONET sites whereas other symbols are DRAGON sites. . . . .	218
5.2	AOD (532 nm) variability as measured by the mobile sun-photometer PLASMA and AERONET- DRAGON stations operated in the afternoon of 20/07/2011. Red error bars give standard deviation +/- 30 min. . . . .	220
5.3	Angström exponent (440/670) and water vapor content variability as measured by the mobile sun- photometer PLASMA and AERONET-DRAGON stations operated in the afternoon of 20/07/2011. . . . .	221

---

5.4	Attenuated backscattered LIDAR signal measured between Hyattsville (G, 14h45) and Edgwood (E, 16h). PLASMA AOD is overlaped (white diamond).	222
5.5	Comparison between MPLNET-GSFC and LOA (Mobile) retrievals for 21/07. Inversion applied to an avaregae of 10 profiles (10 minutes) and vertical resolution of 75 m. . . . .	223
5.6	Series of aerosol extinction profiles retrieved for 20/07/2011 from Mobile LIDAR and PLASMA combination (vertical resolution is 75 m, accumulation time is 10 min). . . . .	224



# Liste des tableaux

1.1	Flux approximatifs d'émission des principaux types d'aérosols primaires et des précurseurs aux aérosols secondaires. . . . .	11
1.2	Propriétés optiques des principaux types d'aérosols (à 440 nm). . . . .	31
2.1	Principales caractéristiques du lidar. . . . .	52
2.2	Rapports lidar $S_a$ à 532 nm des principaux types d'aérosols utilisés par CALIOP. . . . .	66
2.3	Sources d'incertitudes et impact sur l'estimation de l'AMC. L'erreur totale est calculée dans le cas d'erreurs indépendantes. . . . .	72
3.1	Couverture nuageuse Lilloise (%) basée sur la détection depuis les données lidar. . . . .	84
3.2	Principales propriétés intégrées des aérosols et concentration mesurée au niveau du sol (moyenne $\pm$ écart-type). . . . .	100
3.3	Moyennes saisonnières et écarts types des coefficients d'extinction au niveau du sol $\sigma_{ext}(z_0)$ et à 1 km d'altitude et des hauteurs de couche limite ( $BL$ ) et sommet de couche ( $TL$ ). . . . .	111
3.4	Variations moyennes journalières de température et des hauteurs de couches $BL$ et $TL$ par saison. . . . .	113
3.5	Paramètres statistiques et erreurs sur l'estimation de la concentration au niveau du sol à partir des différentes méthodes. . . . .	118
3.6	Évènements (et nombre de jours) pour lesquels les moyennes journalières de $PM_{10}$ sont supérieures aux seuils SRI et SA ainsi que leur moyenne annuelle. L'objectif de qualité de l'air annuel est de $25 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . . . . .	119
3.7	Évènements aérosols observés à Lille à l'aide du lidar et du photomètre. . . . .	122
3.8	Forçage radiatif et efficacité du forçage radiatif des aérosols ( $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$ ), intégré sur la journée, en fonction de la saison. . . . .	149
3.9	Taux d'échauffement journalier ( $\text{K}\cdot\text{jour}^{-1}$ ) au niveau de la surface, des différentes composantes atmosphériques, en fonction de la saison. . . . .	150

4.1	Couverture nuageuse (%) basée sur la détection depuis les données lidar à Mbour. . . . .	163
4.2	Principales propriétés intégrées des aérosols et concentration mesurée au niveau du sol par le TEOM (moyenne $\pm\sigma$ ). . . . .	176
4.3	Moyennes saisonnières et écarts types des coefficients d'extinction au niveau du sol $\sigma_{ext}(z_0)$ et à 1 km d'altitude et des hauteurs de couche limite ( $BL$ ) et sommet de couche ( $TL$ ). . . . .	185
4.4	Variations moyennes journalières de température et des hauteurs de couches $BL$ et $TL$ par saison. . . . .	186
4.5	Paramètres statistiques et erreurs sur l'estimation de la concentration au niveau du sol à avec une masse volumique fixe ( $\rho$ ) ou dépendant de la saison afin de reproduire l'influence des masses d'air marines ( $\rho(t)$ ). . . .	190
4.6	Forçage radiatif et efficacité du forçage radiatif des aérosols, intégré sur la journée, en fonction de la saison. . . . .	196
4.7	Taux d'échauffement journalier au niveau de la surface, des différentes composantes atmosphériques, en fonction de la saison. . . . .	198
4.8	Forçage radiatif et efficacité du forçage radiatif des aérosols, intégré sur la journée, en fonction de la saison : cas du modèle de distribution gaussienne.	200
4.9	Comparaison des inversions CALIOP et du lidar sol. . . . .	204
4.10	Moyennes saisonnières (et écarts-types) d'épaisseur optique AERONET (Aerosol Optical Depth) et du modèle NMMB/BSC-Dust (Dust Optical Depth) et de concentration massique au niveau du sol mesurée par le TEOM et estimée par le modèle (données relatives à l'année 2007). . .	210