



**HAL**  
open science

# Rétrodiffusion (UV, VIS) résolue en polarisation de particules d'origine désertique : expériences de laboratoire et en atmosphère réelle par lidar

Tahar Mehri

► **To cite this version:**

Tahar Mehri. Rétrodiffusion (UV, VIS) résolue en polarisation de particules d'origine désertique : expériences de laboratoire et en atmosphère réelle par lidar. Optique [physics.optics]. Université de Lyon, 2018. Français. NNT : 2018LYSE1150 . tel-01944646

**HAL Id: tel-01944646**

**<https://theses.hal.science/tel-01944646>**

Submitted on 4 Dec 2018

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

N° d'ordre NNT :  
2018LYSE1150



**THESE de DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE LYON**  
opérée au sein de  
**l'Université Claude Bernard Lyon 1**

**Ecole Doctorale 52**  
PHYSIQUE ET ASTROPHYSIQUE DE LYON

**Spécialité de doctorat** : Optique  
**Discipline** : Physique  
par :  
**Tahar MEHRI**

---

**Rétrodiffusion (UV, VIS) résolue en polarisation de  
particules d'origine désertique : expériences de  
laboratoire et en atmosphère réelle par lidar**

---

Composition des membres du jury:

**LEON Jean-François**, Chargé de Recherches CNRS, Laboratoire d'Aérodynamique, Université Toulouse 3 UMR 5560, Rapporteur

**SELLEGRI Karine**, Directrice de Recherches CNRS, Laboratoire de Météorologie Physique, Université Clermont-Auvergne UMR 6016, Rapporteur

**PIERANGELO Clémence**, Ingénieure de Recherches, Centre national d'Etudes Spatiales Toulouse, Examinatrice

**RAYBAUT Myriam**, Ingénieure de Recherches, Office National d'Etudes et de Recherches Aérospatiales, Examinatrice

**MIFFRE Alain**, Maître de Conférences, Institut Lumière Matière. Directeur de thèse.

**SAN MIGUEL Alfonso**, Professeur des Universités, Institut Lumière Matière, Université Lyon 1 UMR 5306, Président du Jury.



## UNIVERSITE CLAUDE BERNARD - LYON 1

### Président de l'Université

Président du Conseil Académique

Vice-président du Conseil d'Administration

Vice-président du Conseil Formation et Vie Universitaire

Vice-président de la Commission Recherche

Directrice Générale des Services

### M. le Professeur Frédéric FLEURY

M. le Professeur Hamda BEN HADID

M. le Professeur Didier REVEL

M. le Professeur Philippe CHEVALIER

M. Fabrice VALLÉE

Mme Dominique MARCHAND

### COMPOSANTES SANTE

Faculté de Médecine Lyon Est – Claude Bernard

Faculté de Médecine et de Maïeutique Lyon Sud – Charles Mérieux

Faculté d'Odontologie

Institut des Sciences Pharmaceutiques et Biologiques

Institut des Sciences et Techniques de la Réadaptation

Département de formation et Centre de Recherche en Biologie Humaine

Directeur : M. le Professeur G.RODE

Directeur : Mme la Professeure C. BURILLON

Directeur : M. le Professeur D. BOURGEOIS

Directeur : Mme la Professeure C. VINCIGUERRA

Directeur : M. X. PERROT

Directeur : Mme la Professeure A-M. SCHOTT

### COMPOSANTES ET DEPARTEMENTS DE SCIENCES ET TECHNOLOGIE

Faculté des Sciences et Technologies

Département Biologie

Département Chimie Biochimie

Département GEP

Département Informatique

Département Mathématiques

Département Mécanique

Département Physique

UFR Sciences et Techniques des Activités Physiques et Sportives

Observatoire des Sciences de l'Univers de Lyon

Polytech Lyon

Ecole Supérieure de Chimie Physique Electronique

Institut Universitaire de Technologie de Lyon 1

Ecole Supérieure du Professorat et de l'Éducation

Institut de Science Financière et d'Assurances

Directeur : M. F. DE MARCHI

Directeur : M. le Professeur F. THEVENARD

Directeur : Mme C. FELIX

Directeur : M. Hassan HAMMOURI

Directeur : M. le Professeur S. AKKOUCHE

Directeur : M. le Professeur G. TOMANOV

Directeur : M. le Professeur H. BEN HADID

Directeur : M. le Professeur J-C PLENET

Directeur : M. Y.VANPOULLE

Directeur : M. B. GUIDERDONI

Directeur : M. le Professeur E.PERRIN

Directeur : M. G. PIGNAULT

Directeur : M. le Professeur C. VITON

Directeur : M. le Professeur A. MOUGNIOTTE

Directeur : M. N. LEBOISNE



## Remerciements

C'est un grand plaisir pour moi que de rédiger ces quelques lignes me permettant de remercier toutes les personnes ayant soutenu et apprécié mon travail de thèse.

En premier lieu, je tiens à remercier l'ensemble des membres du jury d'avoir accepté d'expertiser ce travail de thèse. Je remercie ainsi la Dr. K. Sellegri, Directrice de Recherches au CNRS, du Laboratoire de Météorologie Physique de Clermont et le Dr. J-F Léon, Chargé de Recherches au CNRS, du Laboratoire d'Aérodynamique de Toulouse d'avoir accepté de rapporter ce travail de thèse. Leurs remarques constructives ont été enrichissantes et m'ont permis d'améliorer ce document. Je remercie également le Dr. C. Pierangelo, Ingénieure au CNES et la Dr. M. Raybaut, Ingénieure à l'ONERA pour le temps passé à examiner ces travaux de thèse et pour leurs remarques constructives. Je remercie enfin le Prof. A. San Miguel, Professeur à l'Université de Lyon et à l'Institut Lumière Matière, de m'avoir fait l'honneur d'accepter de présider ce jury.

La réalisation de ce travail s'est également appuyée sur un environnement qui a été essentiel à sa réussite. A ce titre, je voudrais remercier la Direction de l'Institut Lumière Matière pour m'avoir accueilli comme doctorant au sein de l'Institut. Je remercie chaleureusement l'équipe Optique, Environnement et Télédétection ET, et tout particulièrement son directeur d'équipe, le Professeur P. Rairoux, pour m'avoir accueilli dans son équipe et aidé au cours de ces trois années de thèse.

Je tiens surtout à remercier le Dr. Alain Miffre qui a dirigé cette thèse, pour ses précieux conseils, son soutien et sa disponibilité. A. Miffre a également beaucoup œuvré pour la mise en valeur de ce travail de thèse. J'ai beaucoup appris à ses côtés et je lui adresse toute ma reconnaissance.

Je voudrais également remercier tous mes collègues et amis de l'Université Claude Bernard. Je garderai un bon souvenir de nos discussions animées au cours de repas ensoleillés.

Mes plus profonds remerciements vont à ma famille et en particulier à ma tante qui tout au long de ma vie m'a toujours soutenu, encouragé et aidé. Qu'ils trouvent, dans la réalisation de ce travail, une part de l'aboutissement de leurs efforts et l'expression de ma plus affectueuse gratitude.



## Résumé de thèse

Ce travail de thèse, réalisé à l'Institut Lumière Matière, traite de la rétrodiffusion optique des particules de l'atmosphère d'origine désertique, dont l'impact sur le bilan radiatif terrestre reste à quantifier, en raison de leur grande diversité de taille, de forme et de composition chimique. La thèse repose essentiellement sur un polarimètre de laboratoire (UV, VIS) adressant la géométrie de rétrodiffusion avec précision ( $180.0 \pm 0.2^\circ$ ). Le rapport des éléments de la matrice de rétrodiffusion a ainsi été évalué avec précision ( $< 2\%$ ) et la réponse spectrale (UV, VIS) de ce rapport a ainsi pu être étudiée, ce qui a permis de discuter de l'applicabilité du modèle mathématique des sphéroïdes, décrit par le code T-matrix, pour décrire la rétrodiffusion optique de ces particules dans la géométrie d'exacte rétrodiffusion, comme publié dans JQSRT en 2016. Puis, l'application de ce Pi-Polarimètre dans un instrument lidar a permis d'évaluer la concentration en masse des particules désertiques dans la troposphère libre de Lyon fréquemment affectée par le transport à longue distance de ce type de particules. Cette évaluation a été réalisée pour différents modèles de forme (sphéroïdes, particules de surface lisse, rugueuse) obtenus par simulation numérique en coopération avec l'équipe de T. Nousiainen (Finlande). Un résultat majeur est que la concentration en masse peut différer de 30 % selon le modèle de forme choisi, comme publié dans Atmospheric Research en 2018. Enfin, la sensibilité et la précision du Pi-Polarimètre (UV, VIS) ont été utilisées pour révéler les principales caractéristiques optiques du processus photo-catalytique de nucléation en présence de particules désertiques via des observations des conséquences de ce processus, réalisées sur une durée de deux années.





## Thesis abstract

This thesis work, carried out at the Institute of Light and Matter (ILM), deals with the optical backscattering of atmospheric particles of desert origin, whose impact on the terrestrial radiative budget remains to be quantified, due to their great diversity of size, shape and chemical composition. The thesis is essentially based on a laboratory polarimeter (UV, VIS) addressing the backscattering geometry with accuracy ( $180.0 \pm 0.2^\circ$ ). The report of the backscattering matrix elements was thus accurately evaluated ( $< 2\%$ ) and the spectral response (UV, VIS) of this report was thus studied, which made it possible to discuss the applicability of the spheroidal mathematical model, described by the T-matrix numerical code, to describe the optical backscattering of these particles in the exact backscattering geometry, as published in JQSRT in 2016. Then, application of this Pi-Polarimeter in a lidar instrument has allowed to evaluate the mass concentration of desert dust particles, in the Lyon free troposphere, frequently affected by long-range transport of such particles. This evaluation was carried out for different shape models (spheroids, smooth particles, rough particles) obtained by numerical simulation in cooperation with T. Nousiainen's group (Finland). A major result is that the mass concentration may differ by 30 % depending on the chosen dust shape model, as published in Atmospheric Research in 2018. Finally, the sensitivity and accuracy of the Pi-Polarimeter (UV, VIS) have been used to reveal the main optical characteristics of the photo-catalytic process of nucleation in the presence of desert dust particles via systematic observations of the consequences of this process, carried out over a two years period.



## Table des matières

<b>Chapitre 1 Introduction.....</b>	<b>15</b>
1.1 Contexte scientifique.....	15
1.2 Complexité des aérosols atmosphériques.....	17
1.2.1 Propriétés chimiques des aérosols atmosphériques.....	18
1.2.2 Propriétés microphysiques des aérosols atmosphériques.....	19
1.3 Propriétés optiques de diffusion de l'aérosol atmosphérique.....	22
1.3.1 Diffusion élastique du rayonnement électromagnétique.....	23
1.4 Questionnement de la thèse.....	24
1.5 Plan de la thèse.....	26
1.6 Méthodologie.....	28
1.6.1 Hypothèses de travail.....	28
1.6.2 Formalisme de la matrice de diffusion.....	29
1.6.3 Rétrodiffusion optique et instrument lidar.....	31
<b>Chapitre 2 Rétrodiffusion en laboratoire de particules d'origine désertiques : Pi-Polarimètre (UV, VIS).....</b>	<b>37</b>
2.1 Eléments de bibliographie.....	38
2.1.1 De l'intérêt d'une mesure de polarimétrie en rétrodiffusion exacte.....	38
2.1.2 Etat de l'art sur les mesures en laboratoire des aérosols atmosphériques.....	39
2.1.3 Mesure en laboratoire en exacte rétrodiffusion.....	41
2.2 Méthodologie : Pi-polarimètre (UV, VIS) de laboratoire.....	42
2.2.1 Pi-polarimètre de laboratoire.....	42
2.2.2 Evaluation du rapport $F_{22,p}/F_{11,p}$ .....	44
2.2.3 Précision et sensibilité du Pi-polarimètre (UV, VIS).....	47
2.2.4 Validation du montage expérimental.....	50
2.3 Résultats expérimentaux avec le Pi-polarimètre (UV, VIS).....	51
2.3.1 Composition chimique et distribution de taille des particules désertiques générées...51	
2.3.2 Rétrodiffusion dans l'UV-VIS d'un ensemble de particules d'ATD.....	55
2.4 Discussion sur l'applicabilité du modèle des sphéroïdes.....	57
2.5 Implications atmosphériques.....	60
2.6 Conclusion.....	61

## **Chapitre 3 Rétrodiffusion lidar (UV, VIS) résolu en polarisation dans la troposphère libre de Lyon : application à l'évaluation de la concentration en masse..... 65**

3.1	Position du problème et éléments de bibliographie.....	67
3.1.1	Algorithmes de partitionnement de la rétrodiffusion optique.....	69
3.1.2	Paramètres d'entrée pour le partitionnement optique.....	70
3.2	Lidar (UV, VIS) résolu en polarisation construit à l'ILM.....	72
3.2.1	Montage expérimental.....	72
3.2.2	Sensibilité et précision du polarimètre (UV, VIS).....	74
3.2.3	Coefficients de rétrodiffusion lidar.....	76
3.2.4	Evaluation de la concentration massique à partir de la mesure lidar.....	77
3.3	Méthodologie pour évaluer $\beta_d$ : partitionnement optique.....	78
3.3.1	Partitionnement optique.....	78
3.3.2	Partitionnement optique d'un mélange externe à deux composants.....	80
3.3.3	Partitionnement optique d'un mélange externe à trois composants.....	82
3.4	Evaluation des paramètres d'entrée : Simulations numériques.....	84
3.4.1	Distributions de taille et de forme envisagées.....	84
3.4.2	Paramètres d'entrée en fonction du paramètre de taille.....	87
3.4.3	Paramètres d'entrée intégrés sur la distribution de taille.....	89
3.4.4	Effets de la rugosité.....	92
3.4.5	Conclusions.....	94
3.5	Etudes de cas dans la troposphère libre de Lyon (France).....	95
3.5.1	Cas d'un mélange externe à deux composantes.....	96
3.5.2	Extensions au cas d'un mélange externe à trois composantes.....	99
3.6	Conclusion.....	102

## **Chapitre 4 Observation lidar d'événements de nucléation en présence de particules désertiques..... 107**

4.1	Eléments de bibliographie sur le processus de nucléation.....	108
4.1.1	Etude du processus de nucléation étudié en laboratoire.....	109
4.1.2	Observations du processus de nucléation en atmosphère réelle.....	111
4.2	Simulation numérique de la rétrodiffusion optique lors d'un événement dust-NPF.....	113
4.2.1	Coefficients de rétrodiffusion associé à un dust-NPF event.....	114
4.2.2	Coefficients de rétrodiffusion associés à plusieurs événements.....	117
4.2.3	Exposant d'Angstrom de rétrodiffusion des particules nucléées.....	120

4.3	Observation de la formation de nouvelles particules en présence de particules désertiques	126
4.3.1	Méthodologie optique pour la télédétection lidar de la nucléation.....	126
4.3.2	Etude de cas : le 2 juillet 2015.....	127
4.3.3	Observations systématiques lors de la présence de particules désertiques dans la troposphère de Lyon entre 2015 et 2017.....	137
4.4	Conclusion.....	139
	<b>Chapitre 5 Conclusion et perspectives.....</b>	<b>143</b>
	<b>Bibliographie.....</b>	<b>149</b>



# Chapitre 1

## Introduction

Cette thèse est dédiée à l'étude de la rétrodiffusion optique de la lumière laser par l'aérosol atmosphérique, défini comme un ensemble de particules, solides ou liquides, en suspension dans l'air. Le principal objectif de ce travail est de tirer parti de l'observation sensible et précise de la rétrodiffusion de la lumière, résolue en polarisation, par ces particules, pour étudier les propriétés microphysiques de taille et de forme de ces particules.

### 1.1 Contexte scientifique

L'aérosol atmosphérique présente un large éventail de tailles, de formes et de compositions chimiques. Cette diversité dépend des différents processus naturels et anthropiques avec lesquels ces particules se retrouvent dans l'atmosphère. Cette diversité va également engendrer une forte variabilité temporelle et dans l'espace. Les particules atmosphériques sont généralement classées en particules primaires lorsqu'elles sont directement émises par une source (particules désertiques, cendres volcaniques, suie, sel marin etc.) et en aérosols secondaires lorsqu'elles sont formées par conversion de gaz précurseurs en particules. Le Groupe Intergouvernemental d'Experts sur l'évolution du Climat (GIEC), qui rassemble les spécialistes mondiaux du domaine, a montré que la plupart des particules atmosphériques dans le monde sont émises par des sources naturelles. Les particules d'origine désertique, provenant des régions arides, sont les secondes après les aérosols marins en termes d'émissions (IPCC report, 2013<sup>76</sup>), avec des émissions annuelles estimées entre 1 000 et 3 000 Tg par an.

L'impact de l'aérosol atmosphérique sur la santé publique est largement documenté dans la littérature épidémiologique (Pope et Dockery, 2006<sup>176</sup>, Pope et al., 2013<sup>177</sup>). La fraction fine de ces particules (généralement identifiée dans la gamme de taille  $\leq 2,5 \mu\text{m}$ , notée usuellement  $\text{PM}_{2,5}$ ) a longtemps été considérée comme la principale responsable des effets néfastes sur la santé car elle peut facilement atteindre le système respiratoire inférieur et influencer le système circulatoire (Pope et Dockery, 2006<sup>176</sup>). Par exemple, 66 000 décès par an aux États-Unis sont dus aux particules atmosphériques (Punger et West, 2013<sup>180</sup>). Au niveau mondial, on estime que les particules fines sont responsables de 3,3 millions de décès prématurés par an (Lelieveld, 2015<sup>110</sup>). De plus, les aérosols sont associés aux maladies respiratoires (Katanoda et al., 2011<sup>89</sup>). En effet, lorsque les aérosols sont inhalés, les aérosols de taille supérieure à cinq micromètres se déposent principalement dans le nez, le pharynx, le larynx et la trachée, tandis que les aérosols de taille inférieure à cinq micromètres se déposent dans les bronchioles et les alvéoles (Dockery et Pope, 1994<sup>45</sup>). Dockery et Pope



(1994) ont également souligné que l'effet biologique des aérosols est déterminé par leur nature physico-chimique et leur solubilité.

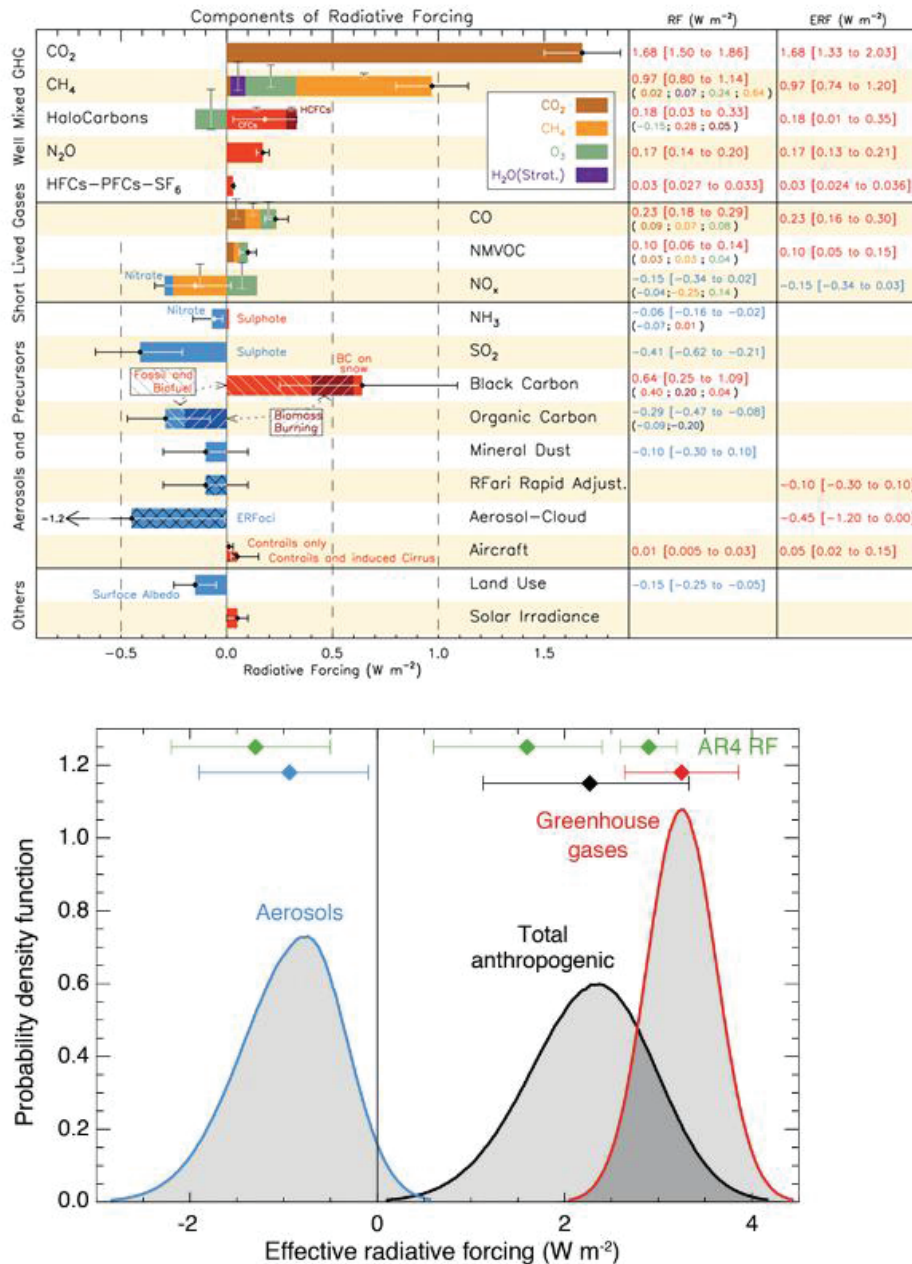


Figure 1.1 Forçage radiatif moyen (RF) des composants de l'atmosphère et des mécanismes discutés dans le rapport du GIEC (IPCC report, 2013<sup>76</sup>), regroupés par type d'agent. La compréhension scientifique pour chaque terme est décrite dans le rapport du GIEC (2013). Figures extraite du rapport du sommaire technique du rapport AR5-WG1 du GIEC (2013).

Les aérosols atmosphériques affectent également le climat: ils participent au bilan radiatif terrestre en modifiant la diffusion optique et l'absorption du rayonnement émis par la Terre et le Soleil, (effet direct) (Haywood et Boucher, 2000<sup>67</sup>) et modifient également la réflexion du rayonnement solaire par modification de la couverture nuageuse (effet indirect) (Twomey, 1977<sup>220</sup>, Ramaswamy et al., 2001<sup>184</sup>). La figure 1.1, tirée du rapport du GIEC (2013), présente le forçage radiatif global (RF, en W.m<sup>-2</sup>) affectant le climat terrestre et quantifie les

contributions de chaque aérosol au bilan radiatif terrestre, en spécifiant les incertitudes. On voit que les aérosols représentent la plus grande source d'incertitude dans l'évaluation du forçage radiatif global. Notamment, on constate que l'on ne sait pas si le forçage radiatif des particules désertiques est positif ou négatif. Quantifier l'impact climatique des aérosols est en effet une tâche très complexe car elle nécessite la détermination précise de nombreux paramètres microphysiques comme la taille ou la forme de ces particules, ou encore leur composition chimique incluant leur hygroscopicité, leurs concentrations, leur état de mélange, ou encore leur distribution spatio-temporelle.

## 1.2 Complexité des aérosols atmosphériques

La figure 1.2 présente des photographies de microscopie électronique des principaux aérosols atmosphériques. On constate que ces particules présentent une grande variabilité de taille, de forme et de composition chimique. En effet, la forme varie de la symétrie sphérique, comme par exemple pour les particules de sulfate d'ammonium, à des formes très complexes comme c'est le cas pour les particules d'origine désertique ou volcanique, voire même fractale pour les agrégats de suie. Chacun de ces aérosols contribue typiquement à environ 10 à 30 % de la charge totale en aérosol (Pöschl, 2005<sup>178</sup>).

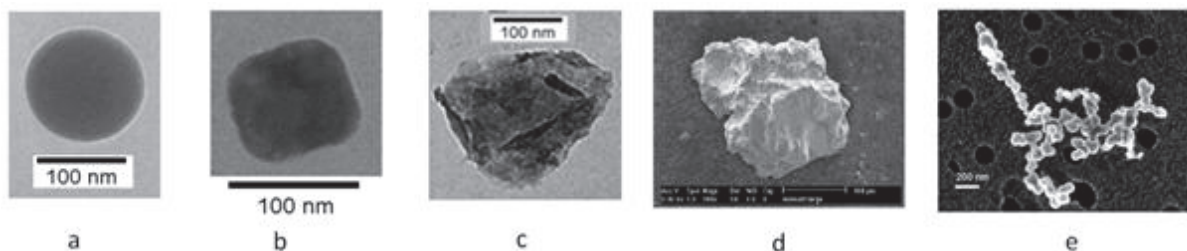


Figure 1.2 Images TEM de laboratoire. a: Particule de sulfate d'ammonium (ILM), b: Particule de sel marin en dessous du point de cristallisation (ILM), c: Particule désertiques (Arizona Test Dust) (ILM), d: Particule de cendres volcaniques (Muñoz et al., 2004), e : Particule de suie (Delmas et al., 2000).

Dans l'atmosphère, les aérosols atmosphériques sont généralement présents sous la forme de mélanges à plusieurs composantes. Comme expliqué dans (Mishchenko et al. 2004b<sup>148</sup>), ces mélanges peuvent être de nature interne (lorsqu'une petite particule est incorporée dans une particule hôte plus grande) ou externe (lorsque les particules sont séparées d'une distance beaucoup plus grande que leur taille). Par ailleurs, durant leur transport par advection depuis les régions sources vers les endroits où des épisodes de pollution aux particules fines surviennent dans les couches atmosphériques, les particules interagissent avec les autres aérosols et les gaz présents dans l'atmosphère et des processus physico-chimiques complexes, tels que la formation de nouvelles particules (NPF pour new particle formation), peuvent se produire. La formation de nouvelles particules dans l'atmosphère est un processus appelé nucléation dont la compréhension est encore incomplète malgré des avancées majeures récentes (Almeida et al., 2013<sup>4</sup>, Kirkby et al., 2011<sup>94</sup>, 2016<sup>90</sup>, Kulmala et al., 2012<sup>102</sup> ; David et al., 2014<sup>35</sup>, Dupart et al., 2012<sup>50</sup>, Dunne et al., 2016<sup>49</sup>, Kyrö et al.,

2013<sup>105</sup>, Riccobono et al., 2014<sup>191</sup> ; Rose et al. 2015b<sup>195</sup>). La recherche sur la formation de nouvelles particules in situ implique des expériences en laboratoire et des observations atmosphériques (O'Dowd et al., 2002<sup>168</sup>, Kirkby et al., 2011<sup>94</sup>, 2016<sup>90</sup>, Boulon et al., 2010<sup>16</sup>, 2011<sup>17</sup>, Kulmala et al., 2012<sup>102</sup>, Dupart et al., 2012<sup>50</sup>, Kyrö et al., 2013<sup>105</sup>, Rose et al., 2015a<sup>183</sup>, 2015b<sup>195</sup>). Des expériences en laboratoire, réalisées dans des chambres atmosphériques, ont mis au point les processus fondamentaux de nucléation impliquant principalement l'acide sulfurique (Kirkby et al., 2011<sup>94</sup>) et ont également montré la possibilité de NPF (new particle formation en anglais) en présence d'ions et d'agrégats neutres (Kirkby et al., 2016<sup>95</sup>). De plus, des expériences sur le terrain ont montré que la NPF peut être observée partout dans l'atmosphère (Kulmala et al., 2012<sup>102</sup>, Kyrö et al., 2013<sup>105</sup>), comme dans la couche limite planétaire (PBL) (Wehner et al., 2010<sup>239</sup>) ou dans la troposphère libre (Bianchi et al. 2016<sup>13</sup>, Boulon et al., 2011<sup>17</sup>, Rose et al. 2015b<sup>195</sup>, Dupart et al., 2012<sup>50</sup>, David et al., 2014<sup>35</sup>). Ce processus sera étudié plus en détail au Chapitre 4. Les propriétés de taille et de forme des particules désertiques peuvent également changer en raison de processus tels que sédimentation ou encore le mélange et les interactions avec d'autres particules (Zhang, 2008<sup>256</sup>). Après un transport sur de longues distances, ces particules sont donc très dispersées et peuvent présenter des tailles ou des formes qui sont à priori très différentes de celles observées proches de la région source. L'une des conséquences typiques est l'apparition d'une stratification verticale d'une grande complexité, généralement observée dans la basse troposphère sur des sites éloignés des régions d'émission. En raison de cette complexité, de nouvelles méthodologies et techniques de mesure doivent être développées pour traiter spécifiquement chaque composant de particules dans les mélanges de particules.

Ainsi, quantifier l'effet des particules atmosphériques sur le climat terrestre et la santé publique nécessite de caractériser très précisément non seulement les particules atmosphériques dans leur complexité de taille et de forme, mais aussi les processus physico-chimiques conduisant à leur formation et à leur vieillissement, ce qui est très ambitieux. Dans cette section, nous présentons quelques aspects des propriétés chimiques et microphysiques des particules atmosphériques de manière à souligner la complexité des aérosols atmosphériques.

### **1.2.1 Propriétés chimiques des aérosols atmosphériques**

Les aérosols atmosphériques sont majoritairement composés de sulfate, nitrate d'ammonium, de sel de mer, de particules désertiques, de composés organiques. Les particules atmosphériques peuvent également présenter des propriétés hygroscopiques (Hess et al., 1998<sup>69</sup>) traduisant leur affinité avec l'eau. Les particules solubles dans l'eau comprennent notamment les particules de sulfate (par exemple  $\text{H}_2\text{SO}_4$ ) et de nitrate (par exemple  $\text{NH}_4\text{NO}_3$ ) tandis que les particules de suie sont quasi insolubles dans l'eau. Aussi, leurs indices de réfractions sont très variables, reflétant la grande variabilité des sources et des inclusions possibles d'autres éléments chimiques au sein d'une particule, par exemple l'inclusion de trace de métaux au sein des particules désertiques peut induire une

augmentation de la partie réelle de leur indice de réfraction (que l'on peut confondre en première approximation avec celui de la silice) (Di Biagio et al. 2014<sup>41</sup>). Les particules désertiques fournissent des surfaces significatives pour la réaction hétérogène avec des gaz atmosphériques tels que  $\text{SO}_2$ ,  $\text{O}_3$ ,  $\text{NO}_x$ ,  $\text{H}_2\text{O}_2$  et les hydrocarbures. Les particules minérales en suspension dans l'air ont la capacité photo-catalytique de promouvoir de manière hétérogène l'oxydation des gaz atmosphériques. Des travaux récents montrent que des particules présentant des propriétés semi-conductrices comme les particules désertiques contenant des oxydes de fer (Hématite  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) pourraient offrir une nouvelle voie pour expliquer la formation de  $\text{H}_2\text{SO}_4$  en phase gazeuse (Dupart et al., 2012<sup>50</sup>). En effet, comme schématisé sur la figure 1.3, en présence de lumière UV, les composés chimiques comme  $\text{TiO}_2$  et  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , présents dans les particules d'origine désertique, accélèrent l'absorption de gaz à la surface des particules désertiques, générant la formation de paires électron-trou, conduisant à la formation de radicaux OH et ainsi catalysent la formation d'acide sulfurique in situ et donc la formation de nouvelles particules.

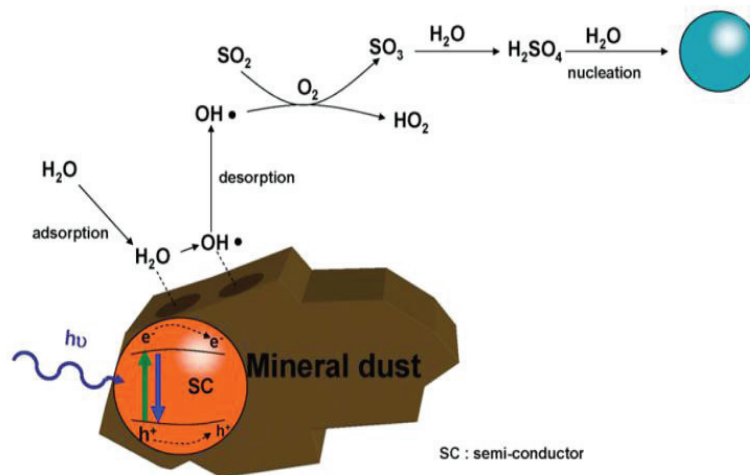


Figure 1.3 Schématisation du mécanisme de réaction conduisant à la formation de nouvelles particules, tiré de (Dupart et al., 2012<sup>50</sup>). Sous irradiation UV, les composants semi-conducteurs (SC) des particules désertiques produisent des radicaux OH qui peuvent désorber et réagir avec le  $\text{SO}_2$  à proximité de la surface. L'acide sulfurique produit peut alors déclencher des événements de nucléation.

## 1.2.2 Propriétés microphysiques des aérosols atmosphériques

Parmi les principales incertitudes dans la modélisation du changement climatique, le manque de connaissances sur la taille et la forme des particules atmosphériques est un point essentiel. Dans l'atmosphère, des particules de différentes tailles, formes et indices de réfraction sont rencontrés et nous supposons au cours de cette thèse que ces distributions sont statistiquement indépendantes.

### (a) Distribution de taille des aérosols atmosphériques

La taille des particules est une donnée très importante, avec des contributions au climat qui diffèrent en fonction de la gamme de taille des particules (Seinfeld et Pandis, 2006<sup>206</sup>). La taille des particules atmosphériques varie de plus de quatre ordres de grandeur entre moins

de 1 nm et 100  $\mu\text{m}$ . Comme les particules ne sont jamais parfaitement monodispersées, la distribution de la taille des particules (SD, de l'anglais size distribution) est utilisée pour caractériser la taille des particules atmosphériques.

La figure 1.4 présente un schéma d'une distribution de taille des aérosols atmosphériques extrait de (Seinfeld et Pandis, 2006<sup>206</sup>). La SD présente trois modes principaux: le mode des particules ultrafines (autour de  $r = 10$  nm), le mode des particules fines ou mode d'accumulation (autour de  $r = 150$  nm) et le mode des particules de taille plus importante (coarse mode, autour de  $r = 5$   $\mu\text{m}$ ). La concentration la plus élevée est trouvée pour les particules fines, ce qui souligne la grande importance des particules ayant un rayon de l'ordre de la centaine de nanomètres. Les particules ultrafines sont également présentes en forte concentration.

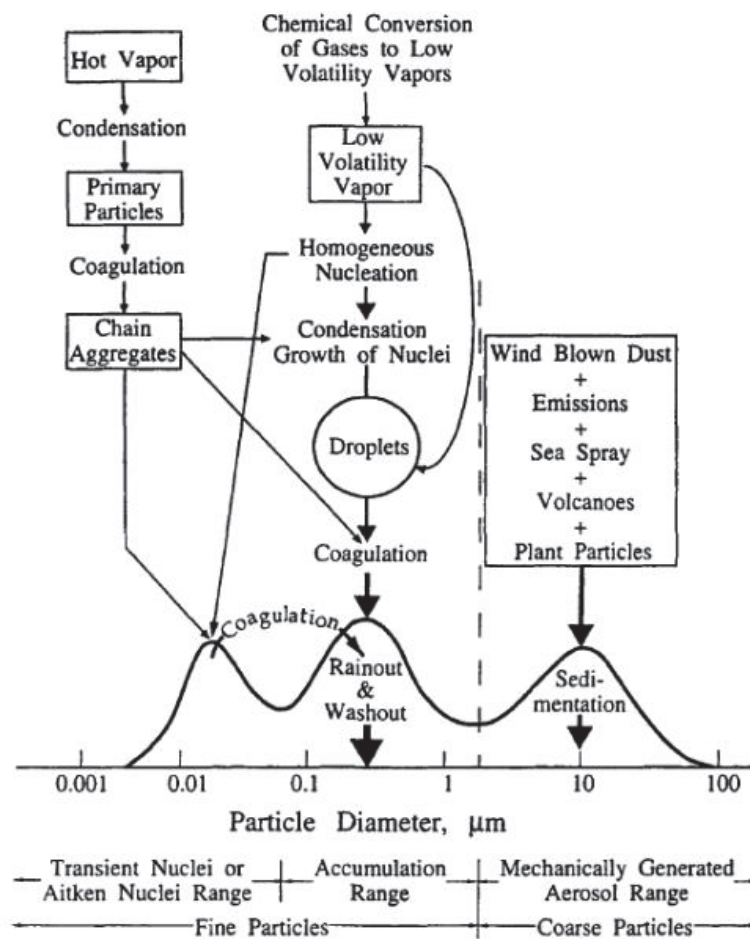


Figure 1.4 Schéma idéalisé de la distribution de taille d'un aérosol atmosphérique (Whitby et Cantrell, 1976). Les modes principaux, les sources et le mécanisme de formation et d'élimination des particules sont indiqués. Figure extraite de (Seinfeld et Pandis, 2006<sup>206</sup>).

La figure 1.4 présente notamment les différents processus auxquels sont soumis les aérosols atmosphériques au cours de leur transport dans l'atmosphère et selon leur gamme de taille. On constate que les particules les plus petites (qui peuvent être formées à partir de gaz précurseurs par nucléation) vont avoir tendance à gagner en volume par la voie de processus

physico-chimiques tel que la condensation et la coagulation alors que les plus grosses particules (diamètres supérieur à 1  $\mu\text{m}$ ) vont avoir tendance à quitter les couches atmosphériques par sédimentation. Chaque mode de la distribution de la taille des particules est décrite mathématiquement par une distribution log-normale:

$$\frac{dN_p}{dr} = \sum_{i=1}^3 \frac{N_{p,i}}{\sqrt{2\pi r \ln \sigma_{p,i}}} \exp\left(-\frac{1}{2} \left[\frac{\ln r - \ln r_{p,i}}{\ln \sigma_{p,i}}\right]^2\right) \quad (1.1)$$

Où  $r$  est le rayon des particules,  $\sigma_{p,i}$  la déviation standard géométrique associée au mode  $i$ ,  $r_{p,i}$  et  $N_{p,i}$  sont respectivement le rayon médian du nombre et la concentration en nombre (en  $\#.\text{cm}^{-3}$ ) au rayon  $r$ , pour le mode  $i$ . Lorsque les particules sont non sphériques, on définira leur rayon comme le rayon de la sphère qui aurait la même surface ou le même volume que l'aérosol non sphérique considérée. De plus, comme le montre la figure 1.5 tirée de (Williams et al., 2002<sup>247</sup>), la taille influe notamment sur la durée de vie de l'aérosol atmosphérique, qui peut varier de quelques minutes à quelques jours ou semaines. Ainsi, selon leur taille et selon les processus physico-chimiques qu'elles connaissent, les particules atmosphériques auront un temps de résidence dans l'atmosphère plus ou moins long. On constate ainsi que les particules de diamètres inférieurs à 1  $\mu\text{m}$  ont la plus longue durée de vie dans l'atmosphère. Ainsi, certaines particules atmosphériques peuvent rester dans la troposphère pendant plusieurs semaines (Robock, 2000<sup>192</sup>; Overnevaide et al., 2009<sup>169</sup>), ce qui renforce encore leur impact radiatif.

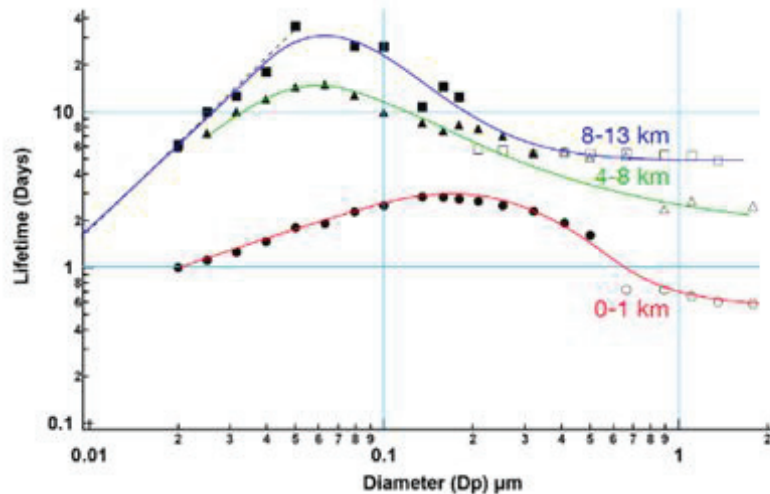


Figure 1.5 Durée de vie des particules en fonction de la taille dans la région de l'océan indien en février 1999, estimée en fixant la durée de vie des particules de 20 nm à la durée de vie de la coagulation modélisée. Extrait de (Williams et al., 2002<sup>247</sup>)

### (b) Forme des aérosols atmosphériques

Comme le montre la figure 1.2, la forme des aérosols atmosphériques est très complexe à décrire car elle est très souvent irrégulière et ne peut être facilement décrite par un modèle mathématique. Les raisons des incertitudes liées à l'impact des aérosols sur le rayonnement

sont nombreuses, mais en plus des variations de taille et de concentration des particules, la forme des particules, y compris sa rugosité de surface, peut jouer un rôle (Kemppinen et al., 2015<sup>92</sup>). Il est notamment connu que de nombreux aérosols contiennent des matériaux présentant des propriétés diélectriques, par exemple les particules désertiques qui peuvent contenir des oxydes de fer ou des pores internes. En outre, il a été montré (Nousiainen et al., 2011<sup>165</sup>) que l'inhomogénéité peut affecter significativement la diffusion de la lumière par les particules et que la diffusion par de telles particules n'est pas facilement imitée par des ensembles de particules modèles homogènes de forme mathématique simplifiée. La microscopie à force atomique (Woodward et al., 2015<sup>250</sup>) ainsi que la stéréogrammétrie à partir d'images de microscopie électronique (Lindqvist et al., 2014<sup>115</sup>) a permis d'adresser la forme tridimensionnelle des aérosols atmosphériques, à partir d'échantillons de particules existants. L'influence de la forme et de la présence de ces structures internes sur la diffusion a à peine été abordée, car il est très difficile de mesurer la diffusion de la lumière par ces particules de forme complexe. Le lien entre les propriétés optiques de diffusion et la forme de ces particules reste à établir. Des simulations numériques ont ainsi été développées afin d'étudier les propriétés intrinsèques de particules présentant des symétries non sphériques (Mishchenko et al. 1998<sup>143</sup>, Nousiainen 2009<sup>163</sup>, Yurkin et Hoekstra 2011<sup>254</sup>). Notons également que la rugosité de surface seule peut déjà induire une modification du forçage radiatif induit par les aérosols atmosphériques (Hioki et al., 2016<sup>70</sup>). Nous discuterons de la forme des aérosols atmosphériques tout au long de la thèse et notamment aux chapitres 2 et 3.

### **1.3 Propriétés optiques de diffusion de l'aérosol atmosphérique**

D'après la figure 1.1, la contribution au bilan radiatif des aérosols atmosphériques reste à quantifier, en raison de la grande diversité de taille et de forme de ces particules. Ainsi, pour répondre à l'enjeu représenté par le bilan radiatif, il est nécessaire de comprendre la manière dont les aérosols interagissent avec le rayonnement électromagnétique. Durant ma thèse, j'ai étudié la sensibilité du rayonnement électromagnétique aux propriétés de taille et de forme de l'aérosol atmosphérique d'origine désertique. L'interaction entre le rayonnement et la matière met en jeu des énergies de quelques électrons-volts, inférieures aux seuils d'ionisation qui modifieraient intrinsèquement l'aérosol et donc ses propriétés de taille et de forme. Enfin, il existe des détecteurs optiques très sensibles, pouvant même aller jusqu'au comptage photonique si nécessaire. Dans ce contexte, les propriétés optiques des aérosols doivent être déterminées avec précision et ce en fonction de la longueur d'onde du rayonnement électromagnétique et des conditions de température, de pression et d'humidité.

### 1.3.1 Diffusion élastique du rayonnement électromagnétique

Nous rappelons ici les processus d'interaction entre une onde électromagnétique et les particules de l'atmosphère à partir des références bibliographiques suivantes (Bohren and Huffman, 1983<sup>14</sup>, Shurcliff, 1992<sup>210</sup>, Mishchenko, Hovenier et Travis, 2000<sup>145</sup>) sur lesquelles je me suis basé pour rédiger ce paragraphe.

Lorsqu'une onde électromagnétique de longueur d'onde  $\lambda$  interagit avec un ensemble de particules, solides ou liquides, en suspension dans l'air ambiant (aérosol atmosphérique), des processus de diffusion et d'absorption de l'onde incidente se produisent, conduisant à l'extinction de l'onde électromagnétique par la matière. L'absorption est la conversion d'une partie de l'énergie de l'onde électromagnétique traversant la matière en d'autres formes d'énergie telle que la chaleur. Lors de la diffusion, une partie de l'énergie de l'onde électromagnétique est diffusée dans toutes les directions. La diffusion peut être élastique ( $\lambda_i = \lambda_{sca}$ ) ou inélastique ( $\lambda_i \neq \lambda_{sca}$ ), les indices  $i$  et  $sca$  se référant à l'onde incidente ou diffusée (de l'anglais scattering). Un exemple de processus inélastique est la fluorescence induite par laser qui est une méthodologie qui a permis d'accéder à la composition chimique des aérosols (Mejean et al., 2004<sup>129</sup>). La figure 1.6 schématise le processus de diffusion qui peut être modélisé par la théorie de Lorentz-Mie, lorsque les particules sont sphériques. Les propriétés optiques de l'onde diffusée dépendent de l'angle de diffusion  $\theta$  entre le vecteur d'onde incident  $k_{inc}$  et le vecteur d'onde diffusée  $k_{sca}$ . Lorsque  $k_{inc} = -k_{sca}$  (angle de diffusion  $\theta = \pi$ ), on parle de rétrodiffusion optique.

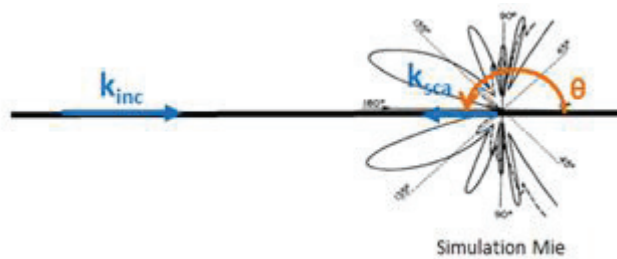


Figure 1.6 Exemple de fonction de phase associée à la diffusion de la lumière obtenue par la simulation numérique en appliquant la théorie de Lorenz-Mie (Mie, 1908<sup>132</sup>). La géométrie de diffusion est définie par l'angle de diffusion, entre les vecteurs d'onde incident et diffusé ( $sca$ , de l'anglais scattering).

Dans ma thèse, je noterai  $C_{ext,p}$ ,  $C_{sca,p}$  et  $C_{abs,p}$  les sections efficaces d'extinction, de diffusion et d'absorption de la lumière par l'ensemble de particules considéré, selon la notation habituelle employée par MI Mishchenko. Ces sections efficaces dépendent des propriétés microphysiques des particules étudiées, de l'angle de diffusion, de la longueur d'onde et de la polarisation de la lumière incidente. Par définition, on a :

$$\frac{I_{sca}}{I_0} = \frac{1}{r^2} \frac{dC_{sca}}{d\Omega} \quad (1.2)$$



Lorsque les particules sont sphériques, la diffusion est décrite dans le cadre de la théorie de Lorenz-Mie (Mie, 1908<sup>132</sup>) qui fournit une solution analytique aux équations de Maxwell. Toutefois, cette théorie n'est pas adaptée à des particules non sphériques diffusant et absorbant la lumière différemment des sphères de volume équivalent (Kahnert et al., 2005<sup>81</sup>, Mishchenko et al., 2000<sup>144</sup>). En particulier, la moyenne d'orientation sur un ensemble de particules non sphériques ne conduit pas au même schéma de diffusion que pour les sphères (Nousiainen et al., 2009<sup>165</sup>). Par conséquent, les particules non sphériques sont difficiles à traiter puisqu'aucune solution analytique aux équations de Maxwell n'est disponible. De plus, les particules atmosphériques peuvent présenter des surfaces rugueuses ce qui complexifie encore leur caractérisation optique (Kemppinen et al., 2015<sup>92</sup>). En outre, la composition chimique des particules atmosphériques influe sur leurs propriétés physiques telles que la diffusion ou l'absorption (Li et al., 2001<sup>113</sup>, Randriamiarisoa et al., 2006<sup>185</sup>). Aussi, il existe un lien étroit entre la composition chimique et les propriétés optiques puisque l'indice de réfraction  $m$  a une influence sur les processus de diffusion et d'absorption de la lumière (Mishchenko et al., 2002<sup>146</sup>). Enfin, plusieurs composants chimiques sont souvent mélangés dans l'atmosphère et les propriétés optiques des particules correspondantes, telles que la section efficace d'extinction, peuvent fortement varier en fonction de l'état de mélange de ces particules (Lesins et al., 2002<sup>112</sup>). Un formalisme a toutefois été introduit pour faire face à cette complexité, celui de la matrice de diffusion, dont j'ai tiré parti tout au long de ma thèse. Ce formalisme sera introduit au paragraphe 1.6 consacré à la méthodologie.

## 1.4 Questionnement de la thèse

Les particules issues de l'érosion des régions désertiques de la planète et de la resuspension des sables de ces régions (que je nommerai « particules d'origine désertique » ou plus simplement « particules désertiques ») sont particulièrement intéressantes à étudier car elles jouent un rôle important dans de nombreux processus physico-chimiques marins et terrestres. Les particules désertiques sont source de nutriments importants pour le développement de certains écosystèmes parfois très éloignés de leurs régions sources. Elles contribuent au cycle global du carbone en fertilisant les écosystèmes pauvres en nutriments comme la surface de certains océans et la forêt Amazonienne (Bristow et al., 2010<sup>19</sup>). Ainsi, les déserts sont les sources naturelles d'engrais qui permettent à la Terre d'être fertile.

Les particules désertiques représentent globalement la plus grande quantité de matière en suspension dans l'atmosphère terrestre. Elles font partie des aérosols les plus présents dans l'atmosphère terrestre avec des émissions annuelles estimées entre 1 000 et 3 000 Tg. Les principales sources de particules désertiques sont situées dans les régions arides de la planète, et le Sahara et la péninsule arabique ont été identifiés comme deux des principales régions d'émission dans le monde (Prospero et al., 2002<sup>179</sup>). Le bassin méditerranéen est ainsi particulièrement affecté par ces épisodes de particules désertiques de par sa proximité avec le Sahara au Sud et la péninsule arabique à l'Est. La concentration des particules d'origine désertique peut être si élevée durant les tempêtes issues du Sahara qu'elle affecte

la qualité de l'air et pose des problèmes de santé publique. Comme le montre la figure 1.7 montrant l'étendue d'une tempête de sable du Sahara et de sa dispersion, une bonne partie de l'Europe est ainsi affectée. Les particules désertiques sont donc un constituant atmosphérique important.

Comme nous l'avons vu, les particules désertiques présentent un large éventail de tailles, de formes (Nousiainen, 2009<sup>163</sup>) et de compositions chimiques (Dupart et al., 2012<sup>50</sup>, Kandler et al., 2011<sup>87</sup>). Ces particules présentent une morphologie complexe (Nousiainen, 2009<sup>163</sup>), qui est souvent irrégulière, avec parfois des aspérités très marquées, comme on peut le voir par microscopie électronique sur la figure 1.1. De même, la surface des particules désertiques peut être très irrégulière et rugueuse (Jarvinen et al., 2016<sup>78</sup>, Kahnert et al., 2014<sup>85</sup>), ce qui peut induire des variations importantes du forçage radiatif (Zhang et al., 2013<sup>257</sup>). En outre, ces particules agissent comme noyaux de condensation, influençant de manière non négligeable le bilan radiatif de la Terre et contribuant au cycle global de l'eau de par l'étendue des transports de cette matière dans l'atmosphère. Modifier ces cycles par le changement climatique d'origine anthropique peut être à terme un désastre. Pouvoir évaluer l'ampleur de ces effets est une urgence et cela ne fait que quelques décennies seulement que la communauté scientifique s'attache à cette tâche (GIEC).



Figure 1.7 Advection des particules d'origine désertique depuis le Sahara jusqu'en Europe. Image obtenue par le satellite MODIS, le 11 juillet 2010.

Le contexte scientifique de la figure 1.1 permet ainsi de fixer le cadre de cette thèse. Les incertitudes liées au forçage radiatif induit par les aérosols désertiques ( $-0.10 \pm 0.20 \text{ W.m}^{-2}$ ) proviennent de la complexité de cet aérosol qui présente une large gamme de taille, de forme et de composition chimique. Dans cette thèse, nous étudions la

rétrodiffusion optique des particules d'origine désertique dans le but de répondre aux trois questions suivantes :

- La non-sphéricité (et plus largement la forme très irrégulière) des particules désertiques induit l'absence de solution analytique aux équations de Maxwell pour le processus de diffusion optique (Van de Hulst 1953<sup>223</sup>, Mishchenko Hovenier et Travis 2000<sup>145</sup>). Dans ce contexte, une question importante se rapporte à la réponse en polarisation et également spectrale de particules d'origine désertique à l'angle exact de rétrodiffusion, géométrie très utilisée en télédétection (Leon et al., 2009<sup>111</sup> , Miffre et al., 2011<sup>135</sup>, Vernier et al., 2011<sup>224</sup>).
- La forme des particules d'origine désertique influe sur leurs propriétés de rétrodiffusion du rayonnement électromagnétique (Kahnert 2005<sup>83</sup>, Mishchenko 2009<sup>151</sup>, Nousiainen 2009<sup>163</sup>). La question qui se pose est alors de savoir quantifier l'incertitude associée à l'évaluation de la concentration en masse des aérosols désertiques par lidar du fait de leur diversité de taille et de forme. En particulier, comment discuter de cette incertitude lorsque les particules désertiques sont présentes dans des mélanges externes à deux ou trois composants après un long transport depuis leurs régions sources ?
- Un troisième aspect concerne le processus de nucléation dans l'atmosphère. Ce processus est complexe et le protocole expérimental à suivre pour l'observer a été défini par Kulmala et al. (2012), ce qui a permis de réaliser des observations à une altitude donnée (Kulmala et al. 2004<sup>100</sup> ; Rose et al. 2015b<sup>195</sup>) ou aéroportées (Crumeyrolle et al., 2010<sup>26</sup> ; Quan et al., 2017<sup>182</sup>). Toutefois, accéder à l'extension spatio-temporelle de ce processus reste complexe, malgré des avancées récentes comme publié par l'équipe (David et al., 2014<sup>35</sup>). Dans ce contexte, se pose la question de savoir la sensibilité et la précision atteinte pour l'observation en télédétection du processus de nucléation en présence de particules désertiques.

## 1.5 Plan de la thèse

Le travail présenté dans ce manuscrit est organisé comme suit, chaque chapitre adressant un point du questionnement ci-dessus :

Le chapitre 2 est consacré à la mesure, en laboratoire, de l'intensité rétrodiffusée par des particules d'origine désertique. Ces particules étant non-sphériques et de taille variable, la rétrodiffusion est mesurée très précisément ( $\theta = 180.0 \pm 0.2^\circ$ ) et de façon résolue en polarisation, simultanément dans le domaine spectral de l'UV et dans celui du visible (VIS). Ce travail s'appuie sur les travaux antérieurs de l'équipe (David et al., 2013b<sup>33</sup>), rapportant la construction d'un Pi-polarimètre UV et la méthodologie permettant d'évaluer précisément le rapport  $F_{22}/F_{11}$  des coefficients de la matrice de diffusion de ces particules (défini en 1.6), en

modulant la polarisation incidente sur un ensemble complet d'angles de modulation. Après avoir validé la construction et la précision de l'(UV, VIS) Pi-polarimètre et notre méthodologie sur des gouttelettes d'eau, qui sont de forme sphérique, deux distributions de taille de particules d'origine désertique, non-sphériques, ont été générées en laboratoire en utilisant des particules désertiques d'Arizona (ATD) comme proxy aux particules désertiques après un long transport dans l'atmosphère. Nous avons évalué le rapport  $F_{22}/F_{11}$  des coefficients de la matrice de diffusion de l'ATD qui atteint  $0.456 \pm 0.002$  dans l'UV pour la première distribution de taille considérée et  $0.533 \pm 0.010$  dans le VIS pour la seconde distribution de taille considérée. De par leur précision, ces résultats expérimentaux ont pu être comparés aux résultats de modèles de simulations numériques basées sur le modèle mathématique des sphéroïdes, réalisées à l'aide du code numérique T-matrix, montrant la capacité de ce modèle à reproduire nos résultats de laboratoire, à une longueur d'onde et pour une distribution de taille donnée. Ces travaux ont été publiés dans la revue JQSRT en 2016 (Miffre et al., 2016<sup>139</sup>).

Ces résultats de laboratoire peuvent être utilisés dans l'inversion de données atmosphériques provenant des mesures en télédétection lidars résolues en polarisation, comme développé aux chapitres 3 et 4. Ainsi, au chapitre 3, le Pi-polarimètre (UV, VIS) est utilisé pour réaliser des expériences lidar dans la troposphère de Lyon. L'inversion de données lidars, basée sur la mesure en rétrodiffusion, est complexe en raison de la complexité de l'atmosphère elle-même où l'aérosol désertique est présent dans des mélanges de plusieurs particules atmosphériques d'origine différente. Ainsi, nous discuterons notamment de la dépendance des profils verticaux des coefficients de rétrodiffusion de particules désertiques vis-à-vis de la taille, de la forme et de la rugosité de surface des particules considérées. Puis, l'évaluation de leur concentration massique est discutée vis-à-vis de ces paramètres microphysiques, ce qui est nouveau à notre connaissance, en particulier pour ce qui concerne la forme des particules. Afin d'adresser la complexité en forme des particules désertiques, différentes formes sont considérées, du modèle mathématique des sphéroïdes, utilisé au chapitre 2, à des modélisations de la forme des particules à partir d'échantillons de microscopie électronique de ces particules, issues de la campagne de terrain SAMUM. Ce travail de modélisation a été réalisé en coopération avec l'équipe de T. Nousiainen, spécialiste de ce type de simulation numérique (Kempainen et al., 2015<sup>92</sup>, Nousiainen 2009<sup>163</sup>). Ainsi, des simulations numériques se basant sur le code T-matrix pour le modèle de forme sphéroïdale et sur le code DDA pour les modèles de forme plus complexe sont effectuées et ce pour un indice de réfraction identique, ceci afin d'étudier la dépendance en taille et en forme de la rétrodiffusion optique, et plus précisément du rapport de dépolarisation, de l'exposant d'Angström de rétrodiffusion et du ratio lidar des particules désertiques, quantités définies au paragraphe 1.6. Si les profils verticaux dépendent fortement de la distribution de taille des particules désertiques choisies, le modèle de forme attribué s'avère également important lorsque l'on évalue des concentrations en masse par lidar. On a notamment vu que lorsque l'on passe des sphéroïdes aux stéréo particules lisses, le coefficient de rétrodiffusion des particules

désertiques peut varier jusqu'à environ 60 % dans notre étude de cas, correspondant à des variations du coefficient de rétrodiffusion des particules désertiques aussi grand que  $2 \text{ Mm}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$ . De plus, lorsqu'on utilise des stéréo particules au lieu de sphéroïdes, le facteur de conversion d'extinction de masse peut varier jusqu'à environ 30 %. Les variations de la concentration massique des particules désertiques dû au modèle de forme retenu pour l'analyse peuvent ainsi être aussi importantes qu'un facteur deux. Ces travaux ont été publiés dans Atmospheric Research en 2018 (Mehri et al., 2018<sup>128</sup>).

Enfin, au chapitre 4, suivant l'étude réalisée dans l'équipe sur l'observation lidar de la nucléation (David et al., 2014<sup>35</sup>), nous poursuivons cette analyse en étudiant, par la simulation numérique, la sensibilité du processus aux variables habituellement rencontrées en lidar : coefficient de rétrodiffusion, coefficient d'Angstrom. Puis, je décris cette méthodologie pour un cas d'étude en m'appuyant sur les résultats obtenus aux chapitres précédents afin d'inverser les signaux lidar et de partitionner les mélanges externes incluant des particules désertiques. Les résultats du cas d'étude sont comparés aux observations précédant l'arrivée des particules désertiques originaires du Sahara dans la troposphère libre de Lyon et aux observations de nuit. Le coefficient de rétrodiffusion lidar (UV, VIS) résolu en polarisation est distinct les jours où la présence de particules désertiques est rapportée dans la troposphère libre de Lyon. On retrouve notamment les mêmes ordres de grandeur pour les coefficients de rétrodiffusion mesurés in situ que ceux simulés préalablement pour un événement reconnu, et cela dans l'UV et dans le VIS.

## 1.6 Méthodologie

Je décris dans ce paragraphe la méthodologie suivie dans ce travail de thèse, basée sur la rétrodiffusion du rayonnement électromagnétique (UV, VIS) par l'aérosol désertique, résolu en polarisation. Cette section a pour but de décrire le formalisme utilisé pour décrire la rétrodiffusion du rayonnement électromagnétique par un ensemble polydisperse de particules en mouvement dans l'air, pouvant être de forme complexe et qui sert de fondement à nos expériences en laboratoire et en atmosphère réelle. Nous décrivons ainsi le formalisme de la matrice de diffusion notamment dans le cas particulier de la rétrodiffusion, utile aux chapitres 2, 3 et 4.

### 1.6.1 Hypothèses de travail

Nous considérons dans cette thèse un ensemble de  $N$  particules de diamètre  $D_p$  en mouvement et positionnées aléatoirement. Ces particules peuvent être sphériques ou non-sphériques et leur composition chimique est caractérisée optiquement par leur indice de réfraction  $m = n + ik$ . la partie imaginaire  $\kappa$  modélise le processus d'absorption du rayonnement électromagnétique. Les trois hypothèses de travail de cette thèse sous lesquelles nous travaillons sont schématisées sur la figure 1.8. Nous faisons notamment l'hypothèse de l'approximation de champ lointain : ceci implique que le volume diffusant puisse être assimilé à un point source et que l'onde diffusée, arrivée au détecteur, peut être

décrite par le formalisme des ondes sphériques. Dans ce contexte, plusieurs conditions doivent être respectées (Mishchenko Travis et Lacis, 2002<sup>146</sup>, Mishchenko Hovenier et Mackowsky, 2004<sup>147</sup>), comme détaillées par M.I. Mishchenko :

- Les particules sont séparées par une distance supérieure à leurs rayons et à la longueur d'onde  $\lambda$ .
- La distance  $d$  entre le volume diffusant et le détecteur est supposée très supérieure au diamètre  $D_p$  des particules et à la longueur d'onde  $\lambda$ .
- Comme la diffusion de chaque particule est indépendante dû à la distance les séparant, il faut que la phase de chacune des ondes diffusées coïncident au niveau du point d'observation. Cette condition est vérifiée si et seulement si  $d \gg |k_{\text{sca,air}}| * \frac{D_p^2}{2}$  avec  $|k_{\text{sca,air}}|$  la norme du vecteur d'onde de l'onde diffusée dans le milieu diffusant (dans notre cas l'air).

Si  $N$  est suffisamment petit pour que la distance entre les particules soit supérieure à la longueur d'onde de l'onde électromagnétique incidente et à la taille des particules présentes alors nous pouvons également faire l'hypothèse de la diffusion simple, c'est-à-dire que la diffusion de l'onde électromagnétique incidente par le volume est due presque intégralement à la somme des diffusions uniques des particules du volume, considérées comme indépendantes. Les conditions de validité de l'approximation de diffusion simple sont discutées par M.I. Mishchenko (Mishchenko et al., 2007<sup>150</sup>). Nous supposons enfin que les particules présentes dans le volume étudié sont orientées aléatoirement.

### 1.6.2 Formalisme de la matrice de diffusion

Les observables des instruments optiques à notre disposition sont des intensités moyennées temporellement. Il nous faut donc utiliser un formalisme reflétant cet aspect. Considérons une onde plane progressive monochromatique se propageant dans un milieu LHI de perméabilité magnétique  $\mu$  et de permittivité diélectrique  $\epsilon$  tel que  $\vec{E}(r,t) = \vec{E}_0 \exp(i\vec{k}\vec{n} \cdot \vec{r} - \omega t)$  Où  $k$  est la norme du vecteur d'onde,  $\vec{n}$  la direction de propagation de l'onde,  $\vec{r} = \vec{OM}$  la distance entre l'origine du repère et le point d'observation  $M$  de l'onde (figure 1.8) et  $\omega$  la pulsation. Comme l'onde électromagnétique considérée est plane impliquant un champ électromagnétique transverse et que nous voulons rendre compte de la polarisation, on introduit un repère cartésien unitaire  $(M, \vec{v}, \vec{\varphi})$  tel que  $\vec{n} = \vec{v} \times \vec{\varphi}$  et où  $\vec{v}$  appartient toujours au plan  $(\vec{n}, \vec{z})$ . On peut alors décomposer le champ électromagnétique au point d'observation  $M$  tel que  $\vec{E} = \vec{E}_v + \vec{E}_\varphi$ . L'ensemble complet le plus simple de combinaisons quadratiques linéaires indépendantes du vecteur champ électrique dont la moyenne temporelle est non nulle est le suivant :  $E_v E_v^*, E_v E_\varphi^*, E_\varphi E_v^*, E_\varphi E_\varphi^*$ . Le produit de ces quantités par  $\frac{1}{2} \sqrt{\epsilon/\mu}$  a la dimension d'un flux énergétique monochromatique. Le fait que cet ensemble est complet implique que toutes les caractéristiques de l'onde EM observables avec des instruments optique classique est une combinaison linéaire réelle de ces quantités (Mishchenko Travis et Lacis, 2002<sup>146</sup>). En général les deux termes croisés sont complexes, on

définit donc quatre combinaisons linéaires appelées communément les paramètres de Stokes I, Q, U et V défini comme suit :

$$\begin{bmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{bmatrix} = \frac{\sqrt{\epsilon/\mu}}{2} \begin{bmatrix} E_v E_v^* + E_\varphi E_\varphi^* \\ E_v E_v^* - E_\varphi E_\varphi^* \\ -2\text{Re}(E_v E_\varphi^*) \\ 2\text{Im}(E_v E_\varphi^*) \end{bmatrix} \quad (1.12)$$

Les paramètres réels de Stokes permettent de totalement caractériser une onde plane EM monochromatique. I décrit l'intensité lumineuse, tandis que Q, U et V décrivent complètement l'état de polarisation de la lumière. Dans le cadre de ce formalisme des vecteurs de Stokes, nous pouvons introduire une matrice 4x4, la matrice de diffusion, pour décrire la modification de polarisation induite par diffusion d'une onde électromagnétique sur un ensemble de particules en suspension dans l'air (Mishchenko Travis et Lacis, 2002<sup>146</sup>) :

$$\begin{bmatrix} I_{sca} \\ Q_{sca} \\ U_{sca} \\ V_{sca} \end{bmatrix} = \frac{C_{sca,p}}{4\pi d^2} \begin{bmatrix} F_{11} & F_{12} & F_{13} & F_{14} \\ F_{21} & F_{22} & F_{23} & F_{24} \\ F_{31} & F_{32} & F_{33} & F_{34} \\ F_{41} & F_{42} & F_{43} & F_{44} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} I_{inc} \\ Q_{inc} \\ U_{inc} \\ V_{inc} \end{bmatrix} \quad (1.13)$$

où les éléments de la matrice de Mueller  $F_{ij}$  sont des paramètres intensifs dépendant de la taille, de la forme des particules ainsi que de leur composition chimique, via l'indice de réfraction. Ces coefficients dépendent également de la longueur d'onde  $\lambda$  de l'onde incidente et de l'angle de diffusion  $\theta$ . Nous noterons dans la suite  $I_{inc}$  et  $I_{sca}$  l'intensité respectivement de l'onde électromagnétique incidente et de l'onde électromagnétique diffusée. Un paramètre donné n'est pas modifié par un changement de taille si le ratio  $r/\lambda$  est conservé (Munoz, 2010<sup>157</sup>), où  $r$  représente le rayon de la particule et  $\lambda$  la longueur d'onde de l'onde électromagnétique incidente. Il est possible d'étendre ce formalisme à un petit volume comprenant des particules diffusantes si elles sont considérées comme indépendantes, en effet la matrice de diffusion de l'ensemble, que l'on nommera par la suite  $F_p$ , est la somme des matrices de diffusion des particules individuelles (Mishchenko Travis et Lacis, 2002<sup>146</sup>) :

$$F_{ij,p} = \sum_k F_{ij,k} \quad (1.14)$$

Où l'indice  $p$  représente l'ensemble des particules du volume diffusant et l'indice  $k$  une particule individuelle. Dans le cas particulier des trois hypothèses exposées plus haut (champ lointain, diffusion simple et orientation aléatoire des particules), la matrice de diffusion est simplifiée :

$$\begin{bmatrix} I_{sca} \\ Q_{sca} \\ U_{sca} \\ V_{sca} \end{bmatrix} = \frac{C_{sca,p}}{4\pi d^2} \begin{bmatrix} F_{11,p} & F_{12,p} & 0 & F_{14,p} \\ F_{12,p} & F_{22,p} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & F_{33,p} & F_{34,p} \\ F_{14,p} & 0 & -F_{34,p} & F_{44,p} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} I_{inc} \\ Q_{inc} \\ U_{inc} \\ V_{inc} \end{bmatrix} \quad (1.15)$$

Comme détaillé par Van de Hulst (1957), dans la direction de diffusion vers l'arrière,  $F_{33,p} = -F_{22,p}$  et la matrice de rétrodiffusion a seulement quatre éléments non nuls :  $F_{11,p}, F_{14,p}, F_{22,p}, F_{44,p}$ . L'application du théorème de rétrodiffusion (Van de Hulst, 1957<sup>223</sup>) conduit alors à  $F_{44,p} = F_{11,p} - 2F_{22,p}$ , comme détaillé dans (Mishchenko et Hovenier, 1995<sup>140</sup>). De plus, lorsque chaque particule du groupe a un plan de symétrie et/ou est accompagnée de sa particule miroir,  $F_{14,p}$  est nulle de sorte que pour les particules en orientation aléatoire avec une quantité égale de particules et leurs particules de miroir, la matrice de rétrodiffusion est diagonale dépend de  $F_{11,p}$  et  $F_{22,p}$  selon :

$$\begin{bmatrix} I_{sca} \\ Q_{sca} \\ U_{sca} \\ V_{sca} \end{bmatrix} = \frac{C_{sca,p}}{4\pi d^2} \begin{bmatrix} F_{11,p}(\pi) & 0 & 0 & 0 \\ 0 & F_{22,p}(\pi) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -F_{22,p}(\pi) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & F_{11,p}(\pi) - 2F_{22,p}(\pi) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} I_{inc} \\ Q_{inc} \\ U_{inc} \\ V_{inc} \end{bmatrix} \quad (1.16)$$

### 1.6.3 Rétrodiffusion optique et instrument lidar

Une partie de ma thèse a été consacrée à l'étude de l'aérosol atmosphérique d'origine désertique en interrogeant son contenu dans l'atmosphère au moyen de l'interaction de la lumière laser avec cet aérosol. Une méthode d'observation de cette interaction est d'utiliser la technique Lidar qui permet d'interroger cette interaction de manière rapide et à distance. Ceci permet d'interroger l'aérosol sans trop le perturber dans son environnement assez instable. Cette technique n'est pas nouvelle. Dès l'avènement des lasers, des scientifiques ont de suite exploité son potentiel en termes de densité d'énergie de directionalité pour sonder le contenu de l'atmosphère comme souligné dans le livre pionnier de R.M. Measures (1984) ou celui plus récent de K. Weitkamp (2005). Cet instrument est devenu très performant et largement utilisé dans les observatoires météorologiques et climatiques comme EARLINET, dans des missions d'observation de l'ozone stratosphérique, ainsi que pour l'observation globale des aérosols par satellite comme réalisées par le satellite CALIPSO (Cloud Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observations), ceci afin d'étudier spécifiquement les impacts radiatifs des aérosols et des nuages (Liu et al., 2008<sup>117</sup>, Vernier et al., 2011<sup>224</sup>, Winker et al., 2010<sup>248</sup>). Les nouveautés technologiques et méthodologiques sont depuis quelques années portées sur l'analyse précise de l'interaction lumière matière avec les travaux en optique non linéaire de JP Wolf, ou le développement de méthodes d'analyse de mélanges externes à deux (Tesche et al., 2009<sup>216</sup>) et à trois composantes (David et al., 2013a<sup>32</sup>) via des études résolues en polarisation. L'avènement de nouveaux détecteurs plus sensibles et plus rapides a permis d'observer des interactions d'intensité très faible. On peut citer la diffusion Raman des particules d'origine désertique par Müller et al. (2013) ou encore à l'émission Planck des particules contenues dans l'aérosol à fort coefficient d'absorption comme récemment publié par l'équipe (Miffre et al., 2015<sup>138</sup>). Rappelons qu'un lidar (pour light detection and ranging en anglais) est un instrument optique qui mesure, à



distance, la rétrodiffusion et l'extinction optique d'un ensemble de particules atmosphériques depuis le sol jusqu'à plusieurs kilomètres. Les lidars peuvent être utilisés depuis le sol (Di Girolamo et al., 2012<sup>42</sup>, Kacenelenbogen et al., 2011<sup>80</sup>, Leon et al., 2009<sup>111</sup>, Rose et al., 2015b<sup>195</sup> Weitkamp, 2005<sup>241</sup>), embarqué dans des avions (Flamant et al., 2000<sup>55</sup>, Pelon et al., 2002<sup>172</sup>) ou depuis les satellites comme CALIPSO.

### (a) Lidar (UV, VIS) résolu en polarisation

Le principe du lidar est le suivant : un faisceau laser pulsé est émis dans l'atmosphère et la lumière rétrodiffusée par les aérosols et les molécules atmosphériques est collectée par un télescope puis détectée. Cette détection peut être résolue en polarisation, c'est-à-dire séparée en fonction de sa polarisation  $\pi = \{ //, \perp \}$  par rapport à la polarisation rectiligne du laser incident. L'équation lidar fournit l'expression de la puissance rétrodiffusée à l'altitude  $z$  en fonction de la polarisation (Weitkamp, 2005<sup>241</sup>):

$$P_{\pi}(\lambda, z) = \eta_{\pi}(\lambda) P_0(\lambda) \frac{O(z)}{z^2} \beta_{\pi}(\lambda, z) T^2 + P_{F, \pi}(\lambda, z) \quad (1.3)$$

où  $\eta_{\pi}(\lambda)$  est l'efficacité de détection prenant en compte le gain électro-optique du détecteur et la géométrie du télescope, alors que  $P_0(\lambda)$  est la puissance laser incidente pour la longueur d'onde  $\lambda$  et  $O(z)$  est la fonction de recouvrement entre le faisceau laser et le champ de vision du récepteur.  $P_{F, \pi}(\lambda, z)$  est le signal de fond, principalement dû à la lumière du Soleil.  $T$  désigne la transmission atmosphérique, qui prend en compte l'extinction  $\alpha$  due aux particules ( $p$ ) et aux molécules ( $m$ ) de l'atmosphère :

$$T(\lambda, z) = \exp \left( - \int_0^z (\alpha_p(\lambda, l) + \alpha_m(\lambda, l)) dl \right) \quad (1.4)$$

Les observables lidars sont ainsi les coefficients de rétrodiffusion  $\beta_p$  et d'extinction  $\alpha_p$ , qui sont définis usuellement comme l'intégrale sur la distribution de taille des sections efficaces respectivement de diffusion et d'extinction ( $C_{back, p}$ ,  $C_{ext, p}$ ) :

$$\beta_p = \int_{SD} C_{back, p} n_p(r) dr \quad (1.5)$$

$$\alpha_p = \int_{SD} C_{ext, p} n_p(r) dr \quad (1.6)$$

Le coefficient de rétrodiffusion  $\beta_{\pi}(\lambda, z)$  est un traceur de la section efficace et du nombre de particules présentes dans les différentes couches de l'atmosphère. Il s'exprime en  $m^{-1}.sr^{-1}$  et décrit la quantité de lumière rétrodiffusée par les particules et les molécules de l'atmosphère. En appliquant le principe de superposition,  $\beta_{\pi}$  est égal à :

$$\beta_{\pi}(\lambda, z) = \beta_{m, \pi}(\lambda, z) + \beta_{p, \pi}(\lambda, z) = N_p \times \left\langle \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{p, \pi} \right\rangle + N_m \times \left\langle \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{m, \pi} \right\rangle \quad (1.7)$$

Où  $N_p$  et  $N_m$  sont les concentrations de particules (p) et de molécules (m) (en  $m^{-3}$ ), alors que  $\langle \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{p,\pi} \rangle$  et  $\langle \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{m,\pi} \rangle$  sont les sections efficaces de rétrodiffusion respectivement des particules et des molécules moyennées sur leur distribution de taille. Le coefficient de rétrodiffusion des particules  $\beta_{p,\pi}$  peut être obtenu à partir du coefficient de rétrodiffusion  $\beta_\pi$  en appliquant l'algorithme de Klett (Klett, 1985<sup>98</sup>). Cet algorithme nécessite notamment une estimation préalable du ratio lidar, défini comme le rapport entre les coefficients d'extinction et de rétrodiffusion des particules selon :

$$S_p = \frac{\alpha_p}{\beta_p} \quad (1.8)$$

### (b) De l'intérêt de l'analyse de la polarisation de l'onde rétrodiffusée

On considère ici un détecteur lidar résolu en polarisation et une lumière laser incidente polarisée linéairement. Ce détecteur sépare l'intensité lumineuse diffusée  $I_{sca}$  en fonction de sa polarisation  $\pi = \{ //, \perp \}$  par rapport à la polarisation linéaire du laser incident. On a alors des mesures de diffusion résolues en polarisation linéaire, parallèlement et perpendiculairement à la polarisation du laser incident, i.e.  $I_{sca, //} = (I_{sca} + Q_{sca})/2$  et  $I_{sca, \perp} = (I_{sca} - Q_{sca})/2$ . La figure 1.8 schématise cette situation dans le cas de particules sphériques (a) puis non-sphériques (b). Sur la partie (a) de la figure, on peut voir qu'une onde rétrodiffusée par des particules sphériques ne connaît pas de changement de polarisation, et ceci est en accord avec la théorie de Lorenz-Mie (Mie, 1908<sup>132</sup>) de la diffusion de la lumière par une sphère homogène. Il a ainsi été démontré que dans l'hypothèse de la diffusion simple, l'onde diffusée par un ensemble de particules sphériques homogène conserve la polarisation incidente. Par conséquent, pour les particules sphériques, on a  $I_{sca, \perp} = (I_{sca} - Q_{sca})/2 = 0$ , ce qui revient à dire que l'onde rétrodiffusée présente le même état de polarisation que l'onde incidente.

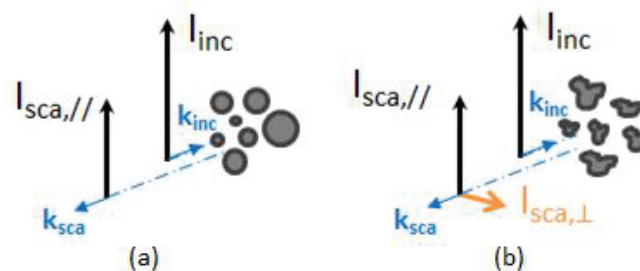


Figure 1.8 Schéma de principe de l'observation d'une intensité lumineuse : une polarisation croisée apparaît en présence de particules non-sphériques en mouvement. L'anisotropie d'un ensemble de particules en suspension dans l'air induit ainsi une modification de la polarisation de l'onde diffusée par rapport à celle de l'onde incidente. Nous verrons par la suite que cette propriété optique d'un ensemble de particules en suspension dans l'air est liée à un écart à la théorie de Mie que nous pouvons quantifier à l'aide de paramètres de notre formalisme. Cette propriété est utile aux expériences de polarimétrie sur un ensemble de particules non sphériques en suspension dans l'air.

Lorsque les particules en mouvement et de forme quelconque, ne présentant pas de symétrie sphérique particulière (partie (b) de la figure 1.8), une intensité rétrodiffusée croisée  $I_{sca, \perp}$  apparaît (Mishchenko Hovenier et Travis, 2000<sup>145</sup>). Ainsi, la dépendance en polarisation de l'onde rétrodiffusée est un indicateur de la non-sphéricité des particules présentes dans le volume diffusant. Ce phénomène observé pour des particules non sphériques est appelé dépolarisation et est défini comme la capacité de l'ensemble de particules diffusantes à modifier la polarisation de l'onde électromagnétique incidente (Baumgardner et al., 2012<sup>11</sup>, Schnaiter et al., 2012<sup>203</sup>). Afin de traduire cet effet, il est d'usage d'introduire le rapport de dépolarisation linéaire des particules défini comme suit :

$$\delta_p = \frac{I_{sca, \perp}}{I_{sca, //}} \quad (1.9)$$

Le rapport de dépolarisation  $\delta_p$  des particules dépend de la forme, de la taille et de la composition chimique des particules. Le rapport de dépolarisation des particules  $\delta_p$  est souvent utilisé, que ce soit dans la communauté lidar (Cairo et al., 1999<sup>23</sup>, David et al., 2014<sup>35</sup>, Freudenthaler et al., 2009<sup>57</sup>, Miffre et al., 2012a<sup>135</sup>, Tesche et al., 2009<sup>216</sup>), pour les simulations numériques (Mishchenko et Hovenier, 1995<sup>140</sup>, Nousiainen et al., 2009<sup>163</sup>, 2014<sup>165</sup>) ou pour les expériences en laboratoire (Miffre et al., 2016<sup>139</sup>, Munoz et al., 2010<sup>154</sup>, 2017<sup>156</sup>, Schnaiter et al., 2012<sup>203</sup>). Des simulations numériques montrent que l'amplitude de  $\delta_p$  n'est cependant pas un indicateur précis de la forme ou de la morphologie globale des particules (Nousiainen et al., 2012<sup>165</sup>). Dans la littérature (Miffre et al., 2016<sup>139</sup>, Sasano et Browell, 1989<sup>199</sup>, Schnaiter et al., 2012<sup>203</sup>), la morphologie globale se réfère uniquement à la forme des particules sans prise en compte de l'état de la surface bien que celui-ci à un rôle sur la réponse optique de l'ensemble des particules du volume diffusant. Dans le cadre de cette thèse, au chapitre 3, nous chercherons à évaluer l'effet de la rugosité de surface des particules désertiques sur leurs propriétés optiques de diffusion (Mehri et al., 2018<sup>128</sup>).

### (c) De l'intérêt de l'étude spectrale

Les grandeurs  $\beta_p$  et  $\delta_p$  dépendent de la taille, de la forme et de la composition chimique des particules. Ces grandeurs dépendent également de la longueur d'onde du rayonnement électromagnétique et il est ainsi d'usage d'introduire le paramètre de taille, exprimant la taille en unités de longueurs d'onde :

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

La dépendance spectrale (de l'observation) du coefficient de rétrodiffusion élastique des particules peut se caractériser par une relation empirique exprimée sous la forme de l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion  $BAE_p$  (de l'anglais Backscattering Angstrom Exponent). Afin de prendre en compte cette dépendance spectrale on introduit ainsi l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion des particules  $BAE_p$ . Cette quantité est une indication de la

taille des particules comme l'ont montré Sasano et Browell (1989). Pour deux longueurs d'onde  $(\lambda_1, \lambda_2)$ ,  $BAE_p$  est défini comme suit :

$$\frac{\langle (\frac{d\sigma}{d\Omega})_{p,\lambda_1} \rangle}{\langle (\frac{d\sigma}{d\Omega})_{p,\lambda_2} \rangle} = (\frac{\lambda_1}{\lambda_2})^{-BAE_p} \quad (1.11)$$

Cette quantité sera utilisée aux chapitres 3 et 4.



## Chapitre 2

### Rétrodiffusion en laboratoire de particules d'origine désertiques : Pi-Polarimètre (UV, VIS)

Ce chapitre 2 est dédié aux expériences réalisées en laboratoire sur la rétrodiffusion optique d'un ensemble de particules désertiques en suspension dans l'air. L'un des intérêts d'une telle expérience, réalisée en conditions contrôlées, est de pouvoir générer des particules de taille et de composition chimique définies, présentant des distributions de taille proche de celles rencontrées dans l'atmosphère pour des particules désertiques après un transport sur de longues distances. La sensibilité et la précision du Pi-Polarimètre (UV, VIS) ainsi construit, permettent, sur la mesure en rétrodiffusion, de discuter des hypothèses inhérentes aux modèles de simulation numérique de la rétrodiffusion optique. En particulier, un des obstacles majeurs non résolus par la simulation numérique est la capacité à traiter par ces modèles la morphologie complexe de ces particules (Dubovik et al., 2006<sup>48</sup>, Mishchenko et Travis, 1998<sup>142</sup>), ce qui peut conduire à des erreurs importantes lorsque l'on essaye d'évaluer numériquement les coefficients de la matrice de diffusion des particules.

L'expérience de polarimétrie est réalisée à l'angle exact de rétrodiffusion et à deux longueurs d'onde simultanément ( $\lambda = 355 \text{ nm}, 532 \text{ nm}$ ) sur des particules désertiques d'Arizona Test Dust (ATD). L'utilisation de deux longueurs d'onde permet d'étudier la dépendance spectrale des coefficients de la matrice de diffusion. La prise en compte de la dépendance spectrale de ces coefficients à l'angle de rétrodiffusion exacte est importante car, contrairement aux molécules, il n'y a pas de base de données spectroscopique pour les aérosols. De plus, une information sur la dépendance spectrale s'avère utile pour évaluer les hypothèses inhérentes aux simulations numériques. Les longueurs d'onde émises ont été choisies pour augmenter notre sensibilité à la réponse optique des particules étudiées, de taille l'ordre de quelques centaines de nanomètres. Ce choix est également justifié par leur applicabilité pratique en télédétection lidar. Le choix de l'ATD permet d'étudier un mélange de particules désertiques inhomogène de composition chimique proche de celle des particules désertiques originaire du Sahara.

Dans un premier temps, nous allons nous intéresser à l'état de l'art des expériences en laboratoire sur la diffusion optique réalisées sur des particules désertiques, en géométrie proche de l'angle exact de rétrodiffusion. Puis, nous décrirons notre méthodologie pour mesurer la rétrodiffusion multi-spectrale résolue en polarisation de la lumière par un ensemble de particules désertiques en mouvement dans l'air. Notre polarimètre (UV, VIS) permet d'évaluer le rapport des coefficients de la matrice de diffusion  $F_{22,p}/F_{11,p}$  avec une précision de l'ordre du pourcent. Après validation du polarimètre sur des gouttelettes d'eau

sphériques, nous décrivons la composition chimique et les deux distributions de tailles des particules d'ATD générées pour être représentatives des particules désertiques après transport sur de longues distances. Enfin, nos résultats expérimentaux permettront de discuter de l'applicabilité d'un modèle numérique, nommément le T-matrix (Mishchenko, 2009<sup>151</sup>, Veselovskii et al., 2010<sup>225</sup>).

Le rapport des coefficients de la matrice de diffusion des particules désertiques en suspension dans l'air  $F_{22,d}/F_{11,d}$  (indice d pour dust en anglais), mesuré pour la première fois à l'angle exact de rétrodiffusion, est égal à  $0.456 \pm 0.002$  dans l'UV et à  $0.475 \pm 0.004$  dans le VIS pour la première distribution de taille considérée. Pour la seconde distribution de taille, on trouve  $F_{22,d}/F_{11,d} = 0.482 \pm 0.009$  dans l'UV et  $F_{22,d}/F_{11,d} = 0.533 \pm 0.010$  dans le VIS. Ces résultats de laboratoire concordent avec des simulations numériques réalisées à l'aide du code T-matrix, au moins pour une distribution de taille déterminée et à une longueur d'onde déterminée. Cela montre la capacité du modèle des sphéroïdes à reproduire la réponse optique à l'angle exact de rétrodiffusion d'un ensemble de particules désertiques. Cependant, la dépendance spectrale du rapport de dépolarisation mesurée n'a pas pu être reproduite avec le modèle des sphéroïdes quelles que soit les distributions de forme considérées pour les sphéroïdes. Ces travaux ont été publiés dans la revue Journal Of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer (JQSRT) en 2016 (Miffre et al., 2016<sup>139</sup>).

## 2.1 Éléments de bibliographie

### 2.1.1 De l'intérêt d'une mesure de polarimétrie en rétrodiffusion exacte

La réalisation d'une expérience de polarimétrie qui adresse l'exacte rétrodiffusion de la lumière (angle de diffusion  $\theta = 180.0^\circ$ ) pour des particules d'intérêt atmosphérique présente plusieurs bénéfices. D'une part, cette direction est l'une des directions les plus sensibles à la taille et à la forme des particules (Mishchenko, Travis et Lacis, 2002<sup>146</sup>, Nousiainen, 2009<sup>163</sup>), ce qui est précisément notre questionnement. La théorie de Lorentz-Mie (Mie, 1908<sup>132</sup>) ne s'appliquant qu'à des particules homogènes et sphériques, il n'existe pas de solution analytique aux équations de Maxwell pour la diffusion de la lumière par des particules inhomogènes et de forme complexe. La forme de ces particules est si difficile à représenter mathématiquement dans les modèles climatiques que des simulations numériques sont souvent mises en œuvre. Nous verrons au chapitre 3 quelques aspects de ces simulations numériques. Si puissantes soient-elles, ces simulations numériques reposent toutefois sur des hypothèses voire des extrapolations polynômiales (Liu et al., 2003<sup>116</sup>, Veselovskii et al., 2010<sup>225</sup>) qu'il convient de discuter. Dans ce contexte, réaliser une expérience de laboratoire permettant d'adresser quantitativement la rétrodiffusion optique de ces objets complexes est essentiel. En dehors de cet aspect fondamental (lié à la solution des équations de Maxwell), la rétrodiffusion optique est d'une importance capitale de par ses applications pratiques, puisqu'il s'agit d'une des directions privilégiées des observations atmosphériques

par télédétection passive et active. L'analyse des données en télédétection se fonde en effet très souvent sur des paramètres qu'il convient de discuter (Hovenier et Guirado, 2014<sup>72</sup>, Mishchenko et Travis, 1998<sup>142</sup>, Nousiainen, 2009<sup>163</sup>). Nous verrons aux chapitres 3 et 4 que l'inversion de données lidar passe ainsi par la connaissance très précise de grandeurs que nous appellerons paramètres d'entrée, qu'il est intéressant de déterminer en laboratoire, dans la géométrie d'observation lidar, i.e. en rétrodiffusion exacte.

La rétrodiffusion de la lumière est reconnue comme étant un processus efficace pour obtenir des informations sur les propriétés optiques de la matière condensée ou gazeuse, avec de nombreuses applications dans divers domaines de recherche tels que la biomédecine (Vitkin et Studinski, 2001<sup>229</sup>, Wang et al., 2012<sup>234</sup>), la recherche fondamentale (Wiersma et al. 1997<sup>246</sup>) ou la recherche sur l'environnement et le climat (Winker et al., 2010<sup>225</sup>). Dans la littérature publiée, la rétrodiffusion de la lumière a été observée et appliquée uniquement aux milieux denses comme les cristaux de GaAs solides (Wiersma et al. 1997<sup>246</sup>), les tissus biologiques solides (Vitkin et Studinski, 2001<sup>229</sup>), l'eau liquide et les sphères PSL dans l'eau liquide (Kuga et Ishimaru, 1984<sup>104</sup>), ou pour le sang d'animaux liquides (Wang et al., 2012<sup>234</sup>). Cependant, jusqu'à présent, à notre connaissance, pour des particules en suspension dans l'air ambiant comme l'aérosol atmosphérique, il n'existait, jusqu'à la contribution de l'équipe en 2013 (David et al., 2013b<sup>33</sup>) aucune expérience de laboratoire couvrant la direction exacte de rétrodiffusion.

### **2.1.2 Etat de l'art sur les mesures en laboratoire des aérosols atmosphériques**

Pour les aérosols atmosphériques, les principaux travaux sur la diffusion optique réalisés en laboratoire sont ceux de J. Hovenier et O. Muñoz (Muñoz 2010<sup>154</sup>) qui ont permis d'obtenir des mesures de polarimétrie sur divers échantillons en suspension dans l'air ambiant, incluant des cendres volcaniques et des particules désertiques, pour des angles de diffusion allant de 3 à 177° (Muñoz et al., 2004<sup>153</sup>). Muñoz et Hovenier (2011<sup>155</sup>) ont ainsi listé les expériences de laboratoire de diffusion de la lumière existantes en mesurant plusieurs éléments de la matrice de diffusion. Dans la littérature, plusieurs expériences de diffusion de la lumière ont ainsi été construites et exploitées à des angles de diffusion élevés ( $\theta \geq 168^\circ$ ), approchant la direction exacte de rétrodiffusion ( $\theta = 180^\circ$ ). On peut notamment citer les travaux de Schnaiter et al. qui ont étudié la réponse optique résolue en polarisation de cristaux de glaces à l'angle de diffusion de 178.2° (Schnaiter et al., 2012<sup>203</sup>) ou encore ceux de Sakai et al. qui ont effectué des mesures de polarimétrie à un angle très proche de la direction de rétrodiffusion (179.2°) dans le cas de particules de sel marin (Sakai et al., 2004<sup>198</sup>). Pour ce qui est des particules désertiques, West et al. ont réalisé des travaux pionniers sur des particules de taille de l'ordre du micromètre sur une plage angulaire allant de 15 à 170° et ce à trois longueurs d'ondes (470, 652 et 937 nm) (West et al., 1997<sup>242</sup>). Glenn et al. ont effectué des mesures de polarimétrie sur des particules d'ATD en géométrie de diffusion vers l'avant (i.e., entre 4 et 12°) et vers l'arrière (i.e., de 168 à 176°) et ce pour



des particules de taille comprise entre 0.6 et 50  $\mu\text{m}$  (Glen et Brooks, 2013<sup>59</sup>). Des mesures des coefficients de la matrice de diffusion de sept particules minérales différentes, représentatives de minéraux présents dans les particules désertiques d'origine terrestre, ont été réalisées à deux longueurs d'ondes par Volten et al. (2001) sur une plage angulaire s'étendant de 5 à 173°, ils notent que les éléments de la matrice de diffusion mesurés en fonction de l'angle de diffusion sont confinés à des domaines plutôt limités. Munoz et al. ont réalisé des mesures de polarimétrie sur un ensemble de grosses particules ( $D_p > 2 \mu\text{m}$ ) désertiques issues du désert libyen et ont étudié leur matrice de diffusion pour des angles de diffusion allant de 4 à 174° en prenant en compte les conséquences des diffusions multiples induites par la taille des particules dans leur formalisme (Munoz et al., 2017<sup>156</sup>). Dans une direction plus proche de l'angle de rétrodiffusion (178°), on trouve la contribution de Järvinen et al. à deux longueurs d'ondes (488 et 552 nm) avec des mesures de polarimétrie sur un grand nombre d'échantillons (Jarvinen et al., 2016<sup>78</sup>). De plus, à partir d'une lecture détaillée des articles correspondants, il semble difficile de savoir si les conditions de diffusion unique en champ lointain sont remplies.

On peut constater que les éléments de la matrice de diffusion des aérosols sont évalués pour des plages angulaires excluant la rétrodiffusion exacte de 180.0°. Or, couvrir la direction exacte de la diffusion vers l'arrière est nécessaire pour mener à bien des calculs de transfert radiatif pour lesquels la totalité de la fonction de phase doit être connue. On peut ainsi noter que toutes les expériences de polarimétrie citées déterminent les rapports des éléments de la matrice de diffusion (souvent normalisée à la fonction de phase ie  $F_{11,p}$  à 30 °) plutôt que des éléments de la matrice de diffusion absolue (Laan et al., 2009<sup>106</sup>), ce qui peut limiter l'applicabilité directe des éléments de la matrice de diffusion mesurés (Munoz et Hovenier, 2011<sup>155</sup>). Pour couvrir la géométrie de rétrodiffusion exacte, des extrapolations polynomiales sont généralement utilisées et une matrice dite de diffusion synthétique a été construite (Hovenier et Guirado, 2014<sup>72</sup>, Laan et al., 2009<sup>106</sup>). Selon Hovenier et Guirado (Hovenier et Guirado, 2014<sup>72</sup>) des expériences de diffusion en laboratoire devraient alors être réalisées autour et à l'angle de rétrodiffusion exact pour adresser la pente des éléments de la matrice de diffusion (cf. Chapitre 1). Ceci passe par la mesure quantitative en premier lieu des éléments de la matrice de diffusion à l'angle exact de rétrodiffusion. De manière intéressante, Curtis et al. ont comparé leurs mesures en diffusion optique pour des particules désertiques (entre 17 à 172°) à la réponse numérique obtenue en utilisant la théorie de Lorenz-Mie. Comme attendu, leurs résultats montrent des écarts significatifs entre les fonctions de phase expérimentales et les fonctions de phase calculées en utilisant cette théorie. Ces auteurs en tirent la conclusion que les défauts du modèle sont dus à la forme complexe des particules désertiques (Curtis et al., 2008<sup>27</sup>). Ainsi, la bibliographie actuelle montre non seulement l'intérêt d'une mesure en rétrodiffusion exacte, mais aussi le besoin de mieux adresser la forme des particules dans les modèles numériques. Nous adressons ce premier aspect dans ce chapitre, laissant le second aspect pour le chapitre 3. Idéalement, une telle expérience de rétrodiffusion en laboratoire devrait être conduite à

plusieurs longueurs d'onde pour faciliter la comparaison avec les modèles numériques (Dubovik et al., 2006<sup>48</sup>, Kahnert et al., 2005<sup>81</sup>, Veselovskii et al., 2010<sup>225</sup>, Zubko et al., 2013<sup>260</sup>) et car la télédétection par laser (LIDAR pour « light detection and ranging ») résolu en polarisation opèrent souvent aux deux longueurs d'onde choisies pour notre expérience (355 et 532nm) (Ansmann et al. 2011<sup>7</sup>, 2012<sup>8</sup>, Freudenthaler et al., 2009<sup>57</sup>, Veselovskii et al., 2016<sup>227</sup>).

### 2.1.3 Mesure en laboratoire en exacte rétrodiffusion

En 2013, l'équipe a réalisé la première expérience de rétrodiffusion exacte pour des particules en suspension dans l'air en construisant un polarimètre de laboratoire UV adressant la géométrie de rétrodiffusion exacte (David et al., 2013b<sup>33</sup>) afin de réaliser une évaluation précise du rapport  $F_{22,s}/F_{11,s}$  des coefficients de la matrice de diffusion pour des particules sphériques en suspension dans l'air ambiant, dans la direction d'exacte rétrodiffusion ( $\theta = 180.0 \pm 0.2^\circ$ ). J'en rappelle ici le principe. Une mesure dans cette géométrie particulière implique deux difficultés majeures, comme souligné par Hovenier (Hovenier et al., 2003<sup>71</sup>). La première difficulté est d'avoir une résolution angulaire suffisamment élevée pour éviter de bloquer le rayonnement incident. La seconde difficulté provient du signal de rétrodiffusion lui-même puisque le signal de diffusion d'un ensemble de particules en suspension dans l'air ambiant et de taille inférieure au micromètre est très faible, ce qui demande une détection très sensible de manière à différencier la contribution à la diffusion optique des particules de celles dues à l'air ambiant. Pour de telles particules à symétrie sphérique, la théorie de Lorentz-Mie est applicable et ceci a permis de valider le dispositif expérimental. Ce travail a également permis de vérifier, pour la première fois à notre connaissance, la validité de la théorie de Lorenz-Mie en géométrie de rétrodiffusion pour des particules en suspension dans l'air, un résultat supposé connu et appliqué fréquemment à l'étude des nuages dans l'atmosphère depuis près d'un siècle mais qu'il convenait de vérifier expérimentalement. Toutefois, dans ce travail pionnier, les particules sondées étaient homogènes et de forme sphérique et leur rétrodiffusion étudiée à une seule longueur d'onde ( $\lambda = 355 \text{ nm}$ ). Le traitement de la rétrodiffusion des particules désertiques est a priori plus difficile car la rétrodiffusion des particules non sphériques est généralement plus faible que celle des particules sphériques (Mishchenko, Travis et Lacis 2002<sup>146</sup>). Dans le cadre de cette thèse, et pour la première fois à notre connaissance, nous présentons des mesures du rapport  $F_{22,d}/F_{11,d}$  des coefficients de la matrice de diffusion à l'angle exact de rétrodiffusion pour un ensemble de particules désertiques, inhomogènes et non sphériques, en suspension dans l'air. De plus, la mesure est réalisée simultanément à deux longueurs d'ondes. Ces travaux ont donné lieu à une publication (Miffre et al., 2016<sup>139</sup>).

## 2.2 Méthodologie : Pi-polarimètre (UV, VIS) de laboratoire

### 2.2.1 Pi-polarimètre de laboratoire

Au cours de cette thèse, le montage expérimental développé au cours de la thèse précédente (David, 2013<sup>34</sup>) a été étendu à l'étude simultanée des coefficients de la matrice de diffusion à deux longueurs d'onde. De plus, la précision sur l'évaluation du coefficient  $F_{22,p}/F_{11,p}$  a été accrue, en réduisant les biais et erreurs statistiques affectant cette évaluation, ceci afin de pouvoir adresser la rétrodiffusion optique de particules non sphériques, d'intensité plus faible encore. Les particules générées sont en suspension dans l'air et nous mesurons la distribution de taille en simultanée de la mesure de rétrodiffusion.

La figure 2.1 présente le montage expérimental en vue de dessus : l'axe z est défini par l'axe optique de propagation du laser tandis que l'axe x représente l'axe optique du détecteur, perpendiculaire à l'axe z. Le centre du volume diffusant est séparé de la cavité laser d'une distance  $d = 5$  mètres. La source laser génère des impulsions de durée  $\tau = 5$  ns, inférieure au temps de vol de 40 ns entre l'émission et la détection et une synchronisation avec la sortie de la cavité laser est utilisée pour fixer l'origine de la base de temps. Ce Pi-polarimètre répond aux exigences d'une résolution angulaire élevée assurant la géométrie de rétrodiffusion et d'une sensibilité suffisante pour détecter les signaux de particules en suspension dans l'air. En effet, la géométrie de rétrodiffusion est obtenue en insérant un cube séparateur de polarisation PBC (PBC pour Polarizing Beamsplitter Cube en anglais) sur l'axe optique reliant la source laser au volume diffusant contenant les particules par une procédure d'alignement très précise permettant de positionner le PBC sur l'axe x-optique du détecteur, dans la direction perpendiculaire exacte à l'axe optique d'émission matérialisé par les impulsions laser. L'axe x du détecteur perpendiculaire à l'axe optique z est défini avec une déviation maximale de  $1 \text{ mm} \cdot 10^{-1}$ , correspondant à 0,1 mrad. (David et al., 2013b<sup>33</sup>). La rétrodiffusion des particules est distinguée de la lumière parasite de fond en réalisant des mesures résolues en temps synchronisées avec l'impulsion laser, adressant ainsi le temps de vol ( $\Delta t = 2d/c$ ) nécessaire à une impulsion laser pour atteindre le détecteur après rétrodiffusion par l'ensemble de particules en suspension dans l'air. Etant donné la résolution temporelle nécessaire au discernement de la rétrodiffusion par les particules en suspension (intervalle de temps de la rétrodiffusion des particules proche de  $\tau = 5$  ns), les photoélectrons sont échantillonnés avec un oscilloscope numérique (Le Croy HDO4054, 300 MHz, 12 bits) à une fréquence élevée de 2.5 GS/s afin de pouvoir différencier la rétrodiffusion des particules de celle de l'air ambiant. L'expérience est réalisée dans l'air ambiant de laboratoire car cela évite l'utilisation de parois susceptibles de provoquer un fort signal de rétrodiffusion et de modifier la polarisation des impulsions les traversant. L'air ambiant du laboratoire n'est pas exempt de particules, mais la rétrodiffusion par ces particules peut ainsi être considérée comme faisant partie du signal de fond.

A la sortie de la cavité laser, une lame à retard demi onde  $HWP_E$  (HWP pour half wave plate en anglais) et un cube séparateur de polarisation  $PBC_E$  sont utilisés pour définir précisément la polarisation de l'onde électromagnétique incidente, correspondant au vecteur de Stokes  $[S_{t,inc}] = [1, 1, 0, 0]^T$  et appelé dans la suite polarisation p (pour parallèle au plan de diffusion). L'impulsion laser incidente, après avoir traversé le PBC utilisé pour construire la géométrie de rétrodiffusion, traverse une lame à retard de phase (quart d'onde, QWP). L'intérêt de cette lame est le suivant : sa rotation, qui modifie l'angle  $\Psi$  entre le plan de diffusion et l'axe rapide de la lame, permet de moduler la polarisation de l'onde électromagnétique incidente, de sorte que le signal rétrodiffusé  $S_p$  par les particules du volume diffusant est évalué pour plusieurs valeurs de l'angle  $\Psi$ .

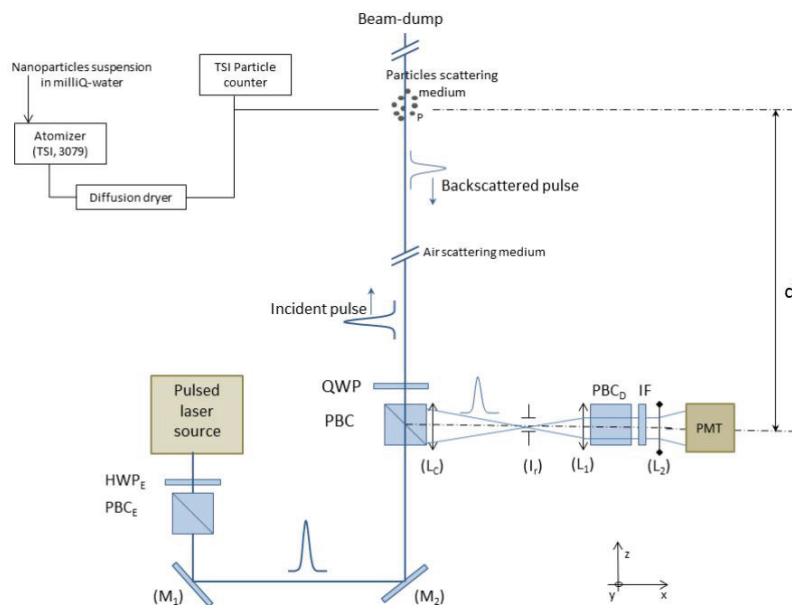


Figure 2.1 Montage expérimental tiré de la thèse de G. David (David, 2013<sup>34</sup>) pour mesurer la rétrodiffusion exacte d'impulsions laser par un ensemble de particules en suspension dans l'air ambiant. L'onde rétrodiffusée, d'une résolution temporelle de l'ordre de la nanoseconde, est détectée après rétro-réflexion sur un PBC.

Le détecteur est identique à celui utilisé dans la thèse précédente (David, 2013<sup>34</sup>) : il est composé d'un second PBC ( $PBC_D$ ), d'une lentille collectrice, de deux lentilles supplémentaires, d'un filtre interférentiel (IF pour interferential filter en anglais) et d'un tube photomultiplicateur (PMT). L'iris I (diamètre  $\varnothing = 1\text{mm}$ ) est utilisé pour limiter la quantité de lumière parasite collectée qui a été évaluée dans la publication de David et al., 2013b<sup>33</sup>. La lentille convergente ( $L_1$ ) est utilisée pour paralléliser le rayonnement de rétrodiffusion avant son passage par le  $PBC_D$  dont l'angle de réception est égal à  $2^\circ$ . La lentille divergente ( $L_2$ ) est utilisée pour focaliser les photons rétrodiffusés sur la photocathode du PMT. Le rôle du PBC et de l'IF présents dans la voie de détection sont explicités dans le paragraphe consacré à l'étude des erreurs ci-après. Dans le cadre d'une thèse précédente (David, 2013<sup>34</sup>), un programme numérique, basé sur l'optique géométrique, a été mis au point pour analyser le produit  $\Delta\Omega \times \eta$  de l'angle solide de détection par l'efficacité de collection en fonction des paramètres optiques du montage et de la position  $P(x,y,z)$  de l'élément diffusant par rapport

à l'axe z. Pour l'ensemble des paramètres de notre montage expérimental,  $\eta$  atteint 100 % pour une distance de 4 mètres entre le volume diffusant et le détecteur. Lorsque le point de diffusion P dévie de l'axe optique de  $\Delta x = \pm 5$  mm, un rendement de 100 % est obtenu pour  $\emptyset = 1$  mm dès que d est supérieur à 5 mètres. Ainsi, le polarimètre couvre exactement la direction de rétrodiffusion avec une précision définie par le champ de vue détecteur, à savoir  $\theta = \pi \pm \varepsilon$  avec  $\varepsilon = 3,5 \times 10^{-3}$  rad, correspondant à  $\theta = 180.0 \pm 0.2^\circ$ .

### 2.2.2 Evaluation du rapport $F_{22,p}/F_{11,p}$

La mesure de rétrodiffusion consiste en deux étapes, le signal de diffusion S est mesuré en l'absence des particules ( $S = S_0$ ), puis en leur présence. Le signal de rétrodiffusion des particules  $S_p$  est ainsi obtenu en soustrayant  $S_0$  à S, de sorte que  $S_p = S - S_0$ .

Le signal  $S_0$  est dû à la rétrodiffusion de l'air ambiant et à la réflexion partielle de l'impulsion laser incidente sur les composants optiques tels que la QWP ou le PBC. Si l'impulsion est émise à un instant  $t_0$ , le signal de rétrodiffusion des particules  $S_p(t)$  n'est non nul que lorsque  $t = t_0 + \Delta t$ , où  $\Delta t = 2d/c$  représente le temps de vol de l'impulsion laser de la cavité laser au détecteur, après rétrodiffusion par l'ensemble de particules incluses dans le volume diffusant situé à une distance d. Lorsque la durée d'impulsion laser  $\tau$  est prise en compte, la rétrodiffusion se produit le long de la direction de propagation z sur une longueur  $L = c\tau / 2$  qui définit l'extension spatiale du volume de rétrodiffusion dans la direction z. Dans le cadre des matrices de Mueller, dans l'approximation de la diffusion simple et de champ lointain, le vecteur de Stokes  $[St_p]$  du rayonnement de rétrodiffusion des particules à l'instant  $(t_0 + \Delta t)$  se rapporte au vecteur de Stokes  $[St_i](t_0)$  d'une impulsion laser émise à l'instant  $t_0$  comme suit :

$$[St_p](t_0 + \Delta t) = \frac{\eta P_0}{2d^2} [M_p] \times [St_i](t_0) \quad (2.1)$$

Où d représente donc la distance entre le centre du volume diffusant et le détecteur,  $\eta / d^2$  désignant l'angle solide de collection ( $\eta$  est l'efficacité de détection optoélectronique) et  $P_0$  est la puissance incidente du laser.

Le signal de rétrodiffusion des particules  $S_p$  correspond à la première composante du vecteur de Stokes  $[St_p]$  puisque le détecteur mesure l'intensité lumineuse, de sorte que  $S_p$  est obtenu par projection du vecteur  $[St_p]$  sur le vecteur  $[1, 0, 0, 0]^T$ . La matrice  $[M_p]$  est la matrice de Mueller qui décrit la modification de l'état de polarisation de l'impulsion laser lors de sa propagation. L'utilisation du formalisme de la matrice de Mueller permet de décomposer la matrice  $[M_p]$  en produit des matrices successives de Mueller rencontrées par l'impulsion laser lors de sa propagation. La matrice Mueller  $[M_E]$  de l'optique d'émission, composée d'une PBC et d'une QWP, est dérivée de (Schurclif 1996<sup>210</sup>):

$$[M_E] = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos^2(2\Psi) & \sin(4\Psi)/2 & -\sin(2\Psi) \\ 0 & \sin(4\Psi)/2 & \sin^2(2\Psi) & \cos(2\Psi) \\ 0 & \sin(2\Psi) & -\cos(2\Psi) & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} T_p & T_p & 0 & 0 \\ T_p & T_p & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 2T_s^{1/2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 2T_s^{1/2} \end{bmatrix} \quad (2.2)$$

Dans la géométrie de rétrodiffusion, les mêmes composantes optiques {PBC + QWP} sont traversées après la rétrodiffusion des particules dans la direction opposée (-k). En conséquence, la matrice de Mueller  $[M_R]$  de l'optique de réception peut être dérivée de l'équation (2.2) en modifiant l'ordre de passage et en changeant l'angle  $\psi$  en son opposé (nous remplaçons  $T_p$  par  $R_s$  et les imperfections du PBC sont maintenant adressées par son coefficient  $R_p \ll 1$ ):

$$[M_R] = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} R_s & R_s & 0 & 0 \\ R_s & R_s & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 2R_p^{1/2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 2R_p^{1/2} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos^2(2\Psi) & -\sin(4\Psi)/2 & \sin(2\Psi) \\ 0 & -\sin(4\Psi)/2 & \sin^2(2\Psi) & \cos(2\Psi) \\ 0 & -\sin(2\Psi) & -\cos(2\Psi) & 0 \end{bmatrix} \quad (2.3)$$

L'utilisation d'un second PBC à l'émission et dans le détecteur permet de minimiser la diaphonie de polarisation, qui est égale à  $R_p \times T_s$ , jusqu'à un odg de  $10^{-5}$ . On peut donc écrire  $T_s = R_p = 0$  et  $T_p = R_s = 1$ . Entre  $[M_E]$  et  $[M_R]$ , la propagation de l'impulsion laser incidente dans le milieu environnant est décrite par les matrices  $T_{air,k}$  et  $T_{air,-k}$ , où  $\vec{k} = \frac{2\pi}{\lambda} \vec{z}$  est le vecteur d'onde incident ( $\vec{z}$  est le vecteur unitaire dans la direction z). Comme l'a montré K. Sassen (2005), l'extinction n'est pas sensible à l'état de polarisation de la lumière. Ainsi, les matrices de Mueller  $T_{air,k}$  et  $T_{air,-k}$  associées au milieu environnant l'air ne modifient pas l'état de polarisation de l'impulsion laser incidente. On a donc :

$$[M_p] = [M_r] \times [F_p] \times [M_e] \quad (2.4)$$

La rétrodiffusion des particules est prise en compte à travers la matrice de diffusion de l'ensemble de particules  $[F_p]$  introduite au chapitre 1. Dans le cas présent, notre polarimètre de laboratoire satisfait aux approximations de champ lointain, de diffusion simple et d'orientation aléatoire des particules. Comme nous sommes dans la géométrie exacte de rétrodiffusion, on a (cf. chapitre 1) :

$$[F_p] = \begin{bmatrix} F_{11,p} & 0 & 0 & F_{14,p} \\ 0 & F_{22,p} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -F_{22,p} & 0 \\ F_{14,p} & 0 & 0 & F_{11,p} - 2F_{22,p} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} I_{inc} \\ Q_{inc} \\ U_{inc} \\ V_{inc} \end{bmatrix} \quad (2.5)$$

Ainsi :

$$S_p(\Psi) = \frac{\eta P_0}{2d^2} (a_p - b_p \cos(4\Psi)) \quad (2.6)$$

où les coefficients  $a_p$  et  $b_p$  ne dépendent que de  $F_{11,p}$  et  $F_{22,p}$  :

$$2a_p = (F_{11,p} + F_{22,p}) \quad (2.6.a)$$

$$2b_p = (3F_{22,p} - F_{11,p}) \quad (2.6.b)$$

Ainsi, la mesure précise de  $a_p$  et de  $b_p$  permet d'évaluer le rapport des coefficients  $f_{22,p}$  :

$$\frac{F_{22,p}}{F_{11,p}} = \frac{a_p + b_p}{3a_p - b_p} \quad (2.7.a)$$

En pratique (chapitres 3 et 4), deux cas d'étude sont particulièrement importants, celui des particules sphériques (s) et celui des particules non-sphériques (ns). Dans le cas d'un ensemble compris uniquement de particules sphériques ou non sphériques, on écrit ainsi :

$$S_s(\Psi) = \frac{\eta P_0}{2d^2} (a_s - b_s \cos(4\Psi)) \quad (2.6.c)$$

$$S_{ns}(\Psi) = \frac{\eta P_0}{2d^2} (a_{ns} - b_{ns} \cos(4\Psi)) \quad (2.6.d)$$

On obtient ainsi le rapport  $F_{22,ns}/F_{11,ns} = F_{22,d}/F_{11,d}$  pour des particules désertiques :

$$\frac{F_{22,d}}{F_{11,d}} = \frac{a_d + b_d}{3a_d - b_d} \quad (2.7.b)$$

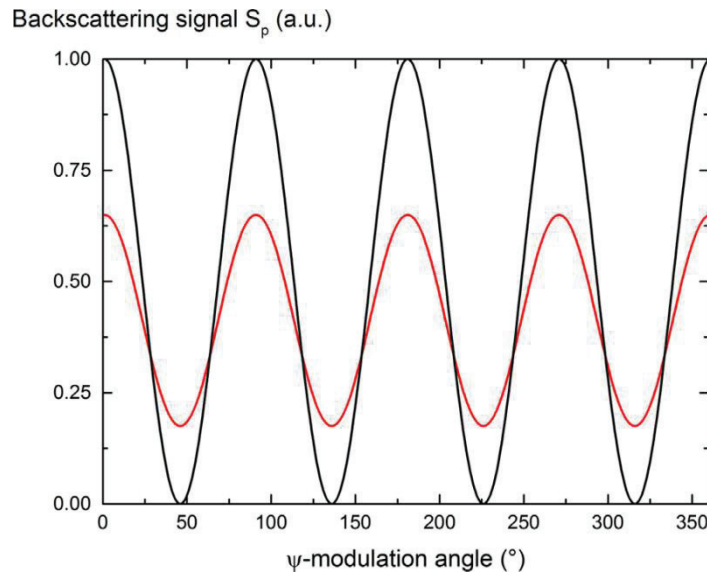


Figure 2.2 Simulation numérique du signal de rétrodiffusion  $S_p$  en fonction de l'angle de modulation de la QWP pour des particules sphériques (courbe noire) et des particules non sphériques en orientation aléatoire (courbe rouge). Pour mettre en évidence la faible amplitude de  $S_p$  pour les particules non sphériques,  $S_p$  a été normalisé à son maximum pour les particules sphériques.

La figure 2.2 représente la fonction  $S_p(\Psi)$  pour des particules sphériques (courbe noire) pour lesquelles  $F_{22,ns}/F_{11,ns} = 1$  et pour des particules non sphériques (courbe rouge), pour

lesquelles on a choisi  $F_{22,ns} / F_{11,ns} = 0.5$ . Les minima de  $S_p$  sont égaux à  $a_p - b_p = F_{11,p} - F_{22,p}$  et peuvent donc être utilisés comme métrique de la déviation de l'ensemble statistique de particules à l'isotropie. On note également que plus le rapport des coefficients de la matrice de diffusion diminue, plus le signal de rétrodiffusion  $S_p$  est faible, comme on pouvait l'attendre (Kahnert et al., 2014<sup>85</sup>). Ainsi, lorsque la non-sphéricité des particules est très marquée, les maxima et minima du signal de rétrodiffusion peuvent être difficiles à distinguer. Il s'ensuit que, pour pouvoir évaluer avec précision le rapport  $F_{22,d} / F_{11,d}$  pour un ensemble de particules désertiques en suspension dans l'air, la génération doit être particulièrement stable, ceci afin de pouvoir attribuer tout changement d'amplitude à la modulation associée à la variation de la polarisation incidente.

### 2.2.3 Précision et sensibilité du Pi-polarimètre (UV, VIS)

Ce paragraphe évalue la précision de la mesure de  $F_{22,p}/F_{11,p}$  en listant les erreurs systématiques et statistiques associées à cette mesure de laboratoire. Un soin particulier est porté à décrire les améliorations apportées au dispositif expérimental dans ce domaine et à l'ajout d'une longueur d'onde (Pi-polarimètre UV, VIS).

#### (a) Erreurs systématiques

##### i/ Effet d'une polarisation incidente imparfaitement définie

Le laser incident présente un haut degré de polarisation linéaire, supérieur à 100:1. Puis l'impulsion passe à travers un PBC améliorant ce degré d'un facteur supérieur à 250:1 (dans l'UV et dans le VIS). Par conséquent, le laser émis a une polarisation linéaire avec un degré supérieur à 25000:1. Par ailleurs, comme les axes de polarisation de l'émetteur et du récepteur sont définis par le PBC, ils ne peuvent pas être désalignés. Néanmoins, nous pouvons considérer le cas où la polarisation de l'onde électromagnétique incidente s'écarte d'un faible angle epsilon par rapport au plan de diffusion, i.e.  $[St_i] = [1, \cos(2\varepsilon), \sin(2\varepsilon), 0]^T$ , à la suite du cube rétrodiffusant. En reprenant le calcul des matrices de Mueller, on obtient le signal de rétrodiffusion suivant :

$$S_p(\Psi) = \frac{\eta P_0}{2d^2} (a_p - b_p \cos(4\Psi - 2\varepsilon)) \quad (2.8)$$

Ainsi, même si le laser émis n'avait pas une polarisation linéaire défini à 25000:1, le signal de rétrodiffusion ne connaîtrait pas de modification à l'exception d'un décalage de sa période. Cela est dû à la géométrie de rétrodiffusion exacte du polarimètre (assurant une simplification de la matrice de diffusion) et à l'utilisation d'une lame quart d'onde qui module toute polarisation linéaire incidente de la même façon (seul l'axe lent de la lame quart d'onde sera décalé).



## ii/ Effet d'une diaphonie en polarisation

Le cube rétro réflecteur possédant ses propres limitations ( $T_p/T_s = 250:1$  dans l'UV,  $500 :1$  dans le VIS), la lumière rétrodiffusée détectée ne correspond pas exclusivement à la composante s de l'onde rétrodiffusée. Afin d'éviter cette diaphonie en polarisation, un second cube polariseur (PBC<sub>0</sub>) a été ajouté sur l'axe optique du détecteur. La diaphonie de polarisation, réduite à  $R_p \times T_s$ , est ainsi de l'ordre de quelques  $10^{-5}$  (1 photon polarisé p pour  $10^5$  photons polarisés s) (David et al., 2013b<sup>33</sup>). Il s'en suit que seule la composante s (pour polarisation perpendiculaire au plan de diffusion) de l'onde électromagnétique rétrodiffusée est détectée.

## iii/ Effet d'une diaphonie spectrale

La figure 2.3 présente le schéma du Pi-polarimètre (UV, VIS) construit. Outre sa géométrie de rétrodiffusion, son originalité est de permettre l'évaluation simultanée du rapport  $F_{22,p}/F_{11,p}$  à deux longueurs d'onde (UV, VIS). Ceci permet d'analyser la dépendance spectrale de la rétrodiffusion optique pour un aérosol donné, c'est à dire pour la même distribution de taille et la même distribution de forme. Afin de s'assurer qu'il n'y a pas de diaphonie de longueur d'onde, des filtres interférentiels (IF) avec des bandes passantes de 1 nm sont utilisés pour chaque voie de détection (IF de 355 nm pour l'UV et de 532 nm dans le VIS). Le filtre interférentiel a ainsi un rôle essentiel d'élimination de la contribution non élastique du signal de rétrodiffusion et pour assurer qu'il n'y ait pas de diaphonie de longueur d'onde. Comme montré par Miffre et al. (David et al. 2012<sup>31</sup>), il permet également de minimiser la contribution moléculaire au signal de rétrodiffusion détecté, ce qui améliore le rapport signal sur bruit du signal de rétrodiffusion des particules.

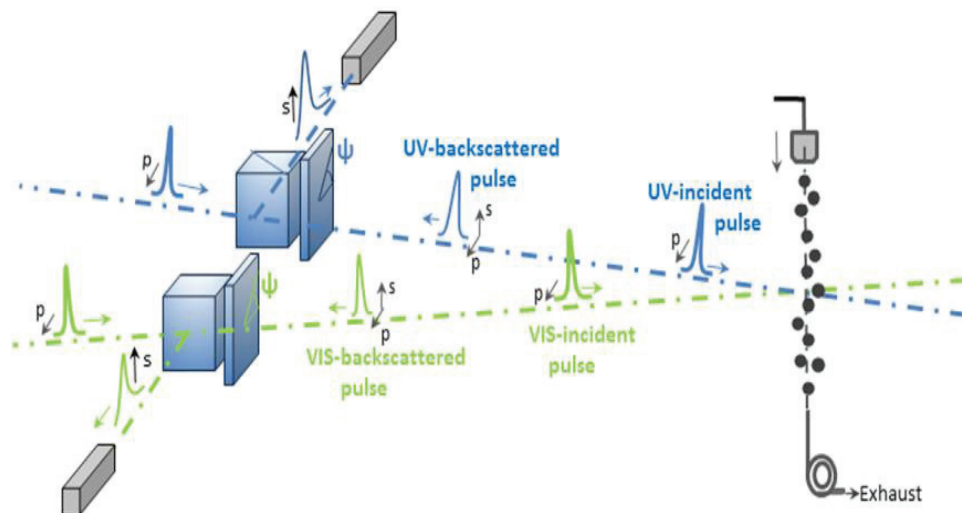


Figure 2.3 Expérience de laboratoire UV-VIS pour traiter le rapport de dépolarisation à un angle de rétrodiffusion exact. Les erreurs systématiques de la dépendance spectrale du rapport des coefficients de la matrice de diffusion sont minimisées en mesurant le même ensemble de particules (taille, forme, composition chimique) aux deux longueurs d'onde simultanément grâce à une procédure d'alignement précise ( $\theta = 180,0 \pm 0,2^\circ$ , aux deux longueurs d'onde). Les composantes de polarisation (p, s) des rayonnements incidents et rétrodiffusés sont données.

#### iv/ Diffusion multiple

Pour mesurer avec précision la rétrodiffusion à partir de particules sub-micrométriques non sphériques, un nombre important de particules est requis, ce qui peut conduire à une diffusion multiple, cette dernière provoquant une variation des coefficients de la matrice de diffusion. Cependant, nous allons voir au paragraphe suivant que la validation du montage avec des particules sphériques semble infirmer la possibilité d'une diffusion multiple (cf. section 2.2.4). Par ailleurs la profondeur optique d'extinction est réduite dans notre expérience de rétrodiffusion car les particules ne sont pas fixées dans une chambre mais se déplacent dans un faisceau de 2,5 mm de large (largeur de la buse). De plus, selon (Mishchenko et al. 2007<sup>149</sup>), pour que l'hypothèse de diffusion unique soit valide, la distance moyenne entre les particules voisines  $\langle d \rangle$  doit être suffisamment grande pour que  $k_1 \langle d \rangle$  dépasse nettement l'unité ( $k_1$  est le nombre d'onde du milieu environnant). Une estimation numérique de  $\langle d \rangle$  est donnée dans (Mishchenko et al., 2004<sup>147</sup>) en utilisant un générateur aléatoire pour placer aléatoirement 1000 gouttelettes dans un volume de  $1 \text{ cm}^3$  tel que  $\langle d \rangle$  est égale à 560 nm. Dans notre expérience, la concentration en particules est plus élevée et atteint  $9,7 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-3}$  pour la SD-a ( $9,0 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-3}$  pour SD-b). Pour  $10^5 \text{ cm}^{-3}$ , considérant que  $\langle d \rangle$  suit une relation inversement linéaire avec la concentration des particules, une hypothèse plutôt pessimiste, nous obtenons  $k_1 \langle d \rangle = 66$  pour  $\lambda = 532 \text{ nm}$  (91 pour  $\lambda = 355 \text{ nm}$ ). Par conséquent, l'approximation par diffusion unique est relativement sûre dans notre expérience.

#### (b) Erreurs statistiques

Les erreurs systématiques étant circonscrites, on s'intéresse dans ce paragraphe à la réduction de l'erreur statistique, ce qui est décisif, en particulier pour des particules non-sphériques où l'intensité de la rétrodiffusion est plus faible. À cette fin, plusieurs améliorations ont été apportées au montage expérimental. Pour minimiser les erreurs statistiques dues aux fluctuations des impulsions laser, un laser stable (source laser pompée par diode), avec un taux de répétition de 1 kHz a été implémenté comme source de notre polarimètre. Avec un taux de répétition des impulsions laser de 1 kHz, les données sont acquises en moins de trois minutes lorsque l'on moyenne les signaux détectés sur un millier d'impulsions laser afin de minimiser les erreurs statistiques. Ceci permet de réduire la sensibilité de l'expérience aux fluctuations du nombre de particules générées. De plus, pour minimiser les fluctuations en nombre de particules, un générateur de particules solides a été construit et une mesure de la distribution de taille a été effectuée en parallèle à la mesure de rétrodiffusion, comme détaillé dans la section 3.1 de ce chapitre. En parallèle, les signaux sont normalisés par la concentration en nombre de particules mesurée.

Afin d'améliorer la précision sur l'évaluation du rapport  $F_{22,p}/F_{11,p}$ , la plage angulaire accessible à la lame quart d'onde a été étendue de seulement  $12^\circ$  lors de la thèse précédente à  $360^\circ$ . La rétrodiffusion peut maintenant être adressée pour un ensemble plus

complet de polarisations incidentes, allant de la polarisation linéaire (obtenue pour  $\psi = 0$ ) à la polarisation circulaire ( $\psi = 45^\circ$ ). Le rapport des coefficients de la matrice de diffusion est donc maintenant évalué sur 180 points (0-360° avec un pas angulaire de 2°), au lieu de 12 (David et al., 2013b<sup>33</sup>) (0-12° avec un angle de 1°). Cela permet non seulement de réduire considérablement les erreurs statistiques mais aussi de vérifier qu'il n'y a pas de variation de la puissance du laser ou de la concentration des particules au cours des expériences. Dit autrement, toute variation de l'un ou de l'autre entraînerait une variation des maxima du signal rétrodiffusé mesuré. Comme le montre la Figure 2.2, ces maxima sont au nombre de 4 pour une rotation complète de la lame quart d'onde.

## 2.2.4 Validation du montage expérimental

L'expérience de rétrodiffusion résolue en polarisation réalisée simultanément dans l'UV et dans le VIS a été validée en considérant un ensemble de gouttelettes d'eau de forme sphérique. On utilise des particules sphériques comme référence car  $F_{22,s}/F_{11,s} = 1$  aux deux longueurs d'onde, en accord avec la théorie de Mie (Mie, 1908<sup>132</sup>). Les gouttelettes d'eau sphériques sont générées avec un nébuliseur commercial fournissant une distribution de taille spécifiée (TSI, modèle 3079). Le rayonnement rétrodiffusé des particules sphériques  $S_s(t)$  est déterminé en soustrayant  $S_0$  de  $S(t)$ , où  $S_0$  est le signal de fond détecté, comme détaillé dans la section précédente.  $S_0$  dépend de  $\psi$  et  $\lambda$  et peut être enregistré en fonction du temps avant l'expérience de rétrodiffusion car la diffusion de l'air ambiant est constante pendant plusieurs heures puisque le laboratoire est conditionné.

La figure 2.4 représente la mesure expérimentale de la variation du signal  $S_s(t)$  en fonction de l'angle de modulation de la QWP aux deux longueurs d'ondes considérées (courbe bleue 355 nm, courbe verte 532 nm). Les deux courbes ne sont pas en phase car les axes lents des deux QWP sont différents. Les deux courbes présentent des minima, égaux à zéro, montrant l'égalité des coefficients de la matrice de diffusion des gouttelettes d'eau sphériques, en accord avec la théorie.

Pour être quantitatifs, nous avons ajusté les courbes UV et VIS et leurs minima et maxima successifs respectifs en utilisant Eq. (2.6) pour retrouver les coefficients a et b et donc le rapport des coefficients de la matrice de diffusion :

$$\frac{F_{22,s}}{F_{11,s}}(\lambda = 355\text{nm}) = 0.995 \pm 0.006 \quad (2.9.a)$$

$$\frac{F_{22,s}}{F_{11,s}}(\lambda = 532\text{nm}) = 1.003 \pm 0.006 \quad (2.9.b)$$

Avec des  $\chi^2$  supérieur à 99,9% et des courbes résiduelles ne présentant pas de structure particulière. L'égalité  $F_{22,s} = F_{11,s}$  est indiqué par le fait que les deux courbes passent par 0. Au débit de particules (3 L.min<sup>-1</sup>) et au diamètre de la buse (2,5 mm) considérés, cela

implique que la diffusion multiple est négligeable (Mishchenko et al. 2004<sup>147</sup>). Cette mesure valide donc notre montage expérimental simultanément dans l'UV et le VIS.

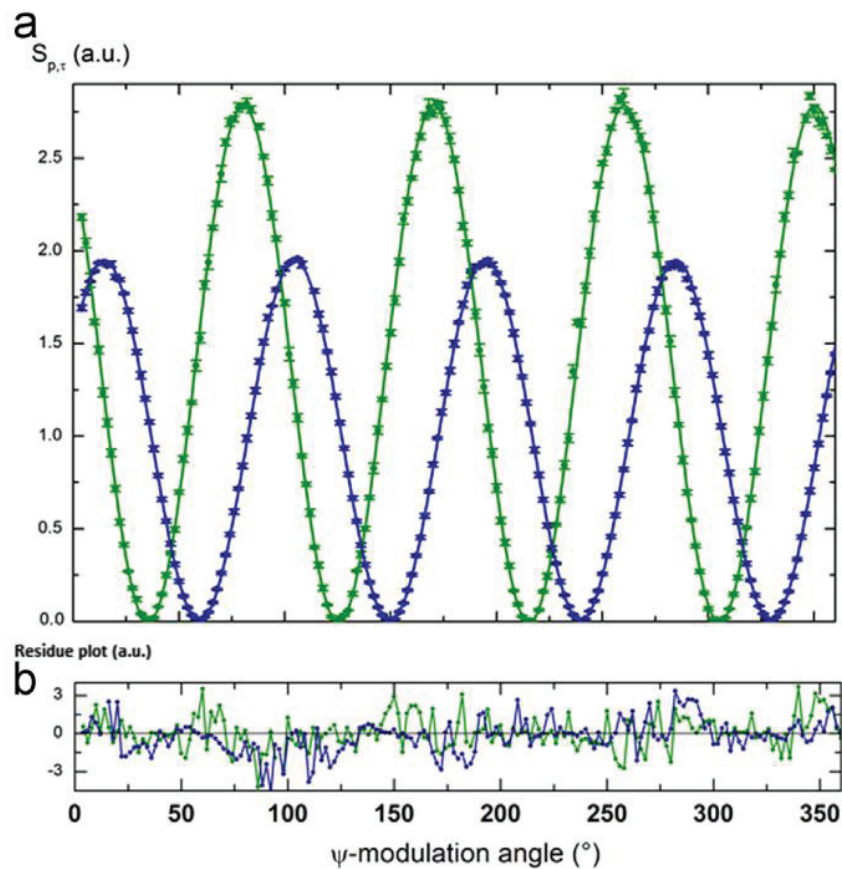


Figure 2.4 Signal de rétrodiffusion UV-VIS de particule intégrée dans le temps  $S_s$  (u.a) en fonction de l'angle de modulation pour les gouttelettes d'eau sphériques aux longueurs d'onde UV (bleue) et VIS (verte). Les barres d'erreur sont calculées en faisant la moyenne de  $S_s$  sur les 1000 impulsions laser. Les courbes UV et VIS se rapportent aux mêmes particules et sont ajustées avec Eq. (2.6) pour évaluer le rapport des coefficients de la matrice de diffusion. (b) Tracé de la courbe résiduelle associé à la mesure.

## 2.3 Résultats expérimentaux avec le Pi-polarimètre (UV, VIS)

### 2.3.1 Composition chimique et distribution de taille des particules désertiques générées

#### (a) Composition chimique

Les particules désertiques sont constituées d'un mélange hétérogène de divers composants chimiques auxquels la silice, l'aluminium et les oxydes de fer contribuent principalement et dont les proportions relatives dépendent de la région source. Dans le cadre de notre étude, nous avons choisi comme proxy l'Arizona Test Dust (ATD) qui est couramment utilisé dans la littérature comme proxy (Dupart et al., 2012<sup>50</sup>, Glen et Brooks, 2013<sup>59</sup>, Keskinen et al.,

2014<sup>93</sup>) car ces particules présentent une inhomogénéité et une complexité dans leurs morphologies conformément à ce qu'on peut attendre d'un échantillon de particules désertiques après un long transport. Le tableau 2-1 présente les fractions massique des différents composants de l'ATD fournis par le fabricant (Powder Tech inc.) et qui ont été vérifiées dans une étude précédent les travaux de cette thèse (Dupart et al., 2012<sup>50</sup>).

Constituent	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	K <sub>2</sub> O	Na <sub>2</sub> O	MgO	TiO <sub>2</sub>
Weight % (Powder Tech.)	68.0–76.0	10.0–15.0	2.0–5.0			2.0–4.0	1.0–2.0	0.5–1.0
Weight % [4]	77.20	8.13	2.00	2.38	2.41	1.40	0.66	0.33

Tableau 2-1 Composition chimique (en pourcentage massique) d'Arizona Test Dust (ATD) ultrafine tel que fourni par le fabricant (Powder Tech Inc.) et tel que mesuré expérimentalement (Dupart et al., 2012<sup>50</sup>).

La connaissance de la composition chimique de l'ATD permet notamment de discuter de l'indice de réfraction des particules à l'étude, ce qui est nécessaire puisque l'indice de réfraction est un paramètre d'entrée des simulations numériques. Notre étude étant réalisée à deux longueurs d'onde, la dépendance spectrale de l'indice de réfraction des particules doit être prise en compte. Comme la Silice (SiO<sub>2</sub>) est le composant principal de l'ATD, on pourrait approximer son indice par l'indice de réfraction du quartz qui vaut 1.56 à 355 nm et 1.54 à 532 nm (Ghosh, 1999<sup>61</sup>). Néanmoins, pour essayer de s'approcher le plus possible de l'indice réel de l'ATD, en prenant en compte son inhomogénéité, nous pouvons utiliser les fractions massique présentées Tableau 2-1 afin de calculer l'indice effectif de l'ATD. Si l'on considère que les particules désertiques sont principalement composées de silice avec une inclusion principale d'alumine (85 % SiO<sub>2</sub> 15 % Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> en fraction massique), on peut appliquer le modèle effectif de Maxwell Garnett pour obtenir la partie réelle de l'indice de réfraction effectif selon (Kahnert 2015<sup>86</sup>) :

$$m_{\text{eff}} = \sqrt{m_1^2 \frac{m_1^2 \cdot 2(1-f) + m_2^2(1+2f)}{m_1^2(2+f) + m_2^2(1-f)}} \quad (2.10)$$

Où  $m_1$  est la partie réelle de l'indice de réfraction de la silice et  $m_2$  la partie réelle de l'indice de réfraction de l'alumine et  $f$  la fraction volumique de l'alumine.

Sachant que les masses volumiques de la silice et de l'alumine sont respectivement de 2.2 g.cm<sup>-3</sup> et 3.987 g.cm<sup>-3</sup>, on trouve une fraction volumique de 8.9 % pour l'alumine. La littérature indique un indice de l'Alumine de 1.73 dans l'UV et de 1.72 dans le VIS (Query, 1985<sup>183</sup>). On a ainsi un indice réel de 1.57 dans l'UV et de 1.55 dans le VIS. Afin de vérifier la validité de ce modèle, nous avons également appliqué la formule de Bruggeman (Markel, 2016<sup>123</sup>) qui permet de calculer l'indice de réfraction effectif pour N inclusions. Nous l'appliquons pour une particule composée principalement de silice avec des inclusions d'hématite (masse volumique 5.242 g.cm<sup>-3</sup>, indice de 2.20 à 355 nm et de 2.88 à 532 nm (Query, 1985<sup>183</sup>)) et d'alumine. Même en surestimant la fraction massique d'hématite (80 % SiO<sub>2</sub>, 15 % Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 5 % Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> en fraction massique ce qui correspond à 89 % SiO<sub>2</sub>, 8.9 % Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et

2,1 % Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> en fraction volumique), on trouve un indice réel de 1.58 dans l'UV et dans le VIS. Etant donné l'indice extrême de l'hématite et sa très faible variabilité même lorsque sa fraction massique est surestimée, nous retenons pour valeurs d'indice réel de réfraction de l'ATD de 1.57 (resp. 1.55) dans l'UV (resp. VIS).

La partie imaginaire de l'indice de réfraction de l'ATD et sa dépendance spectrale sont cependant actuellement peu connues. En l'absence de mesures complémentaires, nous avons utilisé les tables fournies par Sokolik et al. (1993) comme littérature de référence. Ces auteurs ont trouvé que la partie imaginaire de l'indice de réfraction complexe des particules désertiques est plus élevée dans la gamme spectrale UV. Pour être représentatif de l'ATD, nous avons choisi des valeurs intermédiaires parmi la collection de leurs échantillons de particules désertiques, c'est-à-dire 10<sup>-2</sup> à 355 nm et 5 x 10<sup>-3</sup> à 532 nm. Ainsi, on retient comme valeurs d'indice de réfraction dans l'UV et dans le VIS pour l'ATD :

$$m_{UV} = 1.57 + 10^{-2}i \quad (2.11.a)$$

$$m_{VIS} = 1.55 + 5 * 10^{-3}i \quad (2.11.b)$$

### **(b) Distribution de taille**

Un générateur de particules désertiques idéal devrait produire des répliques exactes des particules atmosphériques après leur transport jusqu'à Lyon. Hors comme nous l'avons noté précédemment les particules désertiques présentes dans l'atmosphère présentent une grande variabilité de formes, de taille et de composition chimique suivant leurs régions d'origine et leurs parcours dans l'atmosphère. Dans la littérature, la plupart des générateurs commerciaux utilisés présentent des problèmes pour produire des particules sèches et de tailles représentatives d'un long transport dans l'atmosphère. Pour produire des particules désertiques représentatives des aérosols atmosphériques présents dans la troposphère libre, la fraction submicroniques (particules de diamètre inférieur à 1 µm) des particules désertiques est favorisée (cf figure 1.5). Pour reproduire partiellement les conditions atmosphériques, notre générateur a été construit par l'équipe pour générer des particules solides en suspension dans l'air. Afin d'éviter l'absorption d'eau par les particules (l'hygroscopie peut modifier les propriétés optiques des particules à l'étude et donc la matrice de diffusion de l'ensemble), le flux d'air généré est propre et séché par une colonne. La figure 2.5 présente un schéma de notre génération de particules. On peut voir que le débit du flux d'air séché est maintenu constant à l'aide d'un débitmètre réglable nous permettant par ailleurs de faire varier la quantité de particules désertiques soulevées à l'intérieur d'un flacon où elles sont maintenues en agitation par un agitateur mécanique. Une fois que les particules désertiques ont été soulevées, le flux d'air est injecté dans un flacon vide de 2 L qui éliminent par sédimentation les particules de diamètre supérieur à 1 µm immédiatement suivi d'un cyclone qui va couper toutes les particules de diamètre supérieur à 800 nm. L'échantillon de particules en suspension dans l'air passe alors par une buse de 2.5 mm de diamètre et sa distribution de taille est mesurée avant son évacuation à l'aide d'un spectromètre de mobilité électrique (SMPS).

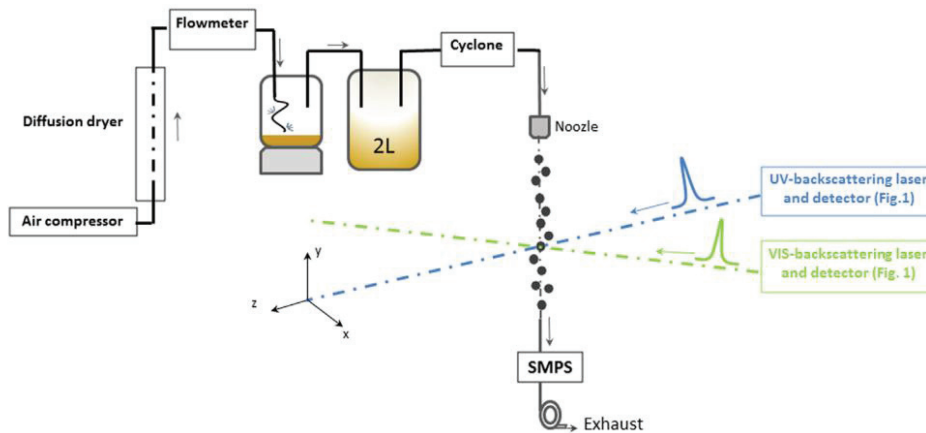


Figure 2.5 Principe de notre générateur d'aérosol solide. Les conditions atmosphériques (particules soufflé par le vent) sont partiellement reproduites en soufflant les échantillons de poussière (particules ATD) avec de l'air nettoyé et séché. Le débit de particules est maintenu constant avec un débitmètre régulé tandis que les particules ayant des tailles supérieures à 800 nm sont éliminées par la bouteille de 2L et le cyclone de coupure de 800 nm avant qu'elles ne traversent le volume d'échantillon à partir d'une buse de 2,5 mm. La taille des particules générées est mesurée avec le SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer), dont l'entrée est située immédiatement après le volume d'échantillon.

Pour mesurer la taille des particules ATD générées, un instrument avec une plage de taille atteignable inférieure au micron est nécessaire. Nous avons préféré mesurer la taille des particules générées avec un spectromètre de mobilité électrique car de nombreux spectromètres se basent sur la théorie de Mie pour déduire les volumes équivalents, ce qui peut induire des biais dans le cas d'une étude sur des particules présentant des formes qui sont globalement éloignées de la symétrie sphérique (Curtis et al., 2008<sup>27</sup>). Un SMPS est principalement composé d'une source de rayons X destinée à charger les particules, d'un classificateur électrostatique pour sélectionner les particules en fonction de leur mobilité électrique, puis d'un compteur de particules ultrafine pour mesurer la concentration en nombre des particules de tailles comprises entre 10 et 800 nm (diamètre de coupure de notre cyclone). L'entrée du SMPS est située immédiatement après le volume d'échantillon. De cette manière, les distributions de tailles de particules (SD, de l'anglais particles size distribution) sont mesurées en temps réel, c'est-à-dire lorsque la rétrodiffusion se produit. Avec la configuration montrée sur la figure 2.5, deux SD ont été générés, étiquetés comme (a) et (b), qui sont montrés sur la figure 2.6. Les deux SD peuvent être ajustés à des log-normal, dont les caractéristiques (diamètre moyen, écart type) sont données figure 2.6 sous les tracés des distributions de taille.

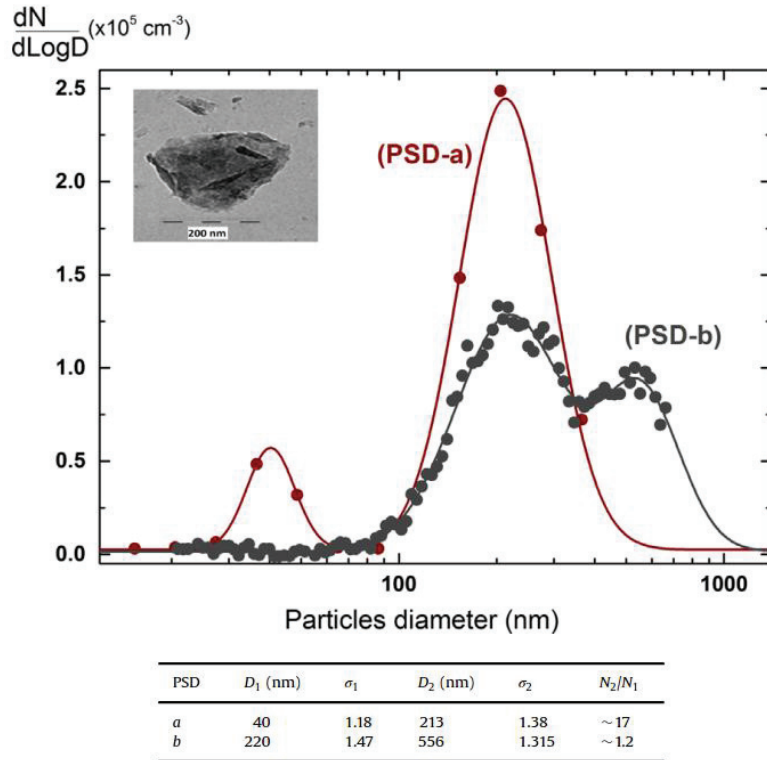


Figure 2.6 Distributions de tailles de particules (SD) des particules ATD g n r es pour des d bits diff rents, mesur es en temps r el avec un SMPS situ  immediatement apr s le volume d' chantillon. Les deux SD sont dot es d'une double distribution de taille log-normale, dont les param tres sont donn s dans le Tableau. L'encart est une image TEM des particules d sertiques g n r es, observ es avec un microscope JEOL.

### 2.3.2 R trodiffusion dans l'UV-VIS d'un ensemble de particules d'ATD

La figure 2.7 repr sente les variations mesur es du signal de r trodiffusion  $S_d$  en fonction de l'angle de modulation  $\psi$  dans l'UV et le VIS pour la SD-a. Comme pour les gouttelettes d'eau sph riques, la quantit  trac e est l'int grale dans le temps de  $S_d$  pour tenir compte de la r trodiffusion sur toute la dur e d'impulsion laser  $\tau$ . Contrairement aux particules sph riques, les minima des signaux de r trodiffusion ne sont pas nuls, que ce soit dans UV ou le VIS, en raison de la non-sph ricit  des particules d sertiques (ici notre proxy, l'ATD). La figure 2.8 est l'analogie de la figure 2.7 pour la SD-b.



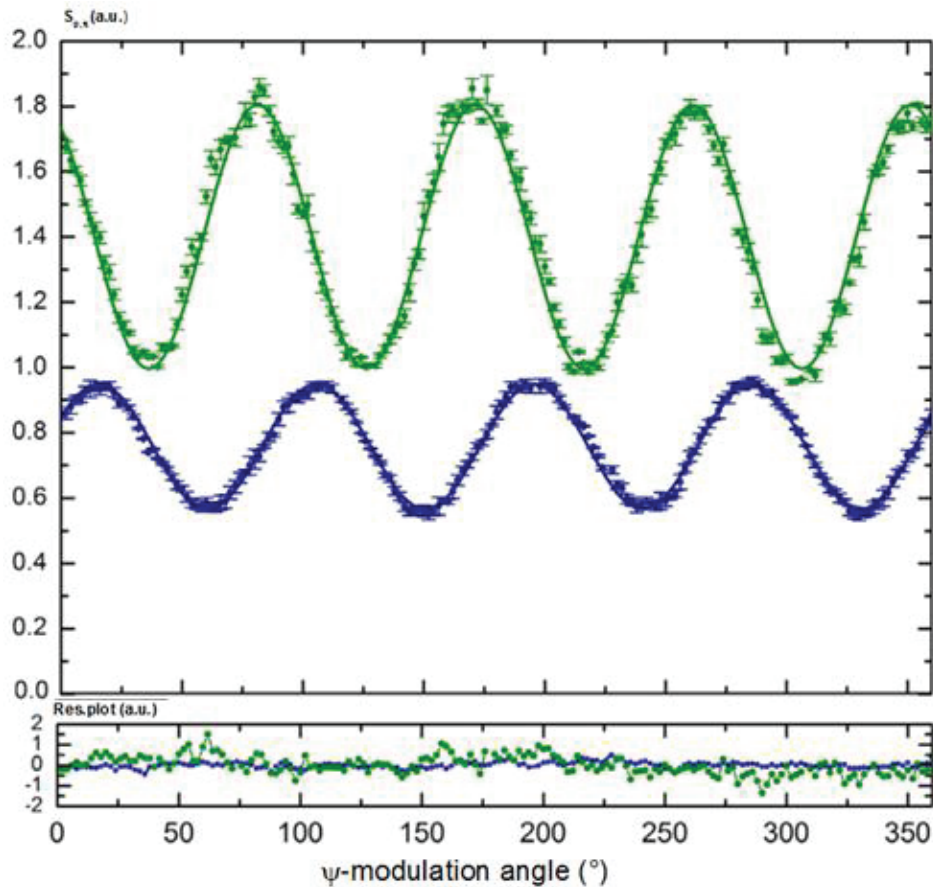


Figure 2.7 Signaux de rétrodiffusion UV-VIS  $S_d$  (en u.a) en fonction de l'angle de modulation pour les particules ATD non sphériques. Les signaux vert et bleu foncé (respectivement VIS et UV) correspondent à la SD-a (cf Figure 2.6). Les deux courbes, acquises simultanément, concernent les mêmes particules et sont ajustées avec Eq. (2.6) afin d'évaluer le rapport des coefficients de la matrice de diffusion des particules en appliquant Eq. (2.7). En dessous, diagramme de résidus des ajustements qui ne présentent pas de structure systématique.

Les points expérimentaux sont ajustés avec l'éq. (2.6), comme dans le cas des particules sphériques afin d'évaluer le rapport des coefficients de la matrice de diffusion à l'angle de rétrodiffusion exacte en appliquant Eq. (2.7) pour les deux longueurs d'onde et pour les deux SD. Nous pouvons également noter que les tracés des résidus ne présentent aucune structure particulière. De plus, lors des deux acquisitions, les variations observées de  $S_d$  sont représentatives d'une distribution de taille et d'une distribution de forme déterminées. En effet, si la taille (respectivement la forme) des particules sondées avait varié pendant l'acquisition (0-360 °),  $S_d$  présenterait alors des maxima variables (respectivement des minima). En effet, l'état de polarisation lors de la rétrodiffusion de l'impulsion laser au niveau du volume diffusant, comme le souligne le formalisme de la matrice de diffusion, est lié à ces changements microphysiques. Le tableau 2.2 présente nos résultats expérimentaux aux deux longueurs d'ondes et pour les deux distributions de taille considérées.

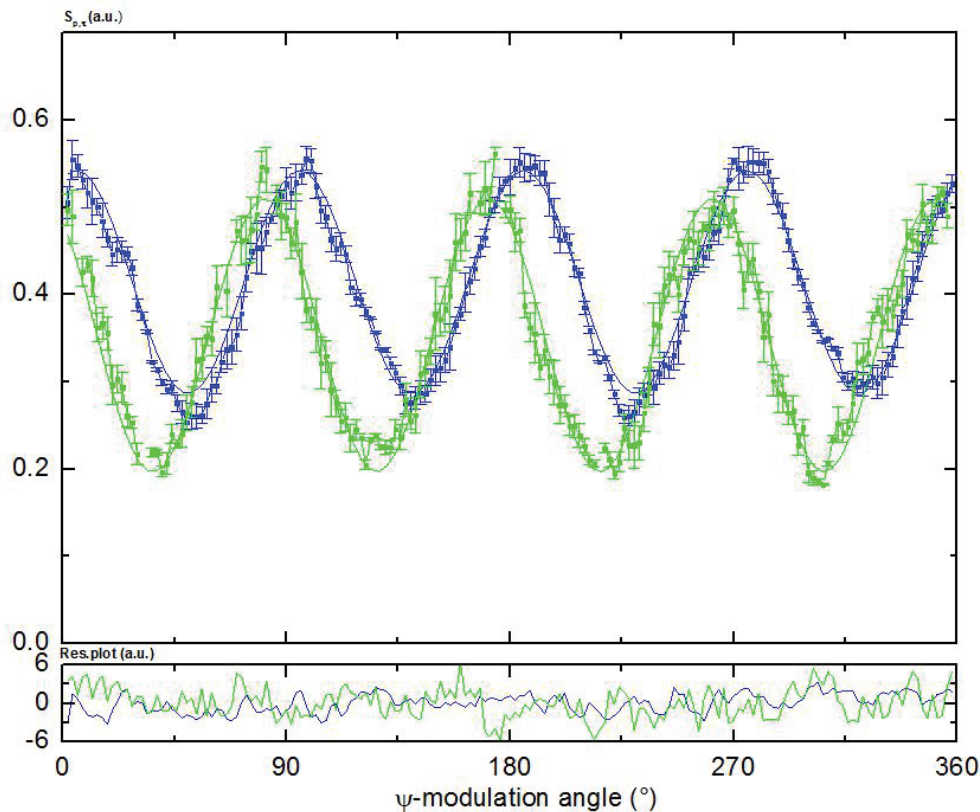


Figure 2.8 Signaux de rétrodiffusion UV-VIS  $S_d$  (en u.a) en fonction de l'angle de modulation pour les particules ATD non sphériques. Les signaux vert et bleu foncés (respectivement VIS et UV) correspondent à la SD-b (cf Figure 2.6). Les deux courbes, acquises simultanément, concernent les mêmes particules et sont ajustées avec Eq. (2.6) afin d'évaluer le rapport des coefficients de la matrice de diffusion des particules en appliquant Eq. (2.7). En dessous, diagramme de résidus des ajustements qui ne présentent pas de structure systématique.

SD	$\lambda = 355\text{nm}$	$\lambda = 532\text{ nm}$
a	$0.456 \pm 0.002$	$0.475 \pm 0.004$
b	$0.482 \pm 0.009$	$0.533 \pm 0.010$

Tableau 2- 2 Rapport  $F_{22,ns}/F_{11,ns}$  pour les deux distributions de taille considérées dans l'UV et dans le VIS.

## 2.4 Discussion sur l'applicabilité du modèle des sphéroïdes

Etant donné que le Pi-polarimètre (UV, VIS) satisfait à l'approximation de diffusion unique, nos résultats peuvent être comparés aux résultats de simulation numérique. Les coefficients de la matrice de diffusion des particules désertiques sont difficiles à simuler numériquement en raison de la forme très irrégulière de ces particules. Dans cette section, nous discutons ainsi de l'applicabilité du modèle des sphéroïdes pour simuler numériquement les coefficients de la matrice de diffusion de l'ATD à l'angle exact de rétrodiffusion.

La méthode T-matrix est décrite extensivement dans la littérature (Mishchenko et al., 1995<sup>140</sup>, 1997<sup>141</sup>, 1998<sup>142</sup>, 2000<sup>145</sup>, 2002<sup>146</sup>, 2009<sup>151</sup>), avec une base de données fréquemment mise à jour (Mishchenko et al., 2014<sup>152</sup>). En quelques mots, le code T-matrix (Kahnert et al., 2015<sup>81</sup>, Mishchenko et al., 1998<sup>142</sup>, 2009<sup>151</sup>, Nousiainen, 2009<sup>163</sup>), basé sur le modèle des sphéroïdes, est une solution analytique exacte des équations de Maxwell permettant de faire la moyenne sur les orientations des particules. L'idée sous-jacente est de modéliser la réponse optique de l'ensemble statistique par un ensemble de sphéroïdes de rapport d'aspect variable et de taille variable. Il a été appliqué de nombreuses fois avec succès pour inverser des données de télédétection passives sur des particules désertiques (Dubovik et al., 2006<sup>48</sup>). La validation du modèle sphéroïdal a toutefois été limitée à des angles de diffusion accessibles aux expériences de laboratoire (de 3° à 177 °), différent de la direction exacte de rétrodiffusion. Dans cette section, nous comparons nos mesures de polarimétrie à l'angle exact de rétrodiffusion avec les résultats obtenus à partir de la simulation numérique T-matrix.

Avec cette méthode numérique, nous pouvons simuler un volume diffusant comprenant des particules désertiques. Pour cela nous assignons à des particules, ayant des indices de réfraction équivalents à l'ATD et orientées de manière aléatoire, des distributions de taille équivalentes à celles mesurées expérimentalement. La forme des particules est quant à elle simplifiée à des sphéroïdes, la forme la plus simple pour des particules non sphériques, avec symétrie axiale et une géométrie décrite par le rapport d'aspect  $\varepsilon = b/a$ , où  $a$  et  $b$  sont les longueurs d'axe majeur (mineur) et mineur (majeur) pour les sphéroïdes oblates (prolate) respectivement. Trois paramètres d'entrée sont donc requis pour simuler à l'aide du code T-matrix : La SD caractérisé par le paramètre de taille  $x = 2\pi r/\lambda$ , la distribution du rapport d'aspect (de forme) et l'indice de réfraction complexe des particules  $m$ .

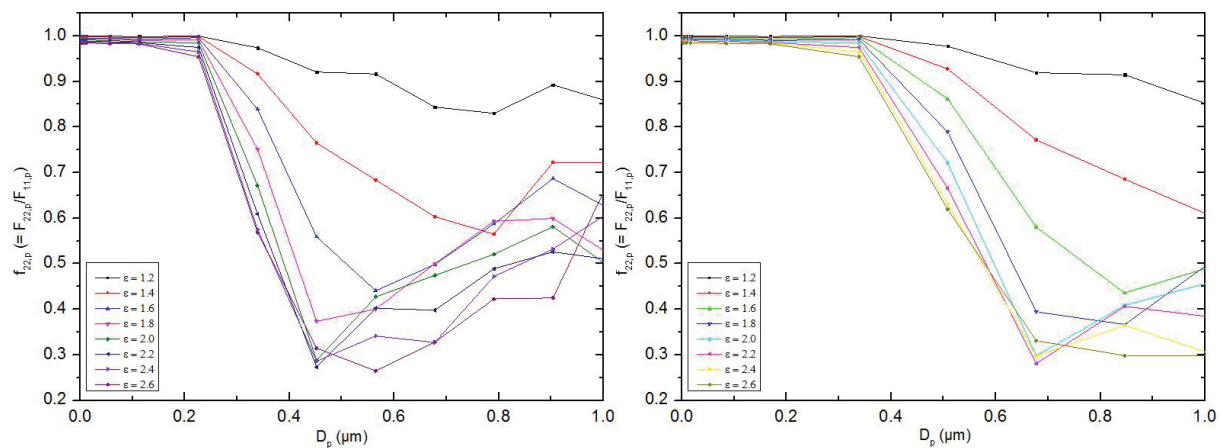


Figure 2.9 Simulation du rapport des coefficients de la matrice de diffusion  $f_{22,d} = F_{22,d}/F_{11,d}$  en fonction du diamètre des particules  $D$  ( $x = \pi D/\lambda$ ) pour différents sphéroïdes oblates, avec des rapports d'aspect entre  $\varepsilon = 1,2$  et  $\varepsilon = 2,6$ , pour  $m=1,57 \cdot 10^{-2}i$  ( $\lambda= 355$  nm, panneau de gauche) et  $m=1,555 \cdot 10^{-3}i$  ( $\lambda= 532$  nm, panneau de droite).

Dans notre simulation, les paramètres de taille  $x$  atteignent au plus 20 ( $1,1 \mu\text{m}$  dans l'UV) afin de correspondre aux distributions de taille mesurées expérimentalement. En utilisant le code T-matrix, nous montrons sur la figure 2.9 les variations du rapport des coefficients de la matrice de diffusion  $f_{22,d} = F_{22,d}/F_{11,d}$  en fonction du diamètre des particules pour un ensemble de sphéroïdes oblates avec un rapport d'aspect  $\varepsilon$ , pour l'indice de réfraction de l'ATD dans l'UV (à gauche) et dans le VIS (à droite). En intégrant  $f_{22,ns}$  sur la distribution de taille considérée, on obtient un bon accord entre la simulation numérique et l'expérience de rétrodiffusion pour la SD-a dans l'UV où  $f_{22,d} = 0.46$  est obtenu pour un rapport d'aspect  $\varepsilon = 1,6$ . Pour la SD-b à la longueur d'onde VIS, on trouve un bon accord pour  $\varepsilon = 2,2$  pour lequel  $f_{22,d} = 0.53$  (cf. Tableau 2.2). Un rapport d'aspect de 1,6 est compatible avec la littérature (Kandler et al., 2011<sup>87</sup>) comme étant le rapport d'aspect moyen des particules désertiques observées par microscopie électronique. Cependant, comme le souligne Kahnert (2014), il convient d'être prudent lorsqu'on utilise des rapports d'aspect dérivés de particules isolées car les sphéroïdes individuels ne partagent pas les propriétés de diffusion des particules non sphériques avec un rayon volumique équivalent. Aussi, aucun des ratios ci-dessus ne correspond aux résultats expérimentaux aux longueurs d'onde UV et VIS simultanément, pour la SD-a dans le VIS à  $\varepsilon = 1,6$  on obtient  $f_{22,d} = 0.61$  et pour la SD-b dans l'UV à  $\varepsilon = 2,2$  on obtient  $f_{22,d} = 0.61$ . Nous avons ensuite considéré une distribution de forme sphéroïdale suivant une loi de puissance (Merikallio et al., 2011<sup>130</sup>), soit  $f(\varepsilon) = \varepsilon^n$ , où  $n$  est un entier. Nous avons étudié trois cas successifs :  $n = 0$  (distribution de forme équiprobable),  $n = 3$ , puis  $n = 10$ , ce dernier favorisant les rapports d'aspect extrêmes au détriment des sphéroïdes presque sphériques. Le rapport des coefficients de la matrice de diffusion numérisée lors de nos simulations T-matrix sont donnés dans le tableau 2-3 en comparaison aux résultats expérimentaux :

SD	$\lambda = 355 \text{ nm}$		$\lambda = 532 \text{ nm}$	
	Expérience	T-matrix	Expérience	T-matrix
a	$0.456 \pm 0.002$	0.58	(n=0) $0.475 \pm 0.004$	0.65 (n=0)
		<b>0.48</b>	<b>(n=3)</b>	0.57 (n=3)
		<b>0.47</b>	<b>(n=10)</b>	0.57 (n=10)
b	$0.482 \pm 0.009$	0.62	(n=0) $0.533 \pm 0.010$	0.58 (n=0)
		0.63	(n=3)	<b>0.54</b> <b>(n=3)</b>
		0.65	(n=10)	<b>0.53</b> <b>(n=10)</b>

Tableau 2-3 Simulation numérique T-matrix du rapport des coefficients de la matrice de diffusion à l'angle exact de rétrodiffusion pour les deux SD expérimentales (a, b) et aux deux longueurs d'onde (UV, VIS) lorsqu'une distribution de forme des sphéroïdes est considérée ( $f(\varepsilon) = \varepsilon^n$ , avec  $n = 0, 3$  ou  $10$ ). Le meilleur accord entre les résultats obtenus à l'aide du code t-matrix et les résultats expérimentaux est mis en évidence en gras.

Le modèle sphéroïdal est capable de reproduire nos résultats expérimentaux de rétrodiffusion quelle que soit la longueur d'onde considérée. Un bon accord est trouvé dans l'UV pour la SD-a et dans le VIS pour la SD-b. L'hypothèse d'une distribution de forme équiprobable semble amoindrir la capacité du modèle sphéroïdal à rendre compte de la réponse optique résolue en polarisation des particules désertiques. Néanmoins, même en tenant compte de la dépendance spectrale de l'indice de réfraction, la dépendance spectrale des coefficients de la matrice de diffusion (du rapport de dépolarisation) n'a pas pu être reproduite simultanément dans l'UV et le VIS. Cette conclusion est en accord avec d'autres études réalisées sur des particules désertiques à des angles différents (Dubovik et al., 2006<sup>48</sup>, Zubko et al., 2013<sup>260</sup>) et l'étends ainsi, par une démarche expérimentale, à la direction importante de rétrodiffusion.

## 2.5 Implications atmosphériques

Des études suggèrent que le rapport de dépolarisation  $\delta_p$  définit chapitre 1 pour le cas de la rétrodiffusion et pour le cas de la diffusion à un angle quelconque, pourrait être utilisé pour déterminer la nature des aérosols présent dans les couches atmosphériques à partir de mesures de lidar résolu en polarisation (Gross et al., 2013<sup>63</sup>, Jarvinen et al., 2016<sup>78</sup>, Liu et al., 2008<sup>117</sup>). On peut évaluer directement le rapport de dépolarisation des particules désertiques à partir du signal selon :

$$\delta_d(\theta = \pi) = \frac{1 - F_{22,d}/F_{11,d}}{1 + F_{22,d}/F_{11,d}} \quad (2.12)$$

On peut noter qu'en dehors de la géométrie exacte de rétrodiffusion le rapport de dépolarisation dépend également de  $F_{12,p}$  comme montré expérimentalement par Jarvinen et al. (Jarvinen et al., 2016<sup>78</sup>) dans le cas de particules désertiques à un angle de diffusion de 178°. En dehors de la rétrodiffusion exacte, le rapport de dépolarisation linéaire de particules désertiques s'exprime comme suit :

$$\delta_d(\theta \neq \pi) = \frac{1 - F_{22,d}/F_{11,d}}{1 \pm 2F_{12,d}/F_{11,d} + F_{22,d}/F_{11,d}} \quad (2.13)$$

avec un signe positif (négatif) correspondant à un laser incident de polarisation horizontale (verticale) par rapport au plan de diffusion. L'importance d'adresser la rétrodiffusion exacte apparaît très clairement de la comparaison des deux expressions de  $\delta_d$  hors et à 180.0°. Même pour des angles très proches de 180.0°, les propriétés optiques (ie  $F_{11,d}$ ,  $F_{12,d}$  et  $F_{22,d}$ ) peuvent varier fortement ce qui signifie que  $\delta_d$  peut lui aussi varier fortement. Le rapport de dépolarisation linéaire peut donc lui aussi varier fortement pour des angles proches de 180°. Si nous reprenons les simulations numériques préalables exposées figure 2.2, on constate que pour des particules sphériques (pour lesquelles  $F_{22,s}/F_{11,s} = 1$ ) on a  $\delta_s = 0$  et pour des particules non sphériques (pour lesquelles nous avons choisi  $F_{22,ns}/F_{11,ns} = 0.5$ ) on a  $\delta_{ns} = 33\%$ . Ainsi lorsque nous retrouvons expérimentalement  $F_{22,s}/F_{11,s} = 1$  dans le cas de

gouttelles d'eau, c'est bien un rapport de dépolarisation nul que nous avons évalué. Le tableau 2-4 présente les évaluations expérimentales du rapport de dépolarisation effectuées au cours de cette thèse pour les deux distributions de taille considérées. Les valeurs de  $\delta_d$  typiques mesurées par lidar pour les particules désertiques atmosphériques au cours des campagnes de terrain sont généralement autour de 30 %, indépendamment de la région source (Freudenthaler et al., 2009<sup>57</sup>, Muller et al., 2013<sup>160</sup>). A titre d'exemple, au cours de la campagne SAMUM, les valeurs  $\delta_d$  des particules désertiques sahariennes variaient entre 27 % et 35 % (Freudenthaler et al., 2009<sup>57</sup>). Nos résultats de laboratoire pour des particules désertiques d'ATD soutiennent cette observation.

SD		$\lambda=355\text{nm}$	$\lambda=532\text{nm}$
a	$F_{22,d}/F_{11,d}$	$0.456 \pm 0.002$	$0.475 \pm 0.004$
	$\delta_d$ (%)	$37.5 \pm 1.5$	$35.5 \pm 1.5$
b	$F_{22,d}/F_{11,d}$	$0.482 \pm 0.009$	$0.533 \pm 0.010$
	$\delta_d$ (%)	$35 \pm 1.5$	$30.5 \pm 1.5$

Tableau 2- 4 Résultats expérimentaux pour les deux distributions de taille considérées dans l'UV et dans le VIS avec les rapports de dépolarisation correspondants.

## 2.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté une expérience de laboratoire mise au point pour mesurer la rétrodiffusion ( $\theta = 180.0 \pm 0.2^\circ$ ) résolue en polarisation de particules non sphériques simultanément dans l'UV et le VIS. En utilisant ce polarimètre, nous avons développé une méthodologie pour évaluer précisément les coefficients de la matrice de diffusion des particules à partir du signal de rétrodiffusion de l'impulsion laser en modulant la polarisation incidente sur un ensemble complet d'angles de modulation. Nous avons validé notre méthodologie expérimentale sur des gouttelettes d'eau sphériques avec une très bonne précision ( $< 1\%$ ). Nous avons ensuite généré deux distributions de taille (SD a et b) de particules d'origines désertique nous permettant d'évaluer avec précision ( $< 2\%$ ) le rapport des coefficients de la matrice de rétrodiffusion de l'ATD :  $f_{22,d} = 0.456 \pm 0.002$  dans l'UV et  $f_{22,d} = 0.475 \pm 0.004$  dans le VIS pour la SD-a et  $f_{22,d} = 0.482 \pm 0.009$  dans l'UV et  $f_{22,d} = 0.533 \pm 0.010$  dans le VIS pour la SD-b. De plus, ces évaluations précises du rapport des coefficients de la matrice de rétrodiffusion des particules désertiques a permis de discuter de l'applicabilité du modèle mathématique des sphéroïdes, décrit par le code T-matrix, pour décrire la rétrodiffusion optique de ces particules dans la géométrie d'exacte rétrodiffusion. Nous avons conclu que le modèle sphéroïdal est en meilleur accord avec nos résultats expérimentaux pour des distributions de forme mettant en exergue les particules les plus éloignées de la symétrie sphérique (loi de puissance en  $n = 3$  ou  $n = 10$ ). Nous n'avons cependant pas pu reproduire la dépendance spectrale des coefficients de la matrice de diffusion pour une distribution de taille donnée

avec le modèle mathématiques des sphéroïdes, et d'autres auteurs sont arrivés à la même conclusion pour d'autres angles de diffusion (Dubovik et al., 2006<sup>48</sup>, Zubko et al., 2013<sup>260</sup>). Par conséquent, notre contribution montre que cette affirmation s'applique également dans la direction exacte de rétrodiffusion, au moins pour les distributions de taille considérées ici. Ces résultats de laboratoire peuvent également être utilisés pour inverser les données atmosphériques provenant des outils de télédétection tels que les lidars résolus en polarisation lors d'épisodes comprenant des particules désertiques. Ces résultats expérimentaux représentent une première mondiale et ont été publiés dans la revue JQSRT (Miffre et al., 2016<sup>139</sup>).

Au prochain chapitre nous caractériserons des particules désertiques après un long transport dans l'atmosphère. Pour cela, nous utiliserons plusieurs modèles de forme afin de simuler les paramètres permettant de partitionner optiquement un mélange externe de particules observé à l'aide d'un LIDAR construit par notre équipe. Nous pourrons ainsi comparer directement ces différents modèles de forme, simulé à l'aide de l'approximation en dipôle discret (ADDA, cf. chapitre 3) et du modèle des sphéroïdes, en les appliquant à des études de cas in situ.







## Chapitre 3

### Rétrodiffusion lidar (UV, VIS) résolu en polarisation dans la troposphère libre de Lyon : application à l'évaluation de la concentration en masse

Le chapitre 2 a permis d'adresser une partie de la complexité des particules désertiques, en évaluant quantitativement en laboratoire leur matrice de rétrodiffusion. Dans l'atmosphère, les particules désertiques sont souvent mélangées avec d'autres types de particules. En effet, pendant le transport par advection depuis leur lieu d'émission, différents mélanges de particules peuvent se former en fonction de leurs sources et des conditions extérieures. À titre d'exemple, les particules désertiques peuvent se mélanger avec des particules de sulfate sphériques, conduisant à des mélanges externes de particules à deux composantes (David et al., 2013a<sup>32</sup>). Des mélanges plus complexes peuvent également se former et être observés lorsque les particules de sel marin se mélangent aux particules désertiques et aux espèces hydrosolubles présentes dans l'atmosphère (Zhang, 2008<sup>256</sup>). Une meilleure compréhension de la distribution spatio-temporelle des particules désertiques dans ces mélanges de particules est essentielle pour fournir des prévisions précises de l'impact atmosphériques des particules désertiques. La dissociation de la contribution des particules désertiques dans les mélanges de particules atmosphériques est cependant difficile. Cette situation est particulièrement complexe loin des sources d'émission après plusieurs centaines voire quelques milliers de kilomètres de transport où la distribution spatio-temporelle de ces particules doit être révélée.

Dans ce contexte, un lidar ou radar optique est d'un apport majeur car il révèle la distribution spatio-temporelle des aérosols présents dans l'atmosphère, comme introduit au chapitre 1. Toutefois, isoler la contribution des particules d'origine désertique de ce mélange est un problème complexe. Résoudre ce problème inverse passe par la connaissance d'un certain nombre de paramètres d'inversion et le développement d'algorithmes de partitionnement optique. Comme détaillé dans la littérature correspondante (David et al., 2013a<sup>32</sup>, Tesche et al., 2009<sup>216</sup>), ces paramètres d'entrée sont le rapport de dépolarisation des particules non sphériques, leurs exposants d'Angström de rétrodiffusion (BAE) et leurs ratios lidar. Il s'agit d'un problème inverse, mal-posé, en ce sens que le nombre de paramètres d'entrée connus est inférieur au nombre de paramètres nécessaires pour dissocier la contribution des particules désertiques (cf. Figure 3.1). Il s'en suit que les incertitudes liées à cette inversion lidar doivent être clairement établies.

L'enjeu est majeur : à titre d'exemple, l'inversion lidar peut permettre d'évaluer les concentrations en masse de particules, résolues en temps et en altitude, comme ce fut le cas

lors de l'éruption du volcan islandais en 2010 (Miffre et al., 2012a<sup>136</sup>). S'agissant des particules désertiques, leur impact sur le bilan radiatif terrestre est tout à fait essentiel : En diffusant, absorbant et émettant les rayonnements électromagnétiques, les particules désertiques contribuent directement à l'équilibre radiatif terrestre (Balkansky et al., 2007<sup>9</sup>, Boucher et al., 2013<sup>15</sup>). En agissant comme un noyau de congélation, il contribue à la formation de nuages de glace et au cycle global de l'eau. Les particules minérales contribuent aussi au cycle global du carbone en fertilisant les écosystèmes pauvres en éléments nutritifs tels que les surfaces océaniques éloignées ou la forêt amazonienne (Bristow et Hudson, 2010<sup>19</sup>). Les particules désertiques peuvent également induire des réactions chimiques contribuant ainsi à la complexité chimique de l'atmosphère terrestre. Notamment, comme nous le verrons au chapitre suivant, la surface de ces particules désertiques peut être le siège de réactions chimiques qui peuvent conduire à la formation de nouvelles particules (Dupart et al., 2012<sup>50</sup>).

Ce chapitre propose de s'intéresser aux incertitudes affectant l'évaluation de la concentration en masse des particules d'origine désertique issue de l'inversion de données lidar. Afin de prendre en compte la forme non-sphérique des particules de manière précise, le lidar est résolu en polarisation et basé sur le Pi-polarimètre introduit au chapitre 2. Les paramètres d'entrée de l'inversion lidar sont évalués en appliquant le modèle mathématique du T-matrix ou modèle sphéroïde qui a prouvé son efficacité au chapitre 2. Toutefois, afin de prendre en compte la morphologie complexe des particules désertiques, nous traitons ici des formes plus réalistes, dérivées de mesures effectuées sur des particules désertiques, pour mieux prendre en compte les formes très irrégulières et la minéralogie complexe de ces particules. Plus précisément, nous considérons ici trois modèles de forme différents :

- Particules sphéroïdales : dérivées de la résolution analytique des équations de Maxwell fournie par le code T-matrix (Mishchenko et Travis, 1998<sup>142</sup>). Ce modèle de forme a déjà fait ses preuves au cours d'études précédentes (David et al., 2013a<sup>32</sup>, Miffre et al., 2016<sup>139</sup>).
- Stéréo-particules lisses : dérivées de (Lindqvist et al., 2014<sup>115</sup>) à partir de quatre particules désertiques différentes nommées CAL, DOL, AGG, SIL dont les formes ont été modélisées par photogrammétrie lors de la campagne de terrain SAMUM.
- Stéréo-particules rugueuses : tels que développés par Kemppinen et al. (2015<sup>92</sup>), qui ont introduit des versions rugueuses des quatre particules CAL, DOL, AGG, SIL en utilisant un algorithme de Monte Carlo. La rugosité de surface peut en effet affecter significativement la diffusion de la lumière, même lorsque la particule est déjà éloignée de la symétrie sphérique.

Nous étudions donc la dépendance des profils verticaux obtenus par l'inversion des signaux du lidar résolu en polarisation (basées sur des algorithmes de partitionnement) à la taille, la

forme et la rugosité de surface des particules désertiques retenues pour l'obtention des paramètres d'entrée du partitionnement. Ceci pour deux distributions de taille et trois modèles de forme. Pour ce faire, la coopération entreprise en 2013 avec le groupe de T. Nousiainen en Finlande, spécialiste de la simulation numérique des propriétés optiques de particules désertiques, a été poursuivie en l'étendant du modèle T-matrix à l'approximation en dipôles discrets (DDA). Ainsi, un objectif connexe de ce chapitre est de mener à bien une étude de la sensibilité de l'inversion lidar au modèle de taille et de forme choisi pour l'obtention des profils verticaux des coefficients de rétrodiffusion des particules désertiques et l'évaluation de leur concentration en masse.

Ce chapitre est organisé comme suit : dans un premier temps, le problème associé à l'inversion lidar et au partitionnement optique est présenté à partir d'éléments de bibliographie. Dans une thèse précédente de l'équipe, une méthodologie a été publiée (David et al., 2013a<sup>32</sup>) permettant d'obtenir les coefficients de rétrodiffusion des particules désertiques, que nous rappellerons ici dans un souci de clarté (cette méthodologie sera en effet appliquée dans ce chapitre et au suivant). Nous détaillons ensuite le lidar (UV, VIS) résolu en polarisation et la méthodologie suivie pour adresser la concentration en masse des particules désertiques. Les paramètres nécessaires au partitionnement optique d'un mélange externe incluant des particules désertiques (dépolariation, exposant d'angström de rétrodiffusion, ratio lidar) sont évalués en fonction de la taille du centre diffusant et de sa forme, en envisageant les trois modèles de forme cités ci-dessus (sphéroïdale, stéréo-particules, stéréo-particules avec rugosité). Enfin, cette méthodologie est appliquée à des mesures de polarimétrie in situ réalisées à l'aide du lidar (UV, VIS) résolu en polarisation lors d'événements comprenant des mélanges à deux et trois composants incluant des particules désertiques. Des études de cas sont ainsi proposées permettant d'évaluer la dépendance des profils verticaux de rétrodiffusion et donc de l'évaluation de la concentration en masse en fonction de la distribution de taille et de forme choisie. Si les profils verticaux dépendent fortement de la distribution de taille, de manière très originale car peu étudiée dans la littérature, le modèle de forme s'avère également important : du modèle mathématique sphéroïdal au modèle des stéréo-particules, jusqu'à 67 % de variabilité est observée sur les coefficients de rétrodiffusion des particules désertiques. Plus encore, l'incertitude sur l'évaluation de la concentration massique est non négligeable, puisqu'elle se chiffre à 30 %. Ces résultats ont été publiés dans la revue Atmospheric Research (Mehri et al., 2018<sup>128</sup>).

### **3.1 Position du problème et éléments de bibliographie**

La figure 3.1, librement inspirée du livre de Rodgers (Rodgers, 2000<sup>193</sup>), pose le problème envisagé sous forme schématique : accéder à la microphysique (taille, forme) de l'aérosol désertique est une tâche complexe et cette complexité est liée d'une part à la complexité de l'aérosol lui-même dont la forme est hautement irrégulière et la surface des particules désertiques peut présenter de la rugosité. D'autre part, l'inversion de données lidars, basée

sur la mesure en rétrodiffusion, est complexe en raison de la complexité de l'atmosphère elle-même où l'aérosol désertique est présent dans des mélanges de plusieurs particules atmosphériques d'origine différente.

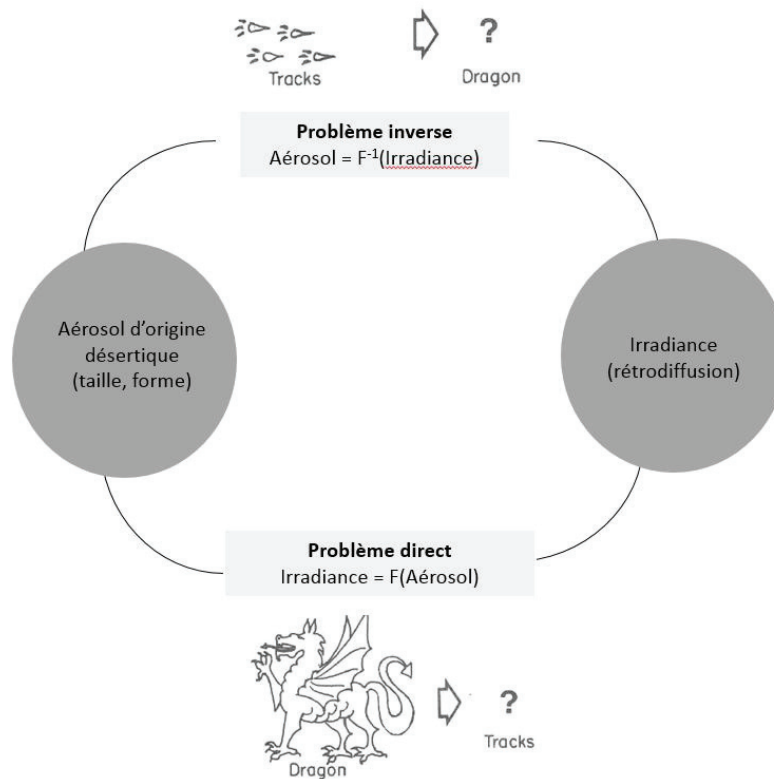


Figure 3.1 Position du problème envisagé sous forme schématique : accéder à la microphysique (taille, forme) de l'aérosol désertique à partir de mesures de télédétection atmosphériques est une tâche complexe. Il faut déjà être en mesure d'identifier l'aérosol en question (le dragon) à partir de la rétrodiffusion de l'ensemble des particules et molécules présentes dans l'atmosphère (l'ensemble de traces). Inspirée de (Rodgers, 2000<sup>193</sup>).

Les particules non sphériques sont particulièrement difficiles à caractériser car il n'y a pas de solution analytique à la diffusion de la lumière pour de telles particules, comme nous l'avons vu au chapitre 1 (Mishchenko Hovenier et Mackowsky 2004<sup>145</sup>, Van de Hulst 1953<sup>223</sup>). La non-sphéricité des particules est connue pour avoir un impact majeur sur l'analyse des données issues de la télédétection lidar et par satellite (Veselovskii et al., 2010<sup>224</sup>, Winker et al., 2010<sup>248</sup>). La télédétection est une des sources majeures de données sur la distribution spatio-temporelle des particules atmosphériques nécessaires pour l'évaluation du forçage radiatif induit par ces dernières. Le manque de connaissances sur les particules désertiques induit des incertitudes qui peuvent être importantes pour la modélisation du climat terrestre. Ces particules peuvent rester dans la troposphère pendant plusieurs semaines (Kaden et al., 2009<sup>79</sup>, Muller et al., 2003<sup>158</sup>), ce qui renforce encore leur impact radiatif. Comme indiqué au chapitre 1, pendant le transport par advection depuis les régions sources, les propriétés des particules peuvent également changer en raison de processus tels que la sédimentation, le mélange avec d'autres particules (Zhang, 2008<sup>256</sup>), la croissance hygroscopique et les altérations chimiques possibles (Bourcier et al., 2011<sup>18</sup>, Curtius, 2009<sup>28</sup>, Riccobono et al.,

2014<sup>190</sup>). Après un transport à grande distance, ces particules peuvent donc présenter des tailles ou des formes différentes de celles observées proche des régions source. L'une des conséquences typiques est une répartition verticale complexe généralement observée dans la basse troposphère au niveau des sites d'observation éloignés de leurs régions d'origine.

### 3.1.1 Algorithmes de partitionnement de la rétrodiffusion optique

La télédétection Lidar est particulièrement utile pour fournir des profils verticaux des propriétés de rétrodiffusion des particules atmosphériques. Comme expliqué par Mishchenko et al. (2002<sup>146</sup>), les particules non sphériques atmosphériques peuvent être détectées par leur capacité à dépolariiser la lumière incidente. Des expériences l'ont vérifié en utilisant une seule longueur d'onde laser ou plusieurs comme indiqué dans la littérature (David et al., 2013a<sup>32</sup>, Di Girolamo et al., 2012<sup>42</sup>, Gasteiger et al., 2011<sup>58</sup>, Miffre et al., 2010<sup>134</sup>, Nousiainen et al., 2012<sup>160</sup>, Sugimoto et al., 2002<sup>214</sup>, 2006<sup>215</sup>). Généralement, les mesures du rapport de dépolariisation sont effectuées aux longueurs d'onde visibles (VIS) et infrarouges (IR) (Freudenthaler et al., 2009<sup>57</sup>, Sugimoto et al., 2002<sup>214</sup>). La dépolariisation de la lumière par des particules atmosphériques non sphériques est particulièrement intéressante dans le cas du transport à longue distance, où la dépendance du rapport de dépolariisation à la longueur d'onde doit être caractérisée (Wiegner et al., 2011<sup>244</sup>) et où moins d'études ont été réalisées. Pendant le transport sur de longues distances, différents mélanges de particules atmosphériques à plusieurs composants peuvent se former, par exemple :

- Mélange de particules à deux composants : un exemple de ce mélange est donné par l'éruption récente du volcan Eyjafjallajökull, où des particules de cendres volcaniques se sont mélangées à des particules de sulfate sphériques.
- Mélanges de particules à trois composants : un tel mélange est observé, par exemple, lors de l'advection de particules désertiques originaires du Sahara lorsque des particules de sel marin non sphériques se mélangent à ces particules désertiques et à des espèces hydrosolubles. Un autre exemple est donné par l'éruption de 2011 du volcan érythréen Nabro, où des particules de cendres volcaniques ont rencontré des particules désertiques dans la troposphère en présence de particules hydrosolubles.

Dans de telles situations, la non-sphéricité des particules de sel marin, des particules désertiques et des particules de cendres volcaniques devrait être prise en compte. Les «mélanges de particules à deux composantes» ont d'abord été étudiés par Shimizu et al. (2004<sup>209</sup>), qui séparaient les particules désertiques des autres particules à l'aide d'un lidar résolu en polarisation à une longueur d'onde. Cette méthodologie a été appliquée par Tesche et al. (2009<sup>216</sup>) pour traiter l'extinction des particules sur les canaux Raman et développé par Ansmann et al. (2012<sup>8</sup>) en supposant que les grosses particules (diamètre supérieur à 1  $\mu\text{m}$ ) dépolariisent la lumière incidente alors que les particules fines sont supposées sphériques (diamètre inférieur à 1  $\mu\text{m}$ ), une hypothèse discutable puisque des

particules désertiques de diamètre inférieur à 1  $\mu\text{m}$  ont été mesurées lors de campagnes d'observations (Kaaden et al., 2009<sup>79</sup>, Muller et al., 2010<sup>159</sup>).

L'équipe a développé en 2011 un algorithme permettant de partitionner la rétrodiffusion d'un mélange de particules sphériques et non sphériques, en se basant sur le formalisme de la matrice de diffusion (Miffre et al., 2011<sup>135</sup>). Ceci a permis notamment d'obtenir un partitionnement optique en présence de cendres volcaniques (Miffre et al., 2010b<sup>134</sup>) ou désertiques (Miffre et al., 2011<sup>135</sup>). Appliqué au cas des particules désertiques, l'algorithme de partitionnement d'un mélange externe à deux composantes fournit des profils verticaux de rétrodiffusion des particules désertiques et des autres particules qui sont regroupés dans un ensemble.

Les "mélanges de particules à trois composants" ont été étudiés par Nishizawa et al. (2011), qui ont considéré les particules désertiques non sphériques mélangées avec du sel marin et des particules hydrosolubles avec une expérience de lidar résolu en polarisation à une longueur d'onde pour obtenir l'extinction des particules. Ils ont supposé que les particules de sel marin étaient sphériques, ce qui peut ne pas être le cas, comme l'ont montré Murayama et al. (1999<sup>161</sup>). La contribution des particules désertiques à la rétrodiffusion peut également être abordée dans le cas plus complexe où deux des espèces des mélanges externes sont considérées non sphériques, comme cela a été développé par notre équipe dans des travaux précédant cette thèse (David et al., 2013a<sup>32</sup>). Pour cela, un lidar résolu en polarisation utilisant au moins deux longueurs d'onde doit être utilisé pour adresser la polarisation et la dépendance spectrale de la rétrodiffusion du mélange externe de particules. L'algorithme de partitionnement optique est alors plus contraint car le nombre de paramètres d'entrée nécessaires est plus important que le nombre d'observables atteignable avec un lidar multi spectral résolu en polarisation. En conséquence, les résultats de tels algorithmes de partitionnement dépendent toujours de la connaissance ou d'hypothèses préalables concernant certains des paramètres d'entrée qui sont requis pour les exécuter.

### **3.1.2 Paramètres d'entrée pour le partitionnement optique**

Comme détaillé dans la littérature correspondante (David et al., 2013a<sup>32</sup>, Tesche et al., 2009<sup>216</sup>), ces paramètres d'entrée sont le rapport de dépolarisation, l'exposant d'Angstrom et le ratio lidar des particules non sphériques incluses dans le mélange. Ces paramètres d'entrée sont généralement déduits en suivant trois approches complémentaires :

- Des mesures lidar sont souvent employées (Ansmann et al., 2012<sup>8</sup>, Muller et al., 2013<sup>160</sup>, Shimizu et al., 2004<sup>209</sup>, Tesche et al., 2009<sup>216</sup>). Néanmoins, un lidar, quel que soit sa sensibilité, ne peut traiter que des mélanges de particules tels qu'ils se trouvent dans l'atmosphère et ne peut donc être un polarimètre spécifique aux particules désertiques, même lorsqu'il est situé proche des sources d'émission. En effet la présence d'autres particules que les particules désertiques peut conduire à

des écarts assez importants sur les valeurs des paramètres d'entrée, en particulier pour le rapport de dépolarisation des particules (Miffre et al., 2012a<sup>136</sup>).

- Une approche alternative consiste à mesurer ces paramètres à partir d'expériences de laboratoire (Miffre et al., 2016<sup>139</sup>, Munoz et al., 2011<sup>155</sup>, Schnaiter et al., 2012<sup>203</sup>), et permet, comme nous l'avons vu au chapitre 3, de caractériser les particules désertiques en mesurant leurs coefficients de la matrice de diffusion de façon très précise.
- Une approche complémentaire consiste à tirer parti des simulations numériques de diffusion de la lumière. Les particules désertiques étant non sphériques, il est toutefois impossible d'appliquer la théorie de Lorenz-Mie. Les simulations numériques sont toutefois de plus en plus précises et peuvent même désormais traiter des aspects de rugosité de surface (Kahnert et al., 2014<sup>85</sup>, Kemppinen et al., 2015<sup>92</sup>). L'importance de tenir compte de la non-sphéricité des particules désertiques lors de leurs modélisations a été soulignée par Mishchenko et al. (1997<sup>141</sup>). Le modèle sphéroïdal est comme nous l'avons vu au chapitre précédent une alternative très utilisée dans la littérature et qui présente de nombreux avantages. On peut noter également que Yang et al. (2007<sup>252</sup>) ont étudié l'effet de la rugosité de surface sur les propriétés de diffusion unique de particules sphéroïdal afin de modéliser la diffusion de particules désertiques. Les simulations numériques basées sur le code T-matrix, solution analytique des équations de Maxwell, sont ainsi d'un grand apport. L'approximation en dipôles discrets (DDA) (Draine et Flatau, 1994<sup>46</sup>) apporte des solutions complémentaires, permettant notamment de modéliser la forme des particules autrement que par un simple modèle mathématique.

La méthodologie que nous avons suivie repose sur le couplage de la mesure lidar à des simulations numériques permettant d'accéder aux paramètres d'entrée nécessaires au partitionnement optique. L'originalité de notre approche est de considérer différents modèles de forme (forme mathématique sphéroïdale, stéréo-particules, avec ou sans rugosité) et ce pour différentes distributions de taille, représentative des particules après un long transport dans l'atmosphère. Dans la littérature, le couplage d'une expérience de lidar résolue en polarisation avec un algorithme d'inversion basé sur des sphéroïdes orientés aléatoirement a été réalisé par Veselovskii et al. (2016) à partir de profils verticaux de mesures de dépolarisation des particules désertiques. Ces mesures peuvent être effectuées même loin de la région source (Di Girolamo et al., 2012<sup>42</sup>).

Dans des travaux précédant cette thèse, notre équipe a réalisé un partitionnement optique d'un mélange externe à trois composants en utilisant le modèle des sphéroïdes (David et al., 2013a<sup>32</sup>). Néanmoins, Nousiainen et al. (2009, 2012<sup>165</sup>) ont montré que les sphéroïdes ne convenaient pas pour inverser le rapport d'aspect de particules non sphéroïdales et que l'orientation et la moyenne des formes jouent probablement un rôle dans la capacité du



modèle sphéroïdal à imiter les propriétés optiques des particules désertiques. Zubko et al. (2013) ont appuyé l'hypothèse que les sphéroïdes semblaient inadéquats pour décrire la dépendance spectrale de la polarisation linéaire des particules désertiques. Comme nous l'avons montré au chapitre 2, nos mesures de laboratoire confirment les limitations du modèle sphéroïdal pour traiter la dépendance spectrale de la rétrodiffusion des particules désertiques, du moins pour les distributions de taille considérées (Miffre et al., 2016<sup>139</sup>). Nous pouvons également noter l'étude de Kemppinen et al. (2015) qui ont montré la difficulté d'utiliser des ellipsoïdes pour extraire correctement les propriétés de particules désertiques à partir des données expérimentales. Les codes numériques se basant sur l'approximation en dipôles discrets (DDA) permettent ainsi de modéliser des formes plus complexes. Cette méthode de numérisation a été appliquée par Gasteiger et al. (2011) comme autre approche pour calculer les coefficients de la matrice de diffusion de particules désertiques présentant des formes non sphériques dans le cadre de l'étude des paramètres nécessaires à l'inversion de données lidar. Cependant, dans son étude, les modèles de forme des particules désertiques utilisés ne sont pas réalistes mais dérivent de modèles de forme mathématique. Ici, les modèles de formes utilisés lors des simulations numériques sont dérivés de la campagne de terrain SAMUM (Kandler et al., 2011<sup>87</sup>).

## **3.2 Lidar (UV, VIS) résolu en polarisation construit à l'ILM**

Ce paragraphe a pour but de présenter la méthodologie suivie pour évaluer la concentration en masse de particules désertiques à partir de la mesure lidar. Nous commençons donc par rappeler les performances du télédécteur lidar (UV, VIS) résolu en polarisation de l'ILM en termes de sensibilité et de précision. La rédaction de ce sous-paragraphe s'appuie sur la publication (David et al., 2012<sup>31</sup>) décrivant de manière plus complète ce lidar, qui est basé sur le Pi-polarimètre présenté au chapitre 2.

### **3.2.1 Montage expérimental**

Le cœur du système lidar est le détecteur. Les photons rétrodiffusés sont détectés en fonction de leur longueur d'onde (UV ou VIS) et de leur polarisation par rapport à la polarisation linéaire du laser : parallèle {//} ou croisée {⊥}. Chaque voie de détection résolue en polarisation est composée de deux PBC, qui assurent que les interférences entre voies sont négligeables ce qui est crucial pour appliquer le partitionnement optique de façon précise. La matrice de transfert de notre détecteur, mesurée sur un banc d'essai en laboratoire, est diagonale. C'est à dire que les interférences de polarisation et de longueur d'onde sont négligeables avec une précision supérieure à  $10^{-7}$ . Le lidar (UV, VIS) résolu en polarisation utilisé dans les prochains chapitres a été développé au cours des thèses précédentes (Abou Chacra, 2009<sup>1</sup>) et (David, 2013<sup>34</sup>). La figure 3.2 présente le montage expérimental vue de dessus (à gauche) et un schéma des voies de détection (à droite).

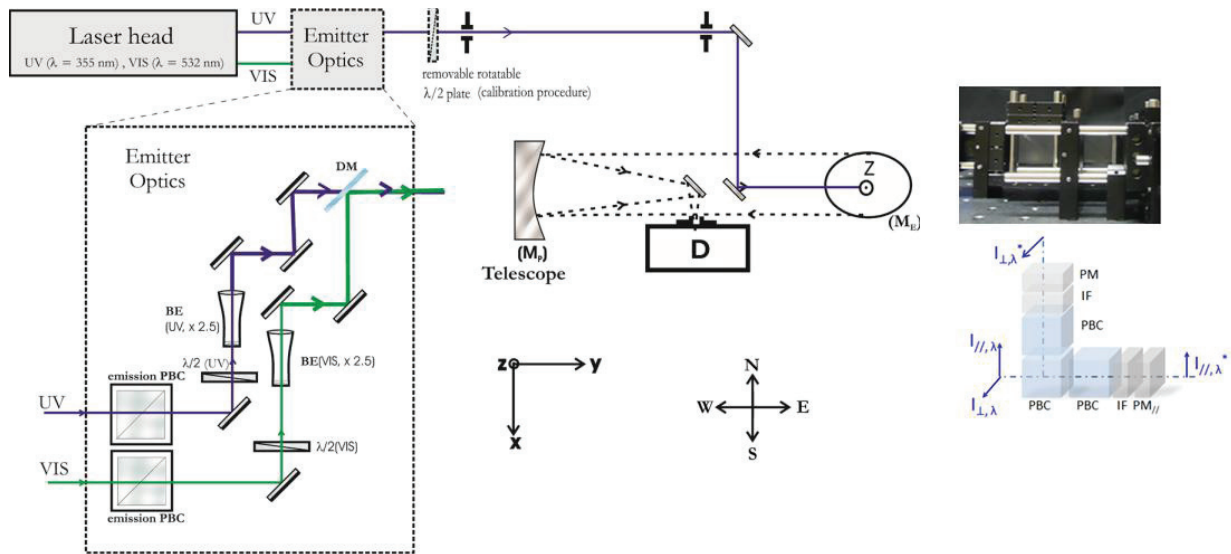


Figure 3.2 A gauche : Vue de dessus du lidar (UV, VIS) résolu en polarisation. Les impulsions laser sont issues d'un laser Nd: YAG doublé (532 nm) / triplé en fréquence (355 nm). Le miroir dichroïque DM est utilisé pour combiner les impulsions laser de 355 et 532 nm à travers l'optique d'émission avant de se propager dans l'atmosphère le long de l'axe z, après réflexion sur un miroir elliptique ( $M_E$ ). La lumière rétrodiffusée par l'atmosphère est collectée par un télescope avant d'entrer dans le détecteur lidar D, via un iris de 3 mm utilisé pour réduire le champ de vision du télescope à 5 mrad. L'optique d'émission est composée pour chaque longueur d'onde d'un cube séparateur de polarisation (PBC), pour assurer un taux de polarisation linéaire élevé de la lumière incidente (supérieure à 10000: 1), une demi-onde ( $\lambda / 2$ ), pour aligner la polarisation linéaire du laser avec le détecteur, un beam expander (BE) (2.5x) pour réduire la divergence laser et réduire la densité de puissance du laser, puis un miroir dichroïque DM utilisé pour combiner les impulsions laser de 355 et 532 nm. A droite : Photographie d'un voie de détection UV composé de deux PBC (en haut). Schéma de chaque canal de polarisation (en bas) composé de deux PBC, d'un filtre interférentiel (IF), d'une lentille et un tube photomultiplicateur (PM).

Ce polarimètre atmosphérique utilise un laser Nd: YAG doublé et triplé émettant des impulsions à une fréquence de 10 Hz. Un PBC est utilisé à l'émission pour s'assurer que les impulsions laser émises sont polarisées linéairement. Une lame demi-onde (HWP) est utilisée pour être en mesure de contrôler l'angle de la polarisation linéaire incidente par rapport à l'axe du détecteur défini par son PBC. Un élargisseur de faisceau 2,5x (Beam Expander en anglais) réduit la divergence laser jusqu'à 0,4 mrad. Les lasers UV et VIS sont combinés sur la même voie optique à travers un miroir dichroïque pour sonder les mêmes particules atmosphériques. La lumière rétrodiffusée par les particules et les molécules atmosphériques est recueillie avec un télescope newtonien  $f/3$  de 200 mm. Le champ de vision de 2,5 mrad (FOV) du télescope est déterminé par un iris de 3 mm de diamètre inséré au foyer du télescope, qui a également été choisi pour minimiser la diffusion multiple et les contributions du fond de ciel aux signaux lidar (David et al., 2012<sup>31</sup>). Après avoir été collectée par le télescope, la lumière rétrodiffusée est séparée spectralement et en polarisation  $\pi = \{ //, \perp \}$  par le détecteur. Chaque voie de détection en polarisation est composée de deux PBC pour assurer une séparation en polarisation précise et d'un filtre interférentiel pour assurer

la détection de la rétrodiffusion élastique uniquement et assurer une séparation spectrale précise.

### 3.2.2 Sensibilité et précision du polarimètre (UV, VIS)

Des filtres interférentiels sont utilisés pour s'assurer qu'il n'y a pas de parasitage par une autre longueur d'onde. De plus, ces filtres minimisent la contribution du bruit de fond ainsi que celle de la rétrodiffusion moléculaire (David et al., 2012<sup>31</sup>). Le signal de chaque PMT est ensuite échantillonné à une fréquence minimale de 20 MHz, ce qui conduit à une résolution minimale de 7.5 m verticalement. Le bruit statistique est réduit en faisant la moyenne des signaux sur un grand nombre d'impulsions lasers (allant jusqu'à 4000 impulsions moyennées) et en moyennant sur N canaux verticaux (en général on choisit une résolution de l'ordre de la centaine de m). Avec une incertitude meilleure que  $10^{-7}$ , la diaphonie en polarisation et en longueur d'onde est totalement négligeable comme le montre la matrice de transfert du détecteur qui lie l'intensité rétrodiffusée aux signaux de rétrodiffusion détectés (David et al., 2012<sup>31</sup>, 2013<sup>34</sup>) :

$$\begin{bmatrix} S_{uv, //} \\ S_{uv, \perp} \\ S_{vis, //} \\ S_{vis, \perp} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0.99 \eta_{uv, //} & 0 & 0 & 0 \\ 4 \times 10^{-8} \eta_{uv, \perp} & 0.72 \eta_{uv, \perp} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0.87 \eta_{vis, //} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \eta_{vis, \perp} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} I_{uv, //} \\ Q_{uv, \perp} \\ U_{vis, //} \\ V_{vis, \perp} \end{bmatrix} \quad (3.1)$$

où  $\eta_{p, \pi}$  est l'efficacité de détection électro-optique de la voie de détection ( $\lambda$ ,  $\pi$ ) correspondant, qui dépend de la réflectivité et de la transmission du miroir dichroïque et des cubes polarisant, de la transmission du filtre interférentiel et du gain du PMT aux tensions appliquées. Notre détecteur optique ( $\lambda$ ,  $\pi$ ) est caractérisé par une matrice diagonale bloc avec une diaphonie de  $4 \times 10^{-8}$  en polarisation soulignant la sensibilité de notre détecteur. Cela est dû au fait que notre détecteur partitionne efficacement les photons rétrodiffusés en fonction de leur polarisation  $\pi$  par l'utilisation de deux PBC pour chaque voie. On note notamment qu'il n'y a pas de contamination entre les canaux UV et VIS. Pour s'assurer qu'il n'y a pas de contamination entre les canaux UV et VIS, on utilise les filtres interférentiels qui assurent une séparation spectrale sans contamination ( $\Delta\lambda = 0,35$  nm). Toute erreur statistique et systématique pouvant affecter le rapport de dépolarisation des particules a été soigneusement analysée. Ainsi, des coefficients de rétrodiffusion de particules non sphériques aussi faibles que  $5 \times 10^{-8} \text{ m}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$  ont été mesurés et des dépolarisations de particules allant de la dépolarisation quasi moléculaire de  $6 \times 10^{-3}$  jusqu'à des dépolarisations de l'ordre de 40 % ont été évaluées à plusieurs kilomètres altitude (David et al., 2012<sup>31</sup>). Comme la relation entre le gain du PMT et la tension appliquée n'est pas connue avec précision, une procédure de calibration est nécessaire pour déterminer la constante d'étalonnage électro-optique  $G = \eta_{\perp} / \eta_{//}$  correspondant à un canal  $\lambda$ . Comme la matrice de transfert du détecteur est diagonale, une procédure d'étalonnage pour chaque longueur

d'onde peut être effectuée. Cela permet de déterminer la constante G pour chaque voie du détecteur. Nous pouvons définir la dépolarisation mesurée pour chaque voie  $\lambda$  selon :

$$\delta^* = \frac{P_{//}}{P_{\perp}} \quad (3.2)$$

On peut établir une relation entre la constante de calibration G à la dépolarisation mesurée en introduisant une variation de l'angle de la polarisation linéaire  $\varphi$  de la lumière incidente (Alvarez et al., 2006<sup>5</sup>) :

$$\delta^* = G \frac{\delta + \tan^2(\varphi)}{1 + \delta \tan^2(\varphi)} \quad (3.3)$$

Alvarez et al. (2006) introduisent une quantité de contrôle de la diaphonie de polarisation en faisant varier l'angle de la polarisation linéaire incidente  $\varphi$  pour effectuer une procédure d'étalonnage précise, en s'appuyant sur le plus grand nombre de points possible. Ils mesurent donc  $\delta^*$  en fonction de  $\varphi$  et ajustent la courbe obtenue à l'aide de l'équation (3.3) pour obtenir G. Pour réduire l'erreur systématique au maximum, nous avons choisi d'appliquer la méthodologie proposée par Alvarez et al. avec une douzaine de points de calibration. Cette méthodologie évite l'hypothèse d'une atmosphère constituée uniquement de molécules et permet une plus grande précision de calibration qu'en s'appuyant uniquement sur deux points. En résumé,  $\delta^*$  est d'abord mesuré en fonction de l'altitude pour douze angles de polarisation linéaire incidente. Ensuite  $\delta^*$  est moyenné sur plusieurs Km où les conditions atmosphériques sont stables. Enfin, ces valeurs  $\langle \delta^* \rangle$  sont utilisées pour ajuster l'équation (3.3) et obtenir G tel qu'illustré Figure 3.3 qui représente  $\langle \delta^* \rangle$  en fonction de  $\varphi$ . Par cette méthode, G est connu avec moins de 2 % d'erreur pour les deux longueurs d'onde. Dans le cas de la calibration montrée figure 3.3, on obtient  $G_{uv} = 37.16 \pm 0.22$  et  $G_{vis} = 15.12 \pm 0.23$ .

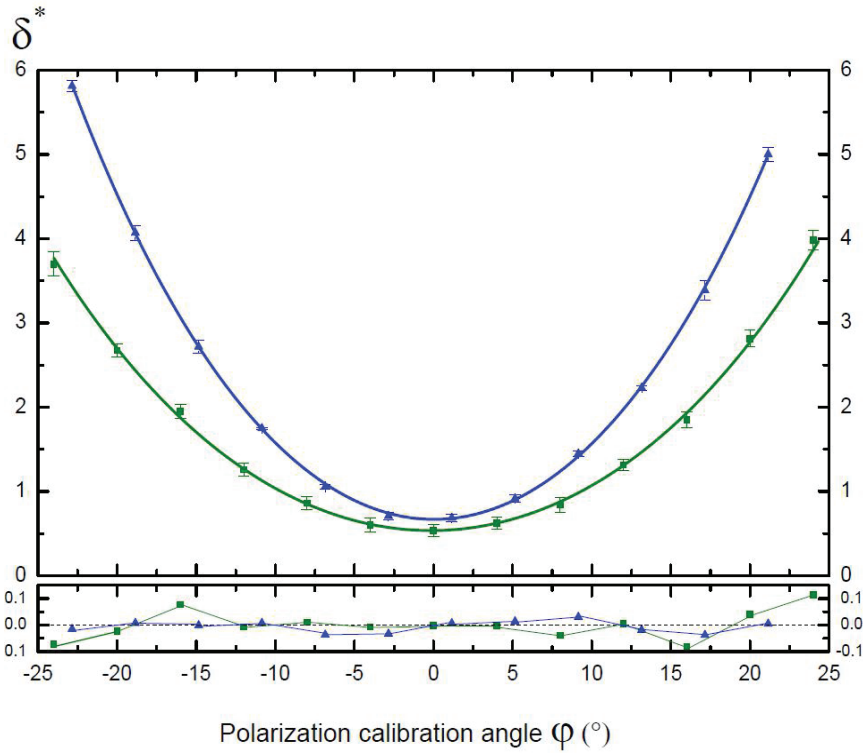


Figure 3.3 Dépolarisation mesurée moyennée entre 2 et 3 Km dans l'UV-VIS (en au) en fonction de l'angle de la polarisation linéaire incidente. Les deux courbes sont ajustées avec Eq. (3.3) afin d'évaluer la constante d'étalonnage électro-optique. On obtient  $G(\text{UV}) = 37.16 \pm 0.22$  et  $G(\text{VIS}) = 15.12 \pm 0.23$ . Cette figure présente également le diagramme de résidus des ajustements qui ne présentent pas de structure systématique.

### 3.2.3 Coefficients de rétrodiffusion lidar

Nous pouvons déduire des signaux détectés les coefficients de rétrodiffusion en polarisation parallèle (//) et croisée ( $\perp$ ) à partir des signaux de rétrodiffusion lidar comme suit:

$$\beta_{p, //} = (R_{//} - 1)\beta_{m, //} \quad (3.4)$$

$$\beta_{p, \perp} = (R_{//}\delta_p - \delta_m)\beta_{m, //} \quad (3.5)$$

Où  $\beta_{m, //}$  est le coefficient de rétrodiffusion moléculaire qui peut être calculé en utilisant les données du centre européen pour les prévisions météorologiques à moyen terme (ECWMF),  $\delta_m$  est la dépolarisation moléculaire qui est égale à  $0.0037 \text{ Mm}^{-1} \cdot \text{Sr}^{-1}$  et  $0.0036 \text{ Mm}^{-1} \cdot \text{Sr}^{-1}$  respectivement dans l'UV et dans le VIS pour nos filtres interférentiels et la configuration de notre lidar (David et al., 2012<sup>31</sup>). Le rapport de dépolarisation  $\delta_p = G(I_{\perp}/I_{//})$  est connu après notre procédure d'étalonnage suivant la méthode décrite par Alvarez, enfin le rapport lidar parallèle (aussi appelé contraste)  $R_{//} = 1 + \beta_{p, //}/\beta_{m, //}$  est obtenu en utilisant l'algorithme d'inversion de Klett au signal détecté co polarisé (Klett, 1985<sup>98</sup>).

### 3.2.4 Evaluation de la concentration massique à partir de la mesure lidar

A partir des profils verticaux du coefficient de rétrodiffusion des particules désertiques  $\beta_d$ , obtenus après le partitionnement optique (cf. section 3.3), on peut déterminer les profils verticaux des concentrations massiques de particules désertiques  $M_d$  comme suit :

$$M_d = \eta_d S_d \beta_d \quad (3.6)$$

où  $S_d$  est le ratio lidar des particules désertiques et  $\eta_d$  est le facteur de conversion extinction-masse qui dépend de la taille, de la forme et de la composition chimique des particules désertiques. En utilisant la définition du ratio lidar, le facteur de conversion extinction-masse est donné par :

$$\eta_d = \frac{M_d}{\alpha_d} = \frac{4}{3} \rho_d \frac{r_{\text{eff},d}}{\langle Q_{\text{ext},d} \rangle} \quad (3.7)$$

où  $\rho_d$  est la densité des particules désertiques et où  $\langle Q_{\text{ext},d} \rangle$  est l'efficacité effective d'extinction et  $r_{\text{eff},d}$  le rayon effectif des particules donnés par (Schumann et al., 2011<sup>205</sup>) :

$$\langle Q_{\text{ext},d} \rangle = \frac{\int Q_{\text{ext},d}(r) A(r) n(r) dr}{\int A(r) n(r) dr} \quad (3.8)$$

$$r_{\text{eff},d} = \frac{\int r^3 n(r) dr}{\int C_{\text{habit}} r^2 n(r) dr} \quad (3.9)$$

où  $A$  est la surface projetée, sur le plan perpendiculaire à la direction de propagation du rayonnement, de la particule de taille  $r$  et  $C_{\text{habit}}(r)$  est le rapport de la surface projetée des particules de taille  $r$  à la surface projetée d'une sphère de volume équivalent. Ainsi, afin d'évaluer la concentration en masse des particules désertiques, trois paramètres :  $\eta_d$ ,  $\beta_d$  et  $S_d$  sont nécessaires :

- $\eta_d$  et  $S_d$  sont évalués numériquement pour différents modèles de forme afin de discuter de l'impact de la forme supposée lors des simulations numériques sur les profils des concentrations de masse des particules désertiques obtenus à partir d'analyses des profils verticaux des coefficients de rétrodiffusion du lidar.
- $\beta_d$  est évalué en appliquant des partitionnements optiques à deux et trois composants selon les cas. Pour le cas d'un mélange à deux composants, cela nécessite de connaître au préalable la dépolarisation linéaire des particules désertiques. Pour le cas plus complexe d'un mélange à trois composants, cela nécessite la connaissance préalable de la dépolarisation linéaire et de l'exposant d'Angstrom de toutes les particules non sphériques en présence dans le mélange.

Les deux prochaines sections sont dédiées à la description de la méthodologie suivie pour retrouver ces paramètres. La section 3.3 décrit le partitionnement optique d'un mélange externe afin de quantifier la rétrodiffusion des particules désertiques atmosphériques. La section 3.4 décrit les simulations numériques réalisées afin d'obtenir les paramètres nécessaires au partitionnement optique et à l'évaluation de la concentration en masse des particules désertiques ( $\eta_d$  et  $S_d$ ).

### 3.3 Méthodologie pour évaluer $\beta_d$ : partitionnement optique

Pour étudier la dépendance en taille et en forme des profils verticaux de rétrodiffusion des particules désertiques présentes dans l'atmosphère, un lidar (UV, VIS) résolu en polarisation est utilisé pour appliquer un partitionnement optique des mélanges externes contenant des particules désertiques. Pour obtenir les paramètres nécessaires au partitionnement, des simulations numériques se basant sur plusieurs modèles de formes seront envisagées. Nous présenterons dans cette section les méthodes de partitionnement optique utilisés pour partitionner les mélanges externes de particules à l'aide d'un lidar (UV, VIS) résolu en polarisation. Pour cela plusieurs paramètres ; notamment le ratio lidar, le rapport de dépolarisation, l'exposant d'angström de rétrodiffusion et le facteur de conversion d'extinction massique des particules désertiques ; doivent être connus. Cela nous permettra d'aborder la précision et la sensibilité nécessaires pour être en mesure de partitionner optiquement les mélanges externes de particules à deux ou trois composants et d'évaluer les profils verticaux des concentrations massiques des particules désertiques. Cela permettra également de décrire plus en détail les simulations numériques se basant sur l'approximation en dipôles discrets qui ont été réalisées pour modéliser des particules désertiques ayant une forme déterminée (CAL, DOL, AGG, SIL) dérivés d'une campagne de terrain (Kandler et al., 2011<sup>87</sup>) par une méthode de photogrammétrie (on parlera de stéréo-particules pour stéréogrammes) avec une potentielle rugosité de surface. Nous utiliserons également le modèle des sphéroïdes présenté au chapitre précédent afin de pouvoir les comparer.

#### 3.3.1 Partitionnement optique

Dans le cadre du formalisme de la matrice de diffusion, dans le cas d'un mélange externe de particules atmosphériques composé de particules sphériques (s) et non sphériques (ns), les coefficients de la matrice de diffusion du mélange de particules  $F_{ij,p}$  sont intensifs (cf. Chapitre 1) et on a :

$$F_p = F_s + F_{ns} \quad (3.10)$$

On peut, de la même façon, considérer un mélange externe plus complexe de trois composantes atmosphériques non sphériques  $\{p\} = \{ns1, ns2, ns3\}$ , on a alors :

$$F_p = F_{ns1} + F_{ns2} + F_{ns3} \quad (3.11)$$

Pour être en mesure d'observer ces mélanges externes de particules in situ, nous utilisons un lidar (UV, VIS) résolu en polarisation  $\pi = \{//, \perp\}$  dont le détecteur a été spécifié en laboratoire pour être un polarimètre multi spectral précis et sensible (cf. section précédente). Comme introduit au chapitre 1, le coefficient de rétrodiffusion des particules est lié à l'intégrale sur la distribution de taille de la section efficace des particules (équation 1.5). Nous rappelons ici sa définition :

$$\beta_p = \int_{SD} \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_p n_p(r) dr = \int_{SD} C_{sca,p} \frac{F_{11,p}}{4\pi} n_p(r) dr = N_p \times \left\langle \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_p \right\rangle \quad (3.12)$$

Les coefficients de rétrodiffusion des particules résolus par rapport à la polarisation linéaire incidente  $\pi = \{//, \perp\}$  sont obtenus lors de nos mesures. Les profils verticaux des coefficients de rétrodiffusion co-polarisée et de polarisation croisée sont obtenus en appliquant l'algorithme d'inversion de Klett (Klett, 1985<sup>98</sup>) sur les signaux détectés respectivement par les canaux de polarisation parallèle et croisé du détecteur. Ceci simultanément dans l'UV et le VIS. Ils représentent l'intégrale des sections efficaces de rétrodiffusion co polarisé et de polarisation croisée des particules sur la distribution de la taille pour chaque voie de détection :

$$\beta_{p,//} = \int_{SD} \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{p,//} n_p(r) dr = \int_{SD} \frac{C_{sca,p}}{4\pi} \left( \frac{F_{11,p} + F_{22,p}}{2} \right) n_p(r) dr = N_p \times \left\langle \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{p,//} \right\rangle \quad (3.12.a)$$

$$\beta_{p,\perp} = \int_{SD} \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{p,\perp} n_p(r) dr = \int_{SD} \frac{C_{sca,p}}{4\pi} \left( \frac{F_{11,p} - F_{22,p}}{2} \right) n_p(r) dr = N_p \times \left\langle \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{p,\perp} \right\rangle \quad (3.12.b)$$

La connaissance préalable du ratio lidar  $S_p$  est nécessaire pour l'inversion, dont la dépendance en taille et en forme sera discuté (cf. Section 3.5.2 (c)), est requise (cf. chapitre 1) :

$$S_p = \frac{\alpha_p}{\beta_p} \quad (3.13)$$

Seules les particules non sphériques, pour lesquelles  $F_{11,ns}$  diffère de  $F_{22,ns}$ , présentent un coefficient de rétrodiffusion de polarisation croisée  $\beta_{p,\perp}$  non nul et donc dépolarisent la lumière incidente et on a (par définition, cf. équation 1.10) :

$$\delta_p = \frac{\beta_{p,\perp}}{\beta_{p,//}} \quad (3.14)$$

Comme pour les éléments de la matrice de diffusion, les grandeurs  $\beta_p$  et  $\delta_p$  dépendent de la taille, de la forme et de la composition chimique des particules. Toutes ces grandeurs sont dépendantes de la longueur d'onde et le comportement spectral des sections efficaces de



rétrodiffusion est exprimé sous la forme de l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion  $BAE_p$  (par définition, cf. équation 1.11) :

$$\left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right)^{-BAE_p} = \frac{\beta_{p,\lambda_1}}{\beta_{p,\lambda_2}} = \frac{\langle \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{p,\lambda_1} \rangle}{\langle \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{p,\lambda_2} \rangle} \quad (3.15)$$

Les définitions ci-dessus peuvent être appliquées soit à un type d'aérosol, tel que des particules désertiques, soit à des mélanges de particules. Cependant, il faut veiller à distinguer les observables lidars (rapport de dépolarisation, exposant d'Angstrom, ratio lidar) qui concernent les mélanges de particules de celles dédiées aux particules désertiques qui sont obtenus par des expériences de laboratoire ou des simulations numériques. Si l'on considère un mélange de particules composé de particules désertiques et de particules sphériques, la dépolarisation  $\delta_p$  du mélange de particules mesurée avec un lidar résolu en polarisation diffère de la dépolarisation  $\delta_{ns} = \delta_d$  des particules désertiques (Miffre et al., 2012b<sup>137</sup>).

### 3.3.2 Partitionnement optique d'un mélange externe à deux composants

Considérons désormais un mélange externe composé de particules désertiques (indice d pour dust en anglais) et d'autres particules (indice b pour background en anglais)  $\{p\} = \{d, b\}$  comme schématisé figure 3.4. On suppose également que les autres particules sont proches de la symétrie sphériques ( $\delta_b$  est très proche de 0). Dans le cas où l'on suppose que le mélange de particules est externe, on peut appliquer le principe de superposition (eq. 3.10) :

$$\beta_p = \beta_b + \beta_d \quad (3.16)$$

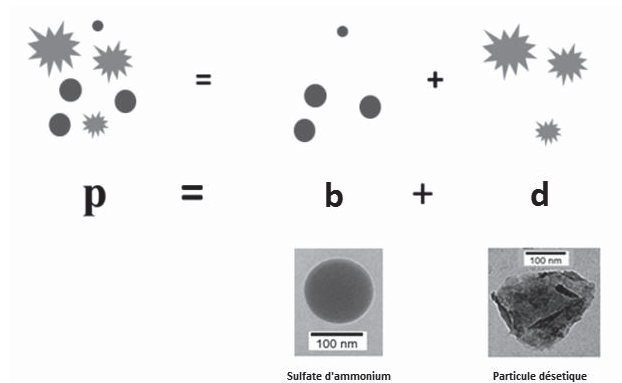


Figure 3.4 Schéma d'un mélange externe de particules composé de particules sphériques (indice b) et non sphériques (indice d). Le coefficient de rétrodiffusion  $\beta_p$  du mélange de particules est la somme du coefficient de rétrodiffusion de chaque composant.

La relation entre le coefficient de rétrodiffusion des particules et les coefficients de rétrodiffusion résolus en polarisation est la suivante (eq. 3.12 & 3.12.a.b) :

$$\beta_p = \beta_{p, //} + \beta_{p, \perp} \quad (3.17)$$

Comme les particules sphériques ne dépolarisent pas une onde électromagnétique incidente, nous pouvons supposer que le coefficient de rétrodiffusion perpendiculaire n'est affecté que par des particules non sphériques alors que le parallèle est affecté par des particules sphériques et non sphériques. Ainsi, nous pouvons noter:

$$\beta_{p, //} = \beta_{d, //} + \beta_{b, //} \quad (3.17.a)$$

$$\beta_{p, \pm} = \beta_{d, \pm} = \delta_d \beta_{d, //} \quad (3.17.b)$$

Sachant que :

$$\beta_d = \beta_{d, //} + \beta_{d, \pm} \quad (3.18)$$

Et :

$$\delta_d = \frac{\beta_{d, \pm}}{\beta_{d, //}} \quad (3.19)$$

On peut donc obtenir les coefficients de rétrodiffusion des particules désertiques et des autres particules en associant les équations 3.17 à 3.19 :

$$\beta_d = \beta_{d, \pm} \left(1 + \frac{1}{\delta_d}\right) = \beta_{p, \pm} \left(1 + \frac{1}{\delta_d}\right) \quad (3.20)$$

$$\beta_b = \beta_{b, //} = \beta_{p, //} - \beta_{d, //} = \beta_{p, //} - \frac{\beta_{p, \pm}}{\delta_d} \quad (3.21)$$

On peut voir que la connaissance du rapport de dépolarisation des particules désertiques est nécessaire afin d'évaluer le traceur optique (le coefficient de rétrodiffusion) des particules désertiques et des particules de fonds (eq. 3.20 et 3.21). Le rapport  $\delta_p$  n'est pas intensif. Ainsi, même si  $\delta_b$  est supposé nul, il n'y a aucune raison pour que  $\delta_p$  soit égal à  $\delta_d$ . En combinant les équations ci-dessus, on peut retrouver la relation entre la dépolarisation du mélange et la dépolarisation des particules désertiques (Miffre et al., 2011<sup>135</sup>) :

$$\delta_p = \frac{\beta_{d, //}}{\beta_{d, //} + \beta_{s, //}} \delta_d \quad (3.22)$$

La présence de particules sphériques dans l'atmosphère, où l'humidité relative est rarement inférieure à quelques pourcents, peut presque toujours être supposée. En conséquence, les propriétés de rétrodiffusion et de dépolarisation des particules désertiques ne peuvent pas être traitées avec un lidar seul. Ainsi, dans ce qui suit, un soin particulier a été pris pour distinguer les quantités relatives aux mélanges de particules (indice p) qui seront traités à l'aide des observations in situ de celles relatives aux particules désertiques (indice d). Nous déterminons ici  $\delta_d$  en considérant des simulations numériques se basant sur plusieurs modèles de forme (sphéroïdes, stéréo particules lisse, puis stéréo particules rugueuses) pour

deux distributions de taille. Dans le cas où le mélange externe est composé de deux particules non sphériques, on a (Miffre et al., 2012b<sup>137</sup>) :

$$\beta_{p,\pm} = \beta_{d,\pm} + \beta_{b,\pm} = \delta_d \beta_{d,//} + \delta_b \beta_{b,//} \quad (3.23)$$

On a alors :

$$\beta_{d,\pm} = \frac{\beta_{p,\pm} - \delta_b \beta_{p,//}}{1 - \delta_b / \delta_d} \quad (3.24)$$

L'équation 3.24 décrit l'impact quantitatif du rapport de dépolarisation des particules de fond  $\delta_b$  sur le coefficient de rétrodiffusion  $\beta_{d,\pm}$ . Supposer que  $\delta_b = 0$  comme nous l'avons fait conduit à une surestimation maximale de  $\beta_{d,\pm}$  égale à  $\delta_b \times \beta_{p,//}$ . Ce terme de surestimation maximale est négligeable lorsque  $\delta_b \ll \delta_p$ .

### 3.3.3 Partitionnement optique d'un mélange externe à trois composants

Lorsque les particules désertiques sont en mélange externe avec des particules de sel marin et des espèces hydrosolubles, l'algorithme de partitionnement  $p = \{d, b\}$  ne peut plus être appliqué étant donné la non sphéricité des particules de sels marin (ss) qui doit être prise en compte. Dans des travaux précédents cette thèse, notre équipe a publié un algorithme de partitionnement pour un mélange externe à trois composants (Miffre et al., 2012b<sup>137</sup>). Une connaissance préalable de la dépolarisation des particules et des exposants d'Ångström des particules désertiques et des particules de sel marin est alors requise. Comme pour l'algorithme de partitionnement d'un mélange de deux composants, ces quantités sont évaluées à partir de simulations numériques. Ce qui permet d'appliquer cet algorithme de partitionnement d'un mélange à trois composants est l'analyse précise de la dépendance spectrale de l'onde EM rétrodiffusée.

Pour déterminer le coefficient de rétrodiffusion de chaque composant du mélange de trois particules ( $p$ ) =  $\{d, ss, ws\}$ , six grandeurs inconnues doivent être déterminées pour chaque longueur d'onde considérée, correspondant aux trois coefficients de rétrodiffusion résolu en polarisation :  $\beta_{d,\pi}$ ,  $\beta_{ss,\pi}$  et  $\beta_{ws,\pi}$  avec  $\pi = \{//, \perp\}$ . Chacun de ces coefficients de rétrodiffusion doit être déterminé aux deux longueurs d'onde Lidar  $\lambda = \{\lambda_1, \lambda_2\}$ . Par conséquent, douze coefficients de rétrodiffusion inconnus doivent être déterminés, notés ci-après  $\beta_{p,\pi}(\lambda)$ . Les coefficients de rétrodiffusion mesurés  $\beta_{p,//}(\lambda)$  et  $\beta_{p,\pm}(\lambda)$  fournissent un ensemble de quatre équations (deux pour chaque longueur d'onde) :

$$\beta_{p,//}(\lambda) = \beta_{d,//}(\lambda) + \beta_{ss,//}(\lambda) + \beta_{ws,//}(\lambda) \quad (3.25)$$

$$\beta_{p,\pm}(\lambda) = \beta_{d,\pm}(\lambda) + \beta_{ss,\pm}(\lambda) + \beta_{ws,\pm}(\lambda) \quad (3.26)$$

Six autres équations sont ensuite fournies par la dépolarisation des particules non sphériques aux deux longueurs d'onde :

$$\delta_{d/ss/ws}(\lambda) = \frac{\beta_{d/ss/ws,\pm}(\lambda)}{\beta_{d/ss/ws,//}(\lambda)} \quad (3.27)$$

Les deux dernières équations sont obtenues en abordant le comportement spectral du coefficient de rétrodiffusion  $\beta_d$ . Nous choisissons ici l'exposant d'Ångstrom de rétrodiffusion  $BAE_d$  des particules désertiques qui prend en compte la dépendance spectrale de  $\beta_d$ .

En conclusion la figure 3.5 présente le fonctionnement schématisé de l'algorithme de partitionnement d'un mélange externe à trois composants. Les paramètres d'entrée tels que les rapports de dépolarisation des particules non sphériques et les exposants d'Angstrom sont utilisés en combinaison avec des mesures de rétrodiffusion résolues en polarisation pour obtenir le coefficient de rétrodiffusion de chaque composant du mélange. Huit grandeurs sont obtenues par simulations numériques ( $\delta_d(\lambda)$ ,  $\delta_{ss}(\lambda)$ ,  $\delta_{ws}(\lambda)$ ,  $A_p(\lambda_1, \lambda_2)$  avec  $\lambda = \{\lambda_1, \lambda_2\}$ ) et sont utilisés en combinaison avec quatre coefficients de rétrodiffusion mesurés in situ ( $\beta_{p,//}(\lambda)$  et  $\beta_{p,\pm}(\lambda)$  avec  $\lambda = \{\lambda_1, \lambda_2\}$ ) pour déterminer les douze coefficients de rétrodiffusion des particules  $\beta_{p,\pi}(\lambda)$ , avec  $(p) = \{d, ss, ws\}$ ,  $\pi = \{/, \perp\}$  et  $\lambda = \{\lambda_1, \lambda_2\}$ .

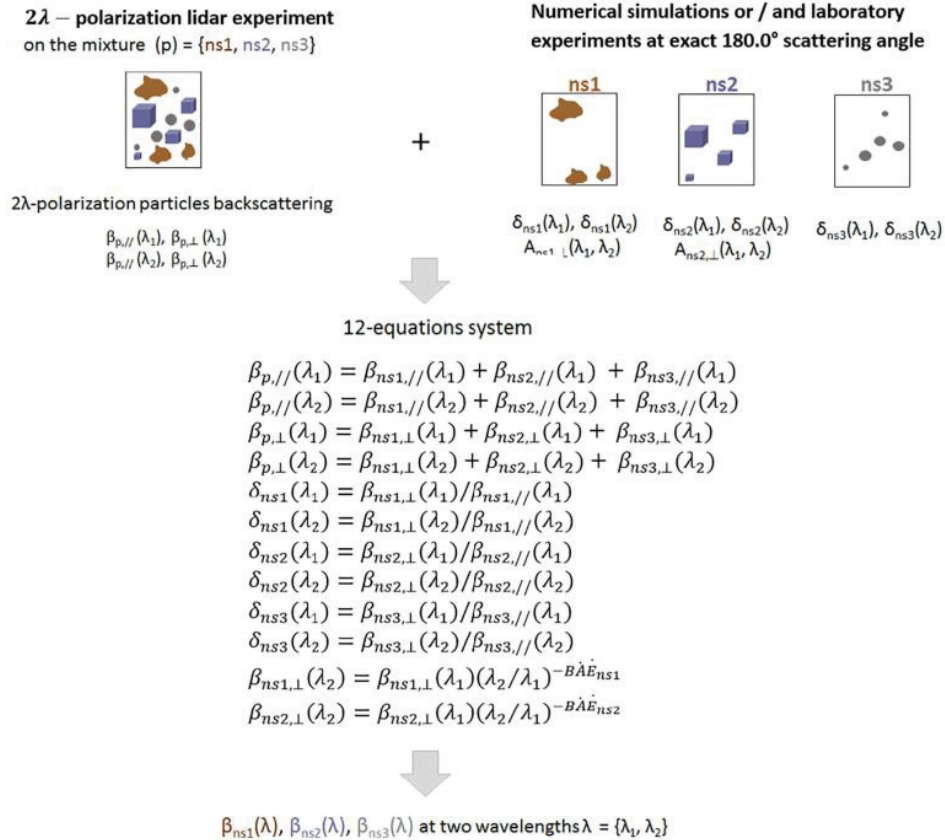


Figure 3.5 L'algorithme permettant de partitionner les mélanges externes à trois composantes (p) = {ns1, ns2, ns3} en leurs coefficients de rétrodiffusion spécifique, extrait de (David et al., 2013a<sup>32</sup>). Le mélange de particules à trois composants est partitionné en couplant un lidar résolu en polarisation 2λ avec des simulations numériques et / ou des expériences de laboratoire à l'angle exact de rétrodiffusion pour chaque composant non sphérique du mélange.

## 3.4 Evaluation des paramètres d'entrée : Simulations numériques

Dans cette section, le rapport de dépolarisation, le ratio lidar et l'efficacité d'extinction sont calculés pour chaque particule (CAL, DOL, AGG, SIL) en fonction du paramètre de taille. Ce qui nous permet par la suite d'évaluer numériquement les quantités nécessaires au partitionnement optique d'un mélange externe de particules atmosphériques incluant des particules désertiques (rapport de dépolarisation, exposant d'Angstrom de rétrodiffusion, ratio lidar) pour chaque modèle de forme (stéréo particule lisse, stéréo particule rugueuse, sphéroïde) et pour les deux distributions de taille considérées.

### 3.4.1 Distributions de taille et de forme envisagées

#### (a) Distributions de taille

Deux distributions de taille différentes mais réalistes sont considérées pour chaque modèle de forme considéré. Ces deux distributions de taille (SD) peuvent être considérées comme réalistes, c'est-à-dire représentatives des situations de transport sur de longues distances où les plus grosses particules sont retombées au sol par sédimentation en favorisant les modes les plus fins. Nous supposons également que les distributions de taille des particules désertiques sont indépendantes de l'altitude. Les deux distributions de taille considérées sont les suivantes :

- **SD1** : Issu de Mallet et al. (2004<sup>121</sup>). Cette distribution de taille est une double log-normale, avec un mode fin ( $r_f = 0.036 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_f = 1.97$ ) et un mode d'accumulation ( $r_a = 0,36 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_a = 1,98$ ), dérivés des mesures in situ sur des particules désertiques après un long transport jusqu'à une zone urbaine française (Marseille). Cette SD a été notamment utilisé par notre équipe (Miffre et al., 2012b<sup>137</sup>) pour un triple partitionnement optique utilisant l'approximation de forme sphéroïdale.
- **SD2** : Issu de Lindqvist et al. (2014<sup>115</sup>). Cette distribution de taille est issue de la campagne SAMUM, c'est une log-normale avec un mode :  $r_p = 0.4 \mu\text{m}$  et  $\sigma_p = 2.0$ . Cette SD a été ajustée pour donner un poids plus important aux paramètres de plus grande taille afin de compenser la troncature des plus grosses particules désertiques lors de la numérisation tout en gardant une majorité de particules fines.

Pour éviter d'introduire des effets spectraux artificiels, les deux distributions de taille sont tronquées au même rayon aux deux longueurs d'onde. Le rayon des particules varie de  $0,042 \mu\text{m}$  (paramètre de taille  $x = 0,5$  à  $\lambda = 532 \text{ nm}$ ) à  $1,13 \mu\text{m}$  ( $x = 20$  à  $\lambda = 355 \text{ nm}$ ). La plage des rayons calculés couvre ainsi les distributions de taille aux deux longueurs d'onde considérées.

#### (b) Distributions de forme

Pour les sphéroïdes, nous avons repris les simulations numérique T-matrix évoquée au chapitre précédent et les avons appliquées aux distributions de taille considérées dans cette étude. Afin de comparer les simulations se basant sur le modèle des sphéroïdes aux formes plus complexe, nous avons utilisé un indice  $m = 1,57-0,007i$  dans l'UV et dans le VIS, ainsi seul le paramètre de taille (allant de 0 à 20) induit une différence spectrale pour la réponse optique des sphéroïdes. Nous obtenons ainsi les coefficients de la matrice de diffusion à l'angle exact de rétrodiffusion pour les deux SD expérimentales (SD1, SD2) et aux deux longueurs d'onde (UV, VIS) pour deux distributions de forme des sphéroïdes considérées (loi de puissance  $f(\epsilon) = \epsilon^n$ , avec  $n = 0$  ou  $3$ ) et pour le même indice de réfraction.

Pour les formes plus complexes, quatre particules désertiques ont été imagées par photogrammétrie. La technique de photogrammétrie consiste à imager les mêmes particules à partir de deux directions légèrement différentes à l'aide d'un microscope électronique à balayage. Lindqvist et al. (2014) ont appliqué cette technique sur des échantillons de particules désertiques collectés ayant des diamètres de quelques micromètres. Ensuite, une technique de spectroscopie a été appliquée pour dériver les principaux minéraux composant ces particules désertiques. Sur la base de leur minéralogie, les particules ont ensuite été nommées CAL (calcite), DOL (dolomite), AGG (agrégat de plusieurs minéraux) et SIL (silicate). Nous présentons figure 3.6 les stéréogrammes non rugueux (issus des travaux de 2014 de Lindqvist et al., 2014<sup>115</sup>) et rugueux utilisés pour cette étude (extrait de Kemppinen et al., 2015<sup>92</sup>). La forme de ces quatre particules (CAL, DOL, AGG, SIL) est utilisée comme un proxy pour celle des particules désertiques.

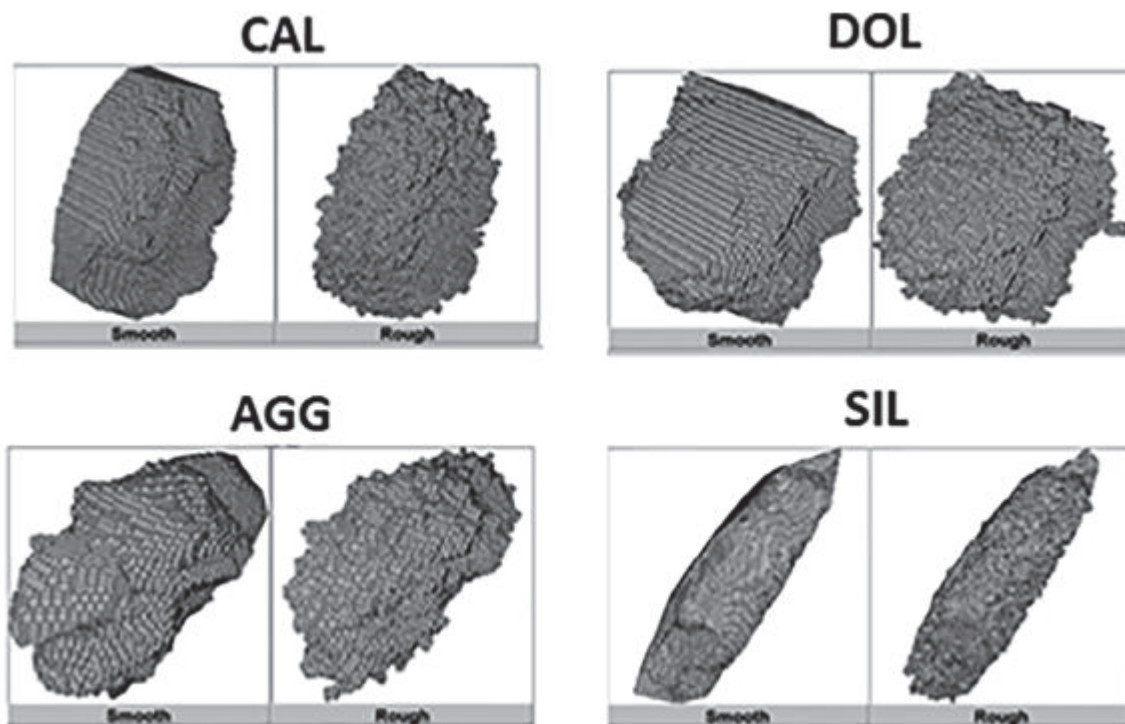


Figure 3.6 Un rendu tridimensionnel des quatre particules observées par photogrammétrie (CAL, DOL, AGG, SIL), montrant à la fois la particule originale et non rugueuse (gauche, après appelée smooth stéréo-particule pour

stéréogramme lisse en anglais) et une version rugueuse (droite, appelé rough stéréo-particule pour stéréogramme rugueux en anglais). Extrait de (Kemppinen et al., 2015<sup>92</sup>)

Les stéréogrammes des particules désertiques issus de Lindqvist et al. (2014) n'ont pas de surfaces particulièrement rugueuses, en partie à cause des particules imagées et en partie à cause des limites inhérentes à la modélisation de l'état de la surface. Il est néanmoins intéressant de considérer explicitement l'impact de la rugosité de la surface des particules sur l'évaluation des paramètres nécessaires à l'analyse de données issues de la télédétection atmosphériques (dans notre cas sur les profils verticaux issus des observations lidar). Une méthodologie pour implémenter une rugosité de surface à des particules simulées par DDA a été développée par Kemppinen et al. (2015). Trois différents niveaux de rugosité potentielle ont été considérés par Kemppinen et al., ici nous avons choisi d'inclure le niveau intermédiaire qui représente un bon compromis. Des particules lisses et des particules rugueuses sont donc utilisées pour obtenir le ratio lidar, l'exposant d'Angstrom et le rapport de dépolarisation des particules désertiques aux deux longueurs d'onde considérées. Dans ce qui suit, nous utiliserons le terme de "stéréo-particules" (ou "stéréo-particules rugueuses") pour désigner la moyenne d'ensemble des quatre stéréogrammes (lisses ou rugueux) (CAL, DOL, AGG, SIL) avec des poids égaux.

### **(c) Calculs numériques**

Les propriétés de diffusion des stéréo-particules ont été calculées avec un code utilisant l'approximation en dipôles discrets (DDA) ADDA (Yurkin et Hoekstra, 2011<sup>254</sup>). La surface des particules est modélisée en un réseau irrégulier de dipôles individuels. Cela permet de modéliser les caractéristiques des surfaces de particules aussi petites que 10 nm. Dans cette étude, nous calculons les propriétés optiques des particules désertiques en utilisant environ 800 000 éléments de volume pour chaque particule modèle. Cela nous permet d'atteindre un rayon équivalent en volume de 1,13  $\mu\text{m}$  dans l'UV et dans le VIS. Le DDA est considéré comme précis tant que la résolution du dipôle est suffisante. Quantitativement, la valeur  $\gamma = |m|kl$  ( $k$  est le nombre d'onde,  $l$  est la taille du dipôle) peut être utilisée pour estimer l'exactitude des simulations,  $\gamma \leq 1$  étant considéré comme suffisamment précis (Zubko et al., 2010<sup>259</sup>). La plus grande valeur de  $\gamma$  calculée lors de cette étude est de 0,6. Les simulations numériques ont été exécutées sur le superordinateur de l'Institut météorologique finlandais Voima (Cray X C30, 10 simulations simultanées de 64 cœurs chacune). Pour tenir compte de l'orientation aléatoire des particules désertiques, 8192 orientations aléatoires ont été calculées pour chaque particule. Les simulations ont été réalisées de manière identique pour les versions lisses et rugueuses des stéréo particules. La méthode de simulations numériques par approximation en dipôles discret est puissante car elle permet de modéliser des formes complexes, allant jusqu'à inclure une rugosité de surface. Ce code nécessite néanmoins de long temps de calcul et ne s'appuie pas sur une solution analytique des équations de Maxwell dû à la complexité des formes envisagées.

Par rapport aux travaux précédents (Kemppinen et al., 2015<sup>92</sup>, Lindqvist et al., 2014<sup>115</sup>), de nouveaux calculs de diffusion de lumière sont effectués permettant d'étendre la plage de paramètres de taille jusqu'à 20 pour les versions lisses et rugueuses de chaque stéréoparticule. Plus précisément, les éléments de la matrice de diffusion, les sections efficace de diffusion et d'extinction sont ici calculés pour les quatre particules modèle (CAL, DOL, AGG, SIL) aux paramètres de taille suivants  $x = 0,5, 1, 2, \dots, 10, 12, \dots, 20$ . Comme pour la forme, la valeur choisie pour l'indice de réfraction est dérivée d'observations de terrain (Kandler et al., 2011<sup>87</sup>). Ainsi chaque particule a le même indice de réfraction  $m = 1,57-0,007i$ , comme celui retenu pour les simulations se basant sur le modèle des sphéroïdes (David et al., 2013a<sup>32</sup>), pour se concentrer sur la sensibilité à la taille et la forme retenue des particules des algorithmes de partitionnement optique et ainsi pouvoir comparer les résultats des partitionnements optique en variant uniquement le modèle de forme considéré pour les particules désertiques. Par conséquent, toute différence dans les résultats de l'algorithme de partitionnement optique résultant de l'utilisation de sphéroïdes ou de formes complexes (stéréo particules) provient du modèle de forme supposé.

	CAL	DOL	AGG	SIL	Stereo-particles
Smooth	1.33	1.17	1.45	2.16	1.53
Rough	1.42	1.26	1.53	2.20	1.60

Tableau 3- 1 Rapport  $C_{\text{habit}}$  tel que défini dans l'équation 3.28 calculé à partir du code ADDA. Le rapport est donné pour chaque stéréo-particules lisses (smooth en anglais) et rugueuses (rough en anglais) et pour les stéréo-particules en appliquant une règle de pondération égale pour CAL, DOL, AGG et SIL.

La surface projetée  $A(r)$  diffère de la surface volumique équivalente  $\pi r^2$  puisque les particules désertiques sont non sphériques. La forme des particules désertiques est caractérisée par le rapport de ces deux surfaces :

$$C_{\text{habit}} = \frac{A(r)}{\pi r^2} \quad (3.28)$$

Le rapport  $C_{\text{habit}}$  est  $> 1$  pour les particules non sphériques et est indépendant de la taille. Ce ratio peut être évalué à partir de simulations numériques. Les surfaces projetées des particules ont été estimées en projetant les volumes des stéréogrammes 3d sur des plans tangentiels et en faisant la moyenne sur 81 directions différentes. Les directions ont été choisies de telle manière que la distribution des points sur une sphère unitaire est uniforme (Womersley et Sloan, 2001<sup>249</sup>). Le tableau 3-1 rassemble les rapports de surface  $C_{\text{habit}}$  calculés pour chaque stéréo-particule et leurs versions rugueuses.

### 3.4.2 Paramètres d'entrée en fonction du paramètre de taille

La figure 3.7 présente les résultats des calculs de la dépolarisation, du ratio lidar et de l'efficacité d'extinction en fonction du paramètre de taille pour nos quatre particules issues des stéréogrammes (CAL, DOL, AGG, SIL). Comme on peut le voir, les différentes stéréo-



particules diffèrent nettement l'une de l'autre dans leur capacité à dépolariiser la lumière. SIL dépolariise le moins, DOL et AGG dépolariisent le plus la lumière. On peut également noter que la dépolariisation, le ratio lidar et l'efficacité d'extinction semblent atteindre un plateau pour des paramètres de taille suffisamment grand (à l'exception de la dépolariisation de SIL).

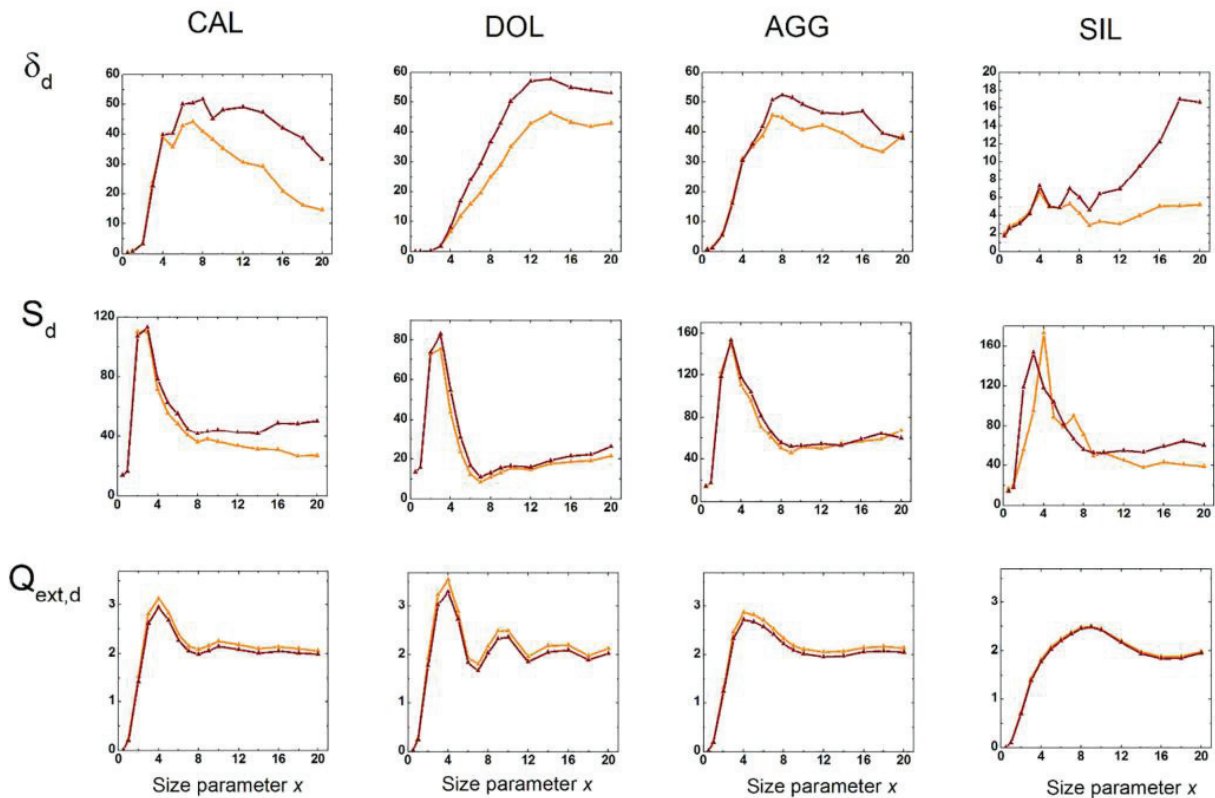


Figure 3.7 Variations du rapport de dépolariisation  $\delta_d$ , rapport lidar  $S_d$ , et de l'efficacité d'extinction  $Q_{ext,d}$  des particules désertiques en fonction du paramètre de taille pour chaque particule (CAL, DOL, AGG, SIL) supposées lisses (orange) puis rugueuses (brun).

La figure 3.8 présente les rapports de dépolariisation, les ratios lidar et les efficacités d'extinction en fonction du paramètre de taille pour nos trois modèles de forme : sphéroïdes, stéréo-particules lisses et rugueuses. On observe que le calcul du rapport de dépolariisation est très sensible au modèle de forme supposé. La rugosité de surface augmente le rapport de dépolariisation de la lumière dans notre cas d'étude. Le ratio lidar est également affecté par la rugosité de surface, avec un impact plus fort à des paramètres de plus grande taille. Avec l'indice de réfraction complexe supposé, la rugosité de surface semble toutefois avoir une influence négligeable sur l'efficacité d'extinction. Comme noté dans le cas de la figure 3.7, en  $x = 20$  les propriétés de diffusion semblent converger vers une limite pour les différentes particules, on retrouve ce comportement dans le cas des stéréo particules. Par conséquent, on peut penser que les propriétés de diffusion intégrées sur la distribution de taille ne changent pas rapidement non plus si la limite supérieure de la distribution de taille est déplacée vers des paramètres de taille plus grand que 20.

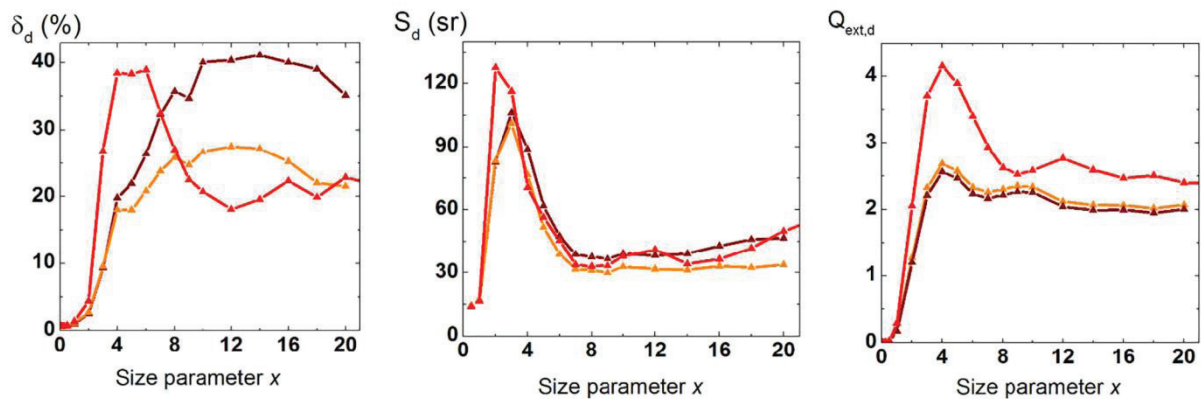


Figure 3.8 Rapport de dépolarisation, rapport lidar et efficacité d'extinction en fonction du paramètre de taille pour les trois modèles de forme considérés : stéréo-particules lisses (orange), stéréo-particules rugueuses (brun) et sphéroïdes (rouge).

### 3.4.3 Paramètres d'entrée intégrés sur la distribution de taille

#### (a) Etude de la dépendance en taille et en forme du rapport de dépolarisation

Le rapport de dépolarisation des particules désertiques dépend fortement de la SD d'un facteur supérieur à deux pour les stéréo-particules lisses lors du changement de la SD1 à la SD2 comme le montre le tableau 3-2 qui fournit le rapport de dépolarisation des particules désertiques en fonction du modèle de forme considéré (CAL, DOL, AGG, SIL, stéréo-particules et sphéroïdes) aux deux longueurs d'onde (355 et 532nm). Cela est en accord avec les mesures effectuées en laboratoire (Miffre et al., 2016<sup>139</sup>, Volten et al., 2001<sup>230</sup>). La Figure 3.8 montre une forte augmentation du rapport de dépolarisation à partir d'un paramètre de taille de l'ordre de 2 qui connaît ses valeurs maximales entre  $x = 12$  et  $x = 14$  pour les stéréo-particules. Pour la SD1, le rapport de dépolarisation dans l'UV est supérieur au rapport de dépolarisation dans le VIS. On note que pour DOL et SIL la différence est beaucoup plus faible que pour les autres. Pour la SD2, le rapport de dépolarisation ne semble pas présenter de dépendance spectrale particulière. La SD2 présente la plus grande dépolarisation quelle que soit la longueur d'onde et le modèle de forme considérés. Lorsque l'on s'intéresse au modèle de forme utilisé, on note que le rapport de dépolarisation par les particules DOL et SIL diffère considérablement de celle des sphéroïdes. Autre fait intéressant, les sphéroïdes fournissent une bonne estimation du rapport de dépolarisation moyenne sur les quatre stéréo-particules, notamment pour la SD2. Néanmoins, le rapport de dépolarisation est plus élevé pour les sphéroïdes par rapport aux stéréo-particules aux deux longueurs d'ondes pour la SD1. Pour analyser à quel point la troncature de taille affecte le rapport de dépolarisation calculé, les sphéroïdes ont été tronqués au rayon de  $1,13 \mu\text{m}$  (correspondant à  $x = 20$  à  $\lambda = 355 \text{ nm}$ ), puis au rayon de  $2,82 \mu\text{m}$  (correspondant à  $x = 50$  à  $\lambda = 355 \text{ nm}$ ). Comme le montre le tableau 3-2, l'effet de la troncature en taille sur le rapport de dépolarisation n'est pas significatif pour la SD1 quel que soit la longueur d'onde considérée. Dans le cas de la SD2 elle induit une légère augmentation de la dépolarisation évaluée dans le VIS. On constate une plus forte variabilité du rapport de dépolarisation calculé d'une particule à l'autre dans le cas

de la SD2. Le rapport de dépolarisation par DOL et par SIL est nettement plus faible et SIL est de loin le plus faible dépolariseur (comme on pouvait le prévoir à partir de la figure 3.7 dans le cas de SIL). La particule SIL est très différente des autres particules par sa morphologie globale. Les variations observées dans le tableau 3-2 impliquent que des particules désertiques avec des formes différentes peuvent présenter des signatures en dépolarisation très variable et cela est uniquement dû à leurs formes puisque leurs tailles et leurs indices de réfraction sont identiques.

Dans la littérature, une dépolarisation des particules désertiques de l'ordre de 30 % est actuellement l'hypothèse la plus couramment utilisée (Kandler et al., 2011<sup>87</sup>, Miffre et al., 2016<sup>139</sup>, Tesche et al., 2009<sup>216</sup>). Le présent travail suggère que le rapport de dépolarisation des particules désertiques peut varier considérablement d'un cas à l'autre.

		CAL	DOL	AGG	SIL	Smooth-stereo	Spheroids 1.1	Spheroids 2.8
SD1	355 nm	19.9	10.3	18.5	4.0	12.1	20.0	19.5
	532 nm	14.2	8.1	13.1	3.6	9.3	13.9	14.0
SD2	355 nm	27.7	33.7	39.3	4.2	24.8	23.0	23.0
	532 nm	36.2	26.0	40.5	3.8	24.2	26.7	24.9

Tableau 3- 2 Dépolarisation des particules désertiques  $\delta_d$  (en %) à deux longueurs ( $\lambda = 355$  nm,  $\lambda = 532$  nm) pour deux modèles de taille SD (SD1, SD2) et différentes forme (CAL, DOL, AGG, SIL, stéréoparticules lisses, sphéroïdes). Les sphéroïdes 1.1 (respectivement 2.8) correspondent à des sphéroïdes avec une intégration sur la SD tronquée à 1,13  $\mu$ m (respectivement 2,82  $\mu$ m) correspondant à  $x = 20$  dans l'UV (ou  $x = 50$  dans l'UV ). Si une erreur de 10% est affectée au rayon de la particule,  $\delta_d$  ne varie pas de plus de 3%.

### (b) Etude de la dépendance en taille et en forme de l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion

L'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion  $BAE_d$ , qui décrit le comportement spectral de la section de rétrodiffusion des particules désertiques, est défini à l'équation 3.15. De façon analogue à la sous-section précédente, le tableau 3-3 donne les valeurs de l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion des particules désertiques (noté dans la suite  $BAE_d$  par backscattering anstrom exponent of dust particles en anglais) en fonction du modèle de forme assigné aux particules désertiques (CAL, DOL, AGG, SIL, stéréo-particules lisses et sphéroïdes) pour les deux distributions de taille considérées. On constate la grande sensibilité de l'exposant d'Angstrom de diffusion à la taille des particules. SIL étant la moins sensible et le modèle sphéroïdal le plus sensible à la distribution de taille. Les valeurs de l'exposant d'Angström extraites des simulations numériques effectuées par l'équipe de Nousiainen suggèrent que les particules désertiques auront des exposants d'Ångström de rétrodiffusion du même ordre de grandeur si leurs distributions de taille est identique et cela quel que soit la forme considérée à l'exception de SIL. Pour la SD2,  $BAE_d$  est négatif dans le cas des sphéroïdes, de CAL et de AGG. La SD1 induit des exposants d'Ångström beaucoup plus grands que SD2. L'exposant d'Ångström obtenu avec des sphéroïdes est supérieur dans le cas de la SD1 et inférieur dans le cas de la SD2 à celui obtenu avec les stéréo particules lisses. La troncature en taille semble affecter l'exposant Ångström, comme attendu. Même si

l'exposant d'Angström de diffusion dépend principalement de la distribution de taille considérée, on note des différences entre les différents modèles de forme considérés, notamment le comportement de SIL qui a toujours le plus grand écart à la valeur moyenne. Ainsi, le modèle de forme choisi a également un impact sur la dépendance spectrale de la section efficace de rétrodiffusion. Ce résultat suggère l'importance du modèle de taille et de forme retenu pour obtenir une modélisation précise de la dépendance spectrale des particules.

	CAL	DOL	AGG	SIL	Smooth-stereo	Spheroids 1.1	Spheroids 2.8
SD1	1.41	1.37	1.28	0.92	1.32	1.43	1.25
SD2	-0.13	0.25	-0.05	0.66	0.11	-0.36	-0.64

Tableau 3- 3 Exposant d'Angstrom de rétrodiffusion pour deux modèles de taille SD (SD1, SD2) et différentes forme (CAL, DOL, AGG, SIL, stéréo-particules lisses, sphéroïdes). Les sphéroïdes 1.1 (respectivement 2.8) correspondent à des sphéroïdes avec une intégration sur la SD tronquée à 1,13  $\mu\text{m}$  (respectivement 2,82  $\mu\text{m}$ ) correspondant à  $x = 20$  dans l'UV (ou  $x = 50$  dans l'UV).

### (c) Etude de la dépendance en taille et en forme du ratio lidar

De façon analogue aux sous sections précédentes, le ratio lidar des particules désertiques est donné dans le tableau 3-4 en fonction du modèle de forme (CAL, DOL, AGG, SIL, stéréo-particules lisses, sphéroïdes) pour les deux distributions de taille et aux deux longueurs d'onde considérées dans cette étude. Les valeurs obtenues soulignent la dépendance en taille et en longueur d'onde du ratio lidar. Les valeurs du ratio lidar, excepté dans le cas de SIL, sont plus élevées avec la SD1 qu'avec la SD2. On constate également que le ratio lidar est plus élevé dans l'UV que dans le VIS pour la SD1 alors que l'inverse est vrai dans le cas de la SD2. Avec la SD2, les résultats sont dans la même plage que celle obtenue avec des mesures lidar Raman effectuées à proximité de la région source (Ansmann et al., 2012<sup>8</sup>).

		CAL	DOL	AGG	SIL	Smooth-stereo	Spheroids 1.1	Spheroids 2.8
SD1	355 nm	72	42	94	68	63	72	72
	532 nm	62	38	75	59	55	64	63
SD2	355 nm	47	19	60	76	34	40	50
	532 nm	50	18	66	86	37	44	45

Tableau 3- 4 Ratio lidar des particules désertiques  $S_d$  à deux longueurs ( $\lambda = 355 \text{ nm}$ ,  $\lambda = 532 \text{ nm}$ ) pour deux modèles de taille SD (SD1, SD2) et différentes forme (CAL, DOL, AGG, SIL, stéréo particules lisses, sphéroïdes). Les sphéroïdes 1.1 (respectivement 2.8) correspondent à des sphéroïdes avec une intégration sur la SD tronquée à 1,13  $\mu\text{m}$  (respectivement 2,82  $\mu\text{m}$ ) correspondant à  $x = 20$  dans l'UV (ou  $x = 50$  dans l'UV).

### 3.4.4 Effets de la rugosité

#### (a) Effet de la rugosité sur le rapport de dépolarisation

La figure 3.9 représente les valeurs du rapport de dépolarisation pour les quatre particules issues des stéréogrammes (CAL, DOL, AGG, SIL) lisses et rugueuses ainsi que leurs moyennes d'ensemble (stéréo particules lisses et rugueuses). L'introduction d'une rugosité de surface peut induire une augmentation du rapport de dépolarisation de quelques pourcents aux deux longueurs d'onde numérisées et pour les deux distributions de taille. AGG est le moins influencé par l'introduction d'une rugosité de surface. La variabilité du rapport de dépolarisation entre les différentes particules est un peu plus faible pour les particules rugueuses que pour les particules lisses. L'augmentation du rapport de dépolarisation due à l'introduction d'une rugosité de surface est dans la plupart des cas plus importante dans l'UV que dans le VIS et on note également que cette augmentation est beaucoup plus importante avec la SD2 qu'avec la SD1. Enfin, on peut noter que la variation du rapport de dépolarisation induite par l'introduction d'une rugosité de surface est plus importante lorsque l'on change de distribution de taille que lorsque l'on change de longueur d'onde.

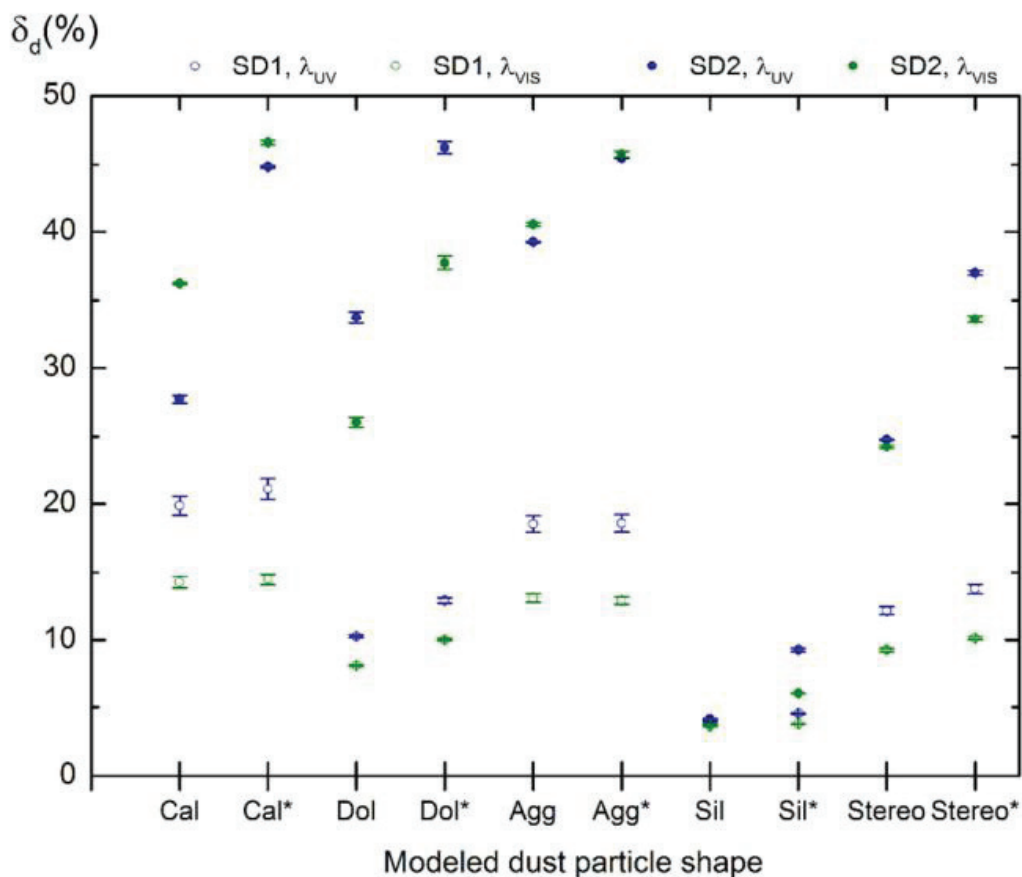


Figure 3.9 Dépolarisation des particules (CAL, DOL, AGG, SIL, stéréo-particules) et leurs versions rugueuses (identifiées avec l'étoile en exposant) pour SD1 (symboles ouverts) et SD2 (symboles solides) à deux longueurs d'onde lidar  $\lambda = 355$  nm (bleu),  $\lambda = 532$  nm (vert).

### (b) Effet de la rugosité sur l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion

La figure 3.10 est l'analogue de la figure 3.9 pour l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion des particules désertiques simulé. La rugosité de surface peut augmenter légèrement l'exposant Ångström comme pour les particules CAL, AGG et SIL ou au contraire le diminuer comme pour DOL. On note que ces variations sont très faibles. Une rugosité de surface supplémentaire sur des stéréo-particules lisses n'a qu'un impact réduit sur la dépendance spectrale des sections efficaces de rétrodiffusion (quasi nul dans le cas de la SD1), même si les sections efficaces de rétrodiffusion elles-mêmes sont très affectées. L'impact de la rugosité de surface sur les sections efficaces de rétrodiffusion est donc très similaire aux deux longueurs d'onde considérées. Ce résultat suggère que le rapport de dépolarisation est une meilleure métrique que l'exposant d'Ångström pour observer expérimentalement les effets de la rugosité de surface.

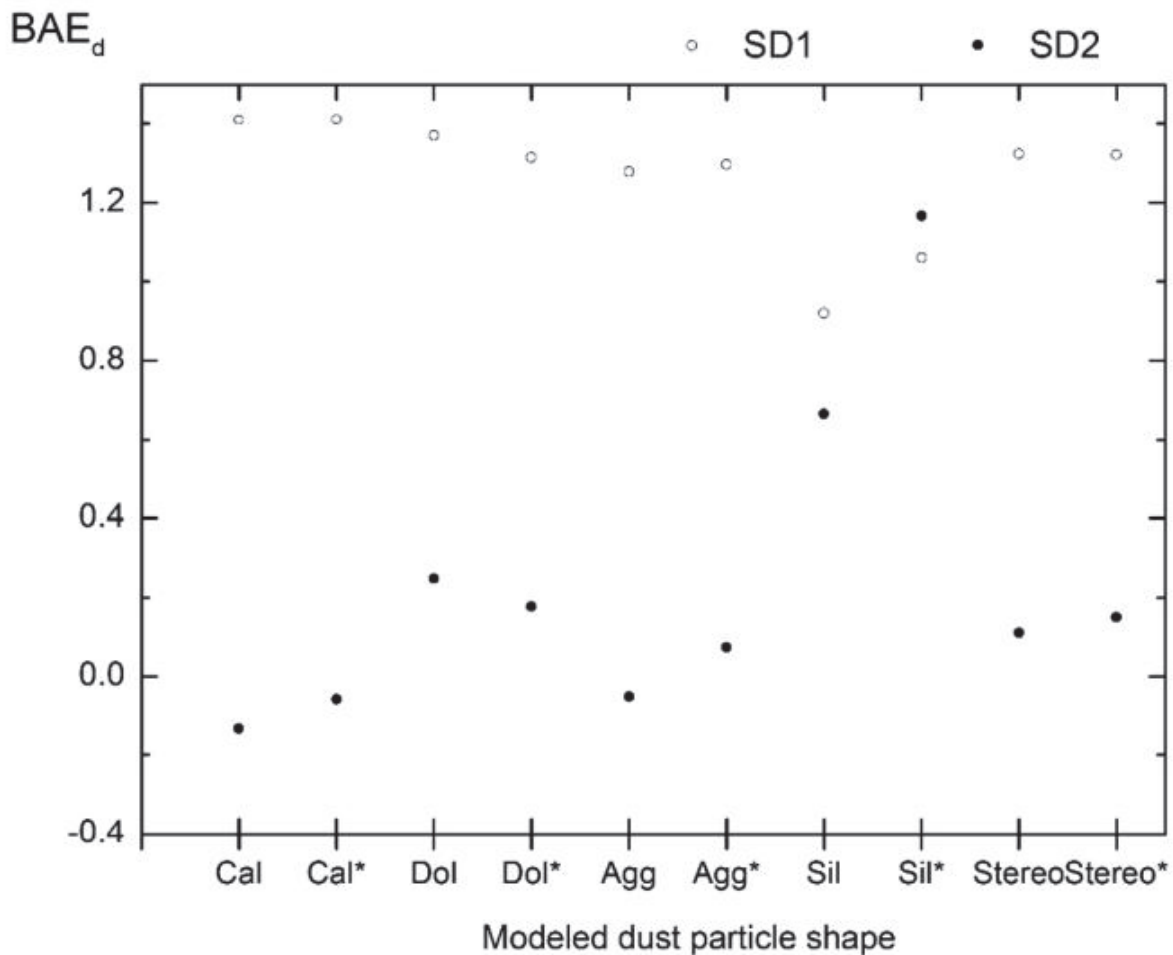


Figure 3.10 L'exposant d'Ångström de rétrodiffusion  $BAE_d$  tel que défini dans l'équation (10) des particules (CAL, DOL, AGG, SIL, stéréo-particules) et leurs versions rugueuses (identifiées avec l'étoile en exposant) pour SD1 (symboles ouverts) et SD2 (symboles solides) à deux longueurs d'onde lidar  $\lambda = 355$  nm (bleu),  $\lambda = 532$  nm (vert).

### (c) Effet de la rugosité sur le ratio lidar des particules désertiques

La figure 3.11 est l'analogue de la figure 3.9 pour le ratio lidar des particules désertiques  $S_d$ . La rugosité de surface semble augmenter (diminuer) le rapport lidar de particules minérales d'origine désertique pour SD1 (SD2), l'effet étant plus important pour CAL et SIL. Avec la SD1, les ratios lidar sont également beaucoup plus élevés dans l'UV que dans le VIS.

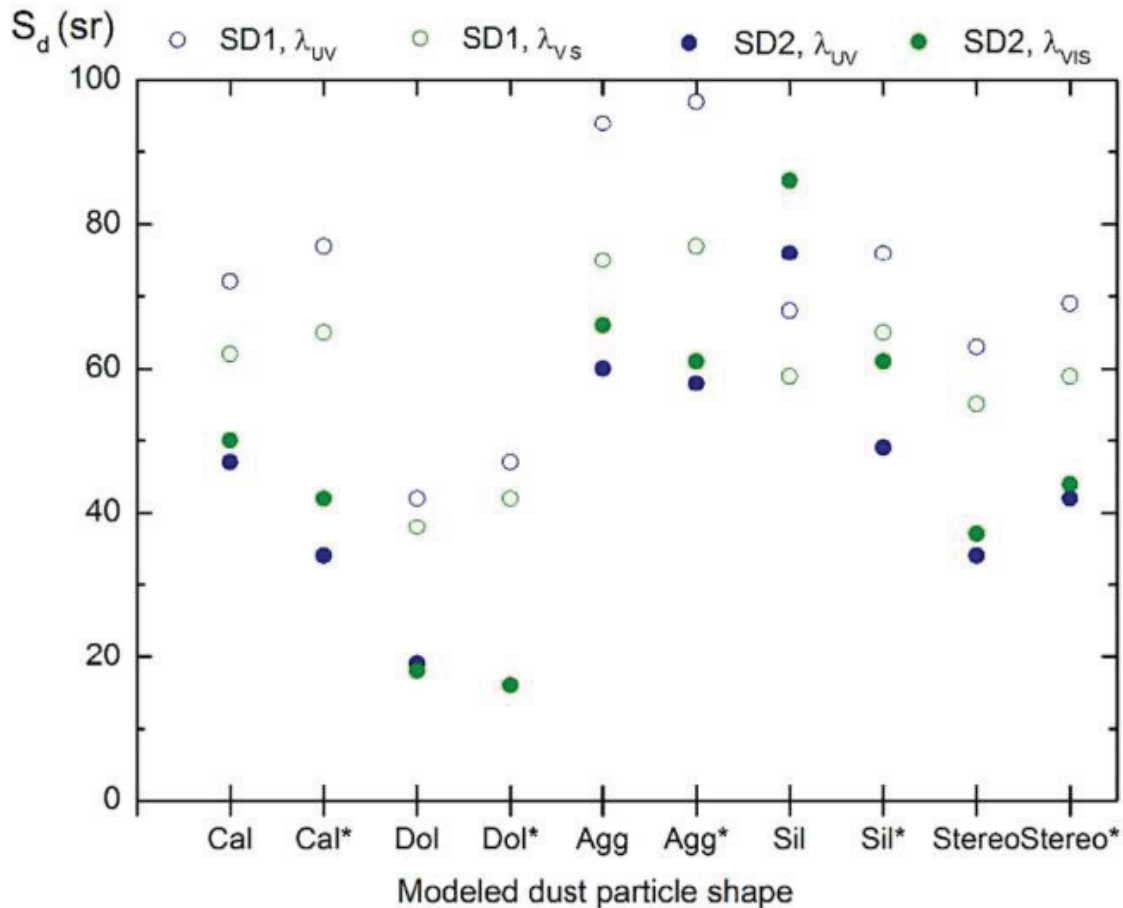


Figure 3.11 Ratio lidar des particules (CAL, DOL, AGG, SIL, stéréo-particules) et leurs versions rugueuses (identifiées avec l'étoile en exposant) pour SD1 (symboles ouverts) et SD2 (symboles solides) à deux longueurs d'onde lidar  $\lambda = 355$  nm (bleu),  $\lambda = 532$  nm (vert).

### 3.4.5 Conclusions

Ces simulations numériques ont ainsi permis de calculer le rapport de dépolarisation  $\delta_d$ , l'exposant d'Ångström de rétrodiffusion  $BAE_d$  et le ratio lidar  $S_d$  des particules désertiques qui seront utilisés dans les algorithmes de partitionnement lidar de la section 4. Les résultats sont résumés tableau 3-5 pour les deux distributions de taille, aux deux longueurs d'onde considérées et pour les stéréo particules (lisses et rugueuses) et les sphéroïdes. Toutes les distributions de taille sont coupées à  $1.13 \mu\text{m}$ .

	$\delta_{d,UV}(\%)$	$\delta_{d,VIS}(\%)$	$BAE_d$	$S_{d,UV}(sr)$	$S_{d,VIS}(sr)$
<b>SD1</b>					
Smooth stereo	12.1	9.3	1.324	63	55
Rough stereo	13.7	10.1	1.321	69	59
Spheroids	20.0	13.9	1.429	72	64
<b>SD2</b>					
Smooth stereo	24.8	24.2	0.109	34	37
Rough stereo	37.0	33.6	0.148	42	44
Spheroids	23.0	26.7	- 0.356	40	44

Tableau 3- 5 Dépolarisation  $\delta_d$ , exposant d'Ångström de rétrodiffusion  $BAE_d$  et rapport lidar  $S_d$  des particules désertiques qui seront utilisés dans les algorithmes de partitionnement lidar de la section 4.

Enfin, le facteur de conversion masse-extinction  $\eta_d$  des particules désertiques est évalué en fonction du modèle de forme. Le tableau 3-6 rassemble le facteur de conversion extinction-masse des particules désertiques  $\eta_d$  (cf eq.3.7) calculé pour la SD2 et une densité des particules désertiques de  $2,6 \text{ g.cm}^{-3}$ . Les variations de  $\eta_d$  d'une particule à l'autre peuvent être importantes : de  $0.63$  à  $1.08 \text{ g.m}^{-2}$  dans l'UV et de  $0.77$  à  $1.33 \text{ g.m}^{-2}$  dans le VIS. Cependant, quelle que soit la longueur d'onde considérée, aucune variation significative de  $\eta_d$  ne résulte de l'ajout d'une rugosité de surface.

Shape model	CAL	CAL*	DOL	DOL*	AGG	AGG*	SIL	SIL*	stéreo lisse	stéreo rugueuse	Spheroides (n=0)	Spheroides (n=3)
$\eta_{d,uv}$	0.98	0.96	1.11	1.08	0.89	0.88	0.63	0.62	0.85	0.86	0.57	0.45
$\eta_{d,vis}$	1.18	1.16	1.33	1.31	1.07	1.06	0.77	0.77	1.03	1.04	0.7	0.54

Tableau 3- 6 Facteur de conversion masse-extinction  $\eta_d$  ( $\text{g. m}^{-2}$ ) pour différents modèles de forme (CAL, DOL, AGG, SIL, stéreo lisse, stéreo rugueuse et sphéroïdes), calculé pour une densité massique des particules désertiques  $2,6 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$  pour SD2.

### 3.5 Etudes de cas dans la troposphère libre de Lyon (France)

Dans cette section, les profils verticaux des coefficients de rétrodiffusion et des concentrations de masse des particules désertiques sont évalués à partir des mesures du lidar (UV, VIS) résolu en polarisation effectuées sur des mélanges externes lors de deux événements d'advection de particules désertiques émanant du Sahara. Le premier cas d'étude est le cas d'un mélange à deux composants (section 3.5.1), le second portera sur un mélange à trois composants (section 3.5.2). Pour cela, les paramètres d'entrée des algorithmes de partitionnement sont extraits des résultats des simulations numériques de la section 3.4. Cela afin d'étudier la dépendance des coefficients de rétrodiffusion des particules désertiques (des coefficients de leur matrice de diffusion) et de la concentration massique à la taille, la forme et la rugosité de surface considérés dans lors des modélisations numériques préalables au partitionnement optique.



Les coefficients de rétrodiffusion sont présentés pour chaque distribution de taille (SD1, SD2) et pour chaque modèle de forme (stéréo-particules lisses, stéréo-particules rugueuses, sphéroïdes). L'évaluation de la concentration en masse est présentée pour la SD2 (la SD2 est retenue pour présenter les résultats car elle est plus proche de ce que l'on peut s'attendre au niveau des ordres de grandeur du rayon effectif et des dépolarisations linéaire). L'incertitude sur le facteur de conversion d'extinction de masse est évaluée quantitativement lorsque l'on fait varier la forme des particules désertiques des stéréo particules aux sphéroïdes.

### **3.5.1 Cas d'un mélange externe à deux composantes**

#### **(a) Coefficients de rétrodiffusion des particules désertiques**

Ce premier cas d'étude s'appuie sur des observations du lidar (UV, VIS) résolu en polarisation dans le ciel de Lyon, en France, le 9 juillet 2010, lors de la présence de particules désertiques dans l'atmosphère. On considère ici que les particules désertiques sont présentes dans un mélange externe de deux composants. L'autre composant du mélange étant des particules « de fond » (dite de fond car ayant une dépolarisation supposée très faible) tel que des particules de sulfate hydraté. Une couche atmosphérique contenant des particules désertiques et des sulfates a été identifiée à 2 km à l'aide des profils verticaux des coefficients de rétrodiffusion (Miffre et al., 2011<sup>135</sup>). La figure 3.12 montre les profils verticaux de la rétrodiffusion des particules désertiques et de fond, obtenus en appliquant l'algorithme de partitionnement à deux composants (cf. section 2.1) à chaque distribution de taille (SD1, SD2) et à chaque modèle de forme (stéréo-particules lisses, rugueuses et sphéroïdes). En faisant l'hypothèse que la distribution de taille et le modèle de forme ne varie pas en fonction de l'altitude, la même stratification verticale est observée indépendamment de la distribution de taille ou du modèle de forme utilisés pour obtenir les paramètres d'entrée du partitionnement optique. Sur la figure 3.12 sont également représentés les profils verticaux de rétrodiffusion que nous obtenons en utilisant le rapport de dépolarisation des particules désertiques supposé de 30 % afin d'être de l'ordre de grandeur des valeurs dérivées des mesures sur le terrain (Tesche et al., 2009<sup>216</sup>) et des mesures en laboratoire (Miffre et al., 2016<sup>139</sup>).

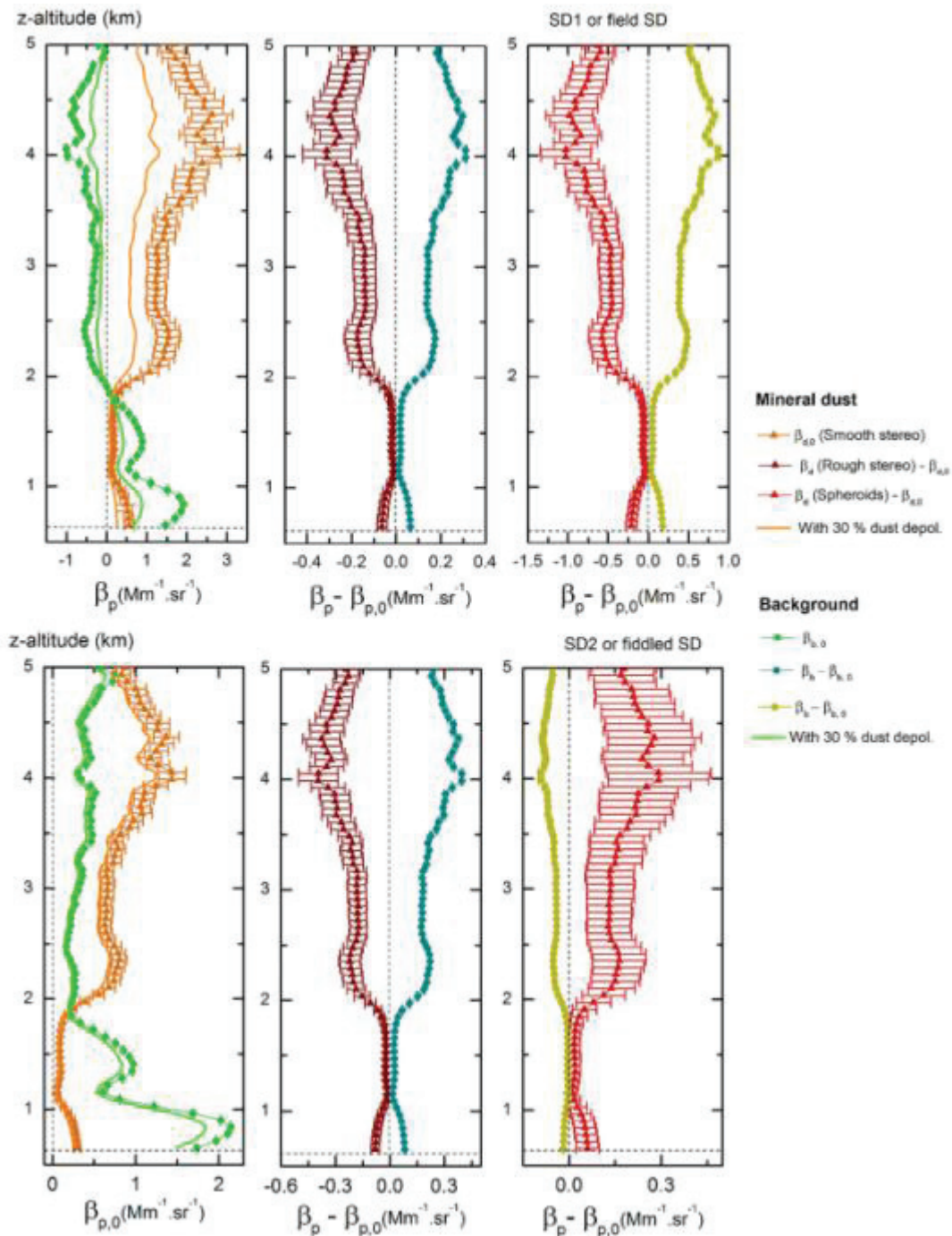


Figure 3.12 Profils verticaux des coefficients de rétrodiffusion des particules désertiques  $\beta_d$  (triangles) extraits de l'algorithme  $(1\beta + 1\delta)$ . La dépendance en taille est étudiée verticalement (SD1: panneau supérieur, SD2: panneau inférieur). La dépendance en forme est étudiée horizontalement dans chaque panneau: particules stéréo-lisses (à gauche), stéréo-rugueux (au milieu), sphéroïdes (à droite). Les deux dernières étant représentées par rapport aux coefficients de rétrodiffusion retrouvés pour le cas des stéréo particules lisses utilisées comme référence.  $\beta_b$  est également tracée (sphères). Ces sorties sont récupérées en utilisant un ratio lidar de 68 sr à  $\lambda = 355$  nm et une dépolarisation de fond  $\delta_b = 1\%$ . Les résultats de partition obtenus en supposant une dépolarisation de 30 % pour les particules désertiques sont représentés en lignes continues (orange pour les particules désertiques, vert pour les aérosols de fond). Des différences substantielles peuvent survenir en fonction du modèle de forme supposé pour les particules désertiques (lisse, rugueuse, sphéroïdes).

Lorsqu'on utilise la stéréo-particule lisse comme modèle de forme des particules désertiques, le coefficient de rétrodiffusion des particules désertiques  $\beta_d$  peut varier d'un facteur deux d'une distribution de taille à l'autre. Comparé au modèle stéréo lisse,  $\beta_d$  calculé à partir du modèle sphéroïdal est plus faible de  $1 \text{ Mm}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$  avec la SD1, mais augmente légèrement lorsque la SD2 est utilisé. Le coefficient de rétrodiffusion des particules désertiques semble donc être moins sensible à la distribution de taille choisie lorsque la forme des particules désertiques est supposée sphéroïdale, du moins pour cette étude de cas spécifique. L'amplitude du profil du coefficient de rétrodiffusion des particules de fond  $\beta_b$  est également principalement déterminée par la distribution de taille supposée. Pour la SD1 qui présente une dépolarisation des particules désertiques inférieure à celle observée dans l'atmosphère, des coefficients de rétrodiffusion des particules de fond négatifs sont obtenus. Principalement, on constate que la forme des particules désertiques choisie lors de la modélisation est importante, comme nous l'avons vu  $\beta_d$  peut varier de  $1 \text{ Mm}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$  pour la SD1 dans le cas du choix des sphéroïdes comme modèle de forme. Contrairement aux sphéroïdes, la rugosité de surface semble diminuer le coefficient de rétrodiffusion des particules désertiques indépendamment de la distribution de taille assignée par une différence d'environ  $0,4 \text{ Mm}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$  par rapport aux stéréo-particules lisses.

### (b) Evaluation de la concentration en masse

Les concentrations massiques correspondantes sont évaluées dans le tableau 3-7 pour l'étude de cas du mélange à deux composants, pour la SD2 et dans l'UV. Si la rugosité de surface semble jouer un rôle mineur sur  $\eta_d$  dans notre étude de cas, le passage du modèle de forme des stéréo particules aux sphéroïdes induit une variation de l'ordre de 30 % de  $\eta_d$  pour une loi de puissance  $n = 0$  de la distribution de sphéroïdes et de l'ordre de 50 % pour une loi de puissance  $n = 3$ . Les variations correspondantes de la concentration massique des particules désertiques (eq. 3.6) peuvent être aussi importantes que 25 % (entre les stéréo particules et les sphéroïdes). Pour un mélange à deux composants, l'évaluation de la concentration massique semble plus robuste au changement de modèle de forme ou à l'ajout d'une rugosité de surface comparé au cas d'un mélange à trois composants (cf. section 4.3) mais il faut tout de même veiller à extraire avec précision les concentrations massiques des particules désertiques.

Shape	$\eta_{d,UV}(\text{g} \cdot \text{m}^{-2})$	$S_d(\text{sr})$	$\beta_d(\text{Mm}^{-1} \text{sr}^{-1})$	$M_d(\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3})$
Stéréo lisse	0.85	34	1.44	42
Stéréo rugueuse	0.86	42	1.04	38
Sphéroïdes (n=3)	0.45	40	1.74	31
Sphéroïdes (n=0)	0.57	40	1.74	40

Tableau 3- 7 Facteur de conversion masse-extinction  $\eta_d$ , ratio lidar, coefficient de rétrodiffusion des particules désertiques pour l'étude de cas à deux composants (SD2, longueur d'onde UV).

### 3.5.2 Extensions au cas d'un mélange externe à trois composantes

#### (a) Coefficients de rétrodiffusion des particules désertiques

Cette seconde étude de cas s'appuie sur des données d'observations du 18 octobre 2011. On considère ici que les particules désertiques sont présentes dans un mélange externe de trois composantes : Des particules désertiques issues du Sahara (indice d), des particules hydrosoluble (indice ws pour water soluble en anglais) et des particules de sel marin non sphériques (cubique sous certaines conditions atmosphériques, indice ss pour sea salt en anglais). Au cours de travaux antérieur à cette thèse (David, 2013<sup>34</sup>), notre équipe a obtenu les profils verticaux des observables du lidar résolu en polarisation  $\beta_{p, //}$  et  $\beta_{p, \perp}$  et a identifié deux couches contenant un mélange de ces aérosols : la première à environ 1.5 Km d'altitude (couche A) et la seconde à environ 3 km d'altitude (couche B). Au cours de cette même étude, la réponse optique des particules de sel de mer supposées cubiques a été numérisée pour une distribution de taille issue de la littérature (O Dowd et al., 1997<sup>166</sup>) à l'aide du code Tsym (Kahnert, 2013<sup>164</sup>) et après avoir calculé les coefficients de la matrice de diffusion les paramètres d'entrée relatifs aux particules de sel marin ont été obtenus :  $\delta_{ss,UV} = 15.9\%$  ,  $\delta_{ss,VIS} = 16.2\%$  ,  $S_{ss,UV} = 18.8$  ,  $S_{ss,VIS} = 20.1$  ,  $BAE_{ss}(\lambda_1 = 355\text{nm}, \lambda_2 = 532\text{nm}) = -0.478$ .

La présence de particules de sel marin nous conduit à appliquer l'algorithme de partitionnement optique d'un mélange à trois composantes, deux longueurs d'onde sont alors nécessaires pour partitionner ce mélange. Pour faciliter la lecture, la figure 3.13 montre les profils verticaux de la rétrodiffusion des particules désertiques, des particules de sel marin et des particules hydrosoluble uniquement pour la SD2. De plus, seuls les profils verticaux de rétrodiffusion des particules désertiques  $\beta_d$  sont présentés lors de la discussion sur les variations du modèle de forme (stéréo rugueux et sphéroïdes par rapport à stéréo lisse de façon analogue à la section précédente). On constate figure 3.13 que dans le cas de la SD2, la variation du coefficient de rétrodiffusion des particules désertiques lorsque l'on passe des stéréo particules lisses aux sphéroïdes atteint  $2 \text{ Mm}^{-1}\cdot\text{sr}^{-1}$ . Ainsi la sensibilité au modèle de forme retenu est loin d'être négligeable, allant jusqu'à des variations de 67 % pour les valeurs des coefficients de rétrodiffusion obtenus. Comme pour le mélange externe de particules à deux composantes, la rugosité de surface semble diminuer légèrement le coefficient de rétrodiffusion des particules désertiques.

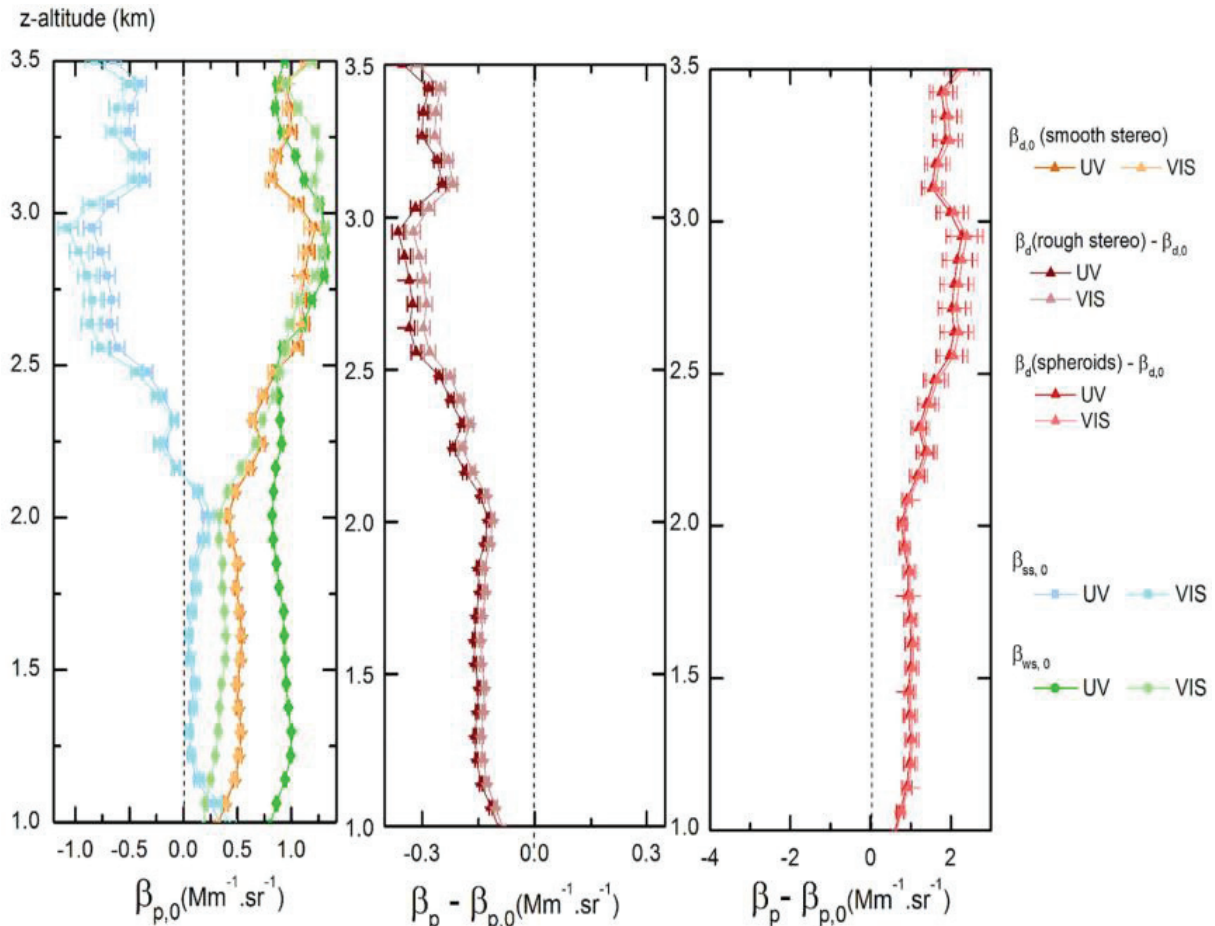


Figure 3.13 Profils verticaux des coefficients de rétrodiffusion des particules désertiques  $\beta_d$  (triangles) extrait obtenu à partir de l'algorithme de partitionnement d'un mélange externe à trois composants pour différents modèles de forme.  $\beta_d$  est tracée pour les stéréos particules rugueuses (graphique du milieu) et les sphéroïdes (graphique de droite) par rapport aux stéréo-particules lisses, utilisées comme référence. Les abréviations (ss, ws) signifient sel marin et hydrosolubles tandis que les couleurs sombres (claires) sont utilisées pour  $\lambda = 355$  nm ( $\lambda = 532$  nm). Pour faciliter la lecture, la figure 3.13 montre les profils verticaux de la rétrodiffusion des particules désertiques, des particules de sel marin et des particules hydrosoluble uniquement pour la SD2. De plus, seuls les profils verticaux de rétrodiffusion des particules désertiques  $\beta_d$  sont présentés lors de la discussion sur les variations du modèle de forme.

Nous avons tracé sur la figure 3.14 ci-dessous les variations de  $\beta_d$ ,  $\beta_{ss}$ ,  $\beta_{ws}$  pour chaque modèle de taille et de forme supposé (stéréo particules rugueuses et sphéroïdes) des particules désertiques dans les couches a et b atmosphériques lorsqu'on utilise les stéréo particules lisses comme référence en terme de forme (le modèle stéréo lisse aura en indice 0 pour le souligner). Les coefficients de rétrodiffusion des particules désertiques des stéréo-particules lisses et rugueuses sont presque superposées, avec des différences de l'ordre de  $0,1 \text{ Mm}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$ . La rugosité a également un impact (du même ordre ou légèrement supérieur) sur les coefficients de rétrodiffusion des particules de sel marin et hydrosoluble. On constate les variations les plus importantes des coefficients de rétrodiffusion des trois composants du mélange avec le modèle sphéroïdal. Une fois la distribution de taille choisie, le sens de la variation de l'amplitude des coefficients de rétrodiffusion de toutes les particules du mélange est déterminé quel que soit le modèle de forme ou la couche atmosphérique

considéré. On constate que les valeurs maximales de  $\beta_d$  sont obtenues pour les stéréoparticules lisses pour la SD1 et pour les sphéroïdes pour la SD2. On remarque également que dans le cas du modèle de forme des sphéroïdes, la variation de  $\beta_d$  dépend très peu de la longueur d'onde considérée. La correction induite par le passage du modèle de référence des stéréoparticules lisses au modèle sphéroïdal est donc principalement dû à la distribution de taille retenue. Avec la SD1, les variations induites par un changement de forme sont très faibles, quel que soit le modèle de forme et quelle que soit l'altitude.

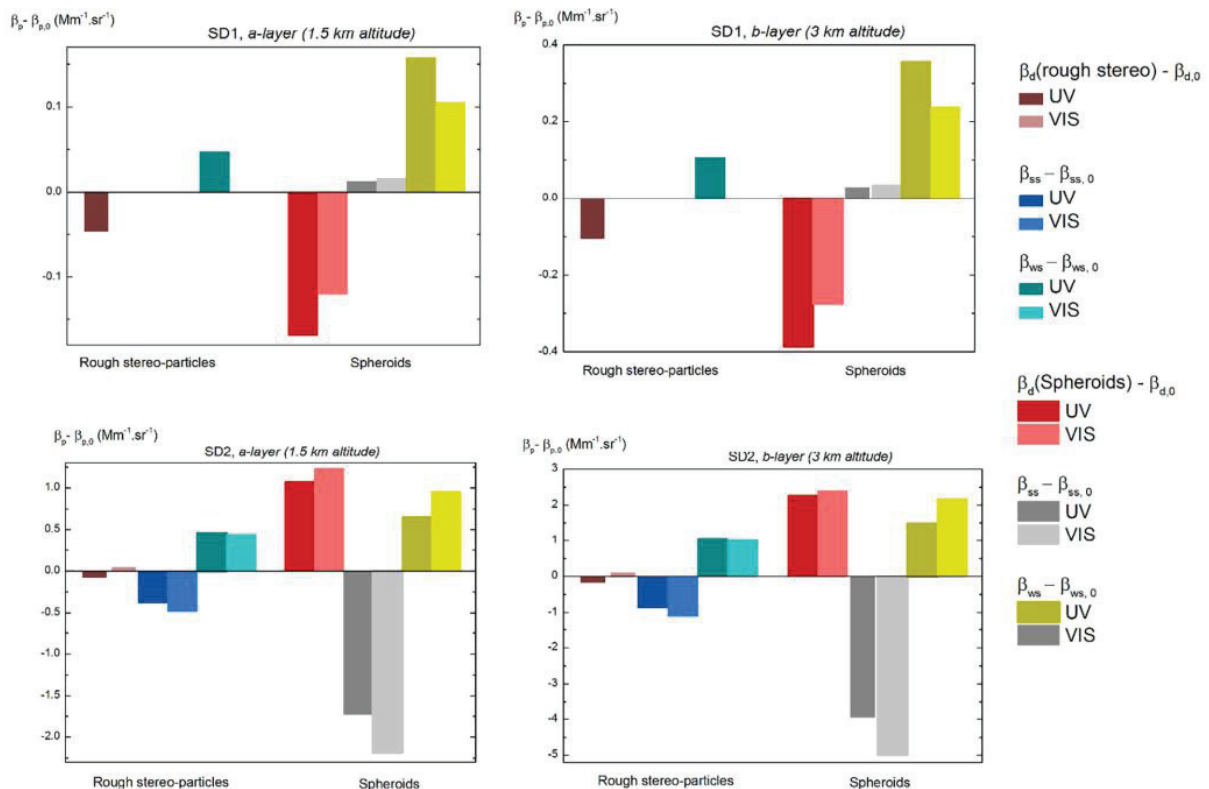


Figure 3.14 Identique à la fig. 3-13 dans la couche A (1.5 km d'altitude) et la couche B (3 km d'altitude). Pour la SD1 (panneaux supérieurs), SD2 (panneaux inférieurs). Stéréoparticules rugueuses (partie gauche), sphéroïdes (partie droite) lorsque les stéréoparticules lisses sont utilisées comme référence.

### (b) Evaluation de la concentration en masse

Les concentrations massiques correspondantes sont évaluées dans le tableau 3-8 pour l'étude de cas du mélange à trois composants (section 4.2), pour la SD2 dans la couche b et dans le VIS. Si la rugosité de surface semble jouer un rôle mineur sur  $\eta_d$  dans notre étude de cas, le passage du modèle de forme des stéréoparticules aux sphéroïdes induit une variation de l'ordre de 30 % de  $\eta_d$  pour une loi de puissance  $n = 0$  de la distribution de sphéroïdes et de l'ordre de 50 % pour une loi de puissance  $n = 3$ . Les variations correspondantes de la concentration massique des particules désertiques peuvent être aussi importantes qu'un facteur deux. L'accord entre les sphéroïdes et les stéréoparticules est meilleur avec la distribution de forme  $n = 3$ , comme observé avec nos mesures de polarimétrie effectuée en laboratoire (cf chapitre 2). Par conséquent, il faut veiller à extraire avec précision les concentrations massiques des particules désertiques en prenant garde notamment à la

modélisation de la forme choisie, particulièrement dans le cas des mélanges de trois composants.

Shape	$\eta_{d,VIS}(g.m^{-2})$	$S_d(sr)$	$\beta_d(Mm^{-1}sr^{-1})$	$M_d(\mu g.m^{-3})$
Stéréo lisse	1.03	37	1.19	45
Stéréo rugueuse	1.04	44	1.49	68
Sphéroïdes (n=3)	0.54	44	3.59	85
Sphéroïdes (n=0)	0.70	44	3.59	111

Tableau 3- 8 Facteur de conversion masse-extinction  $\eta_d$ , ratio lidar, coefficient de rétrodiffusion des particules désertiques pour l'étude de cas à trois composants (couche B, SD2, longueur d'onde VIS).

### (c) Influence du ratio lidar des particules sur l'inversion des signaux lidars

La sensibilité des profils verticaux obtenus au ratio lidar est étudié ci-dessus figure 3.15. Pour cela, l'algorithme de partitionnement à trois composants a été exécuté pour chaque modèle de forme de particules désertiques pour deux ratios lidar (deux à chaque longueur d'onde). Les profils verticaux des coefficients de rétrodiffusion des particules désertiques sont montrés figure 3.15 pour la SD2. Aux deux longueurs d'onde, le coefficient de rétrodiffusion est plus sensible au modèle de forme qu'aux variations du ratio lidar. Ainsi, pour cette étude de cas, les algorithmes de partitionnement lidar semblent dépendre davantage du modèle de forme choisi pour les particules désertiques que du ratio lidar des particules supposé, comme publié dans Atmospheric Research (Mehri et al., 2018<sup>128</sup>).

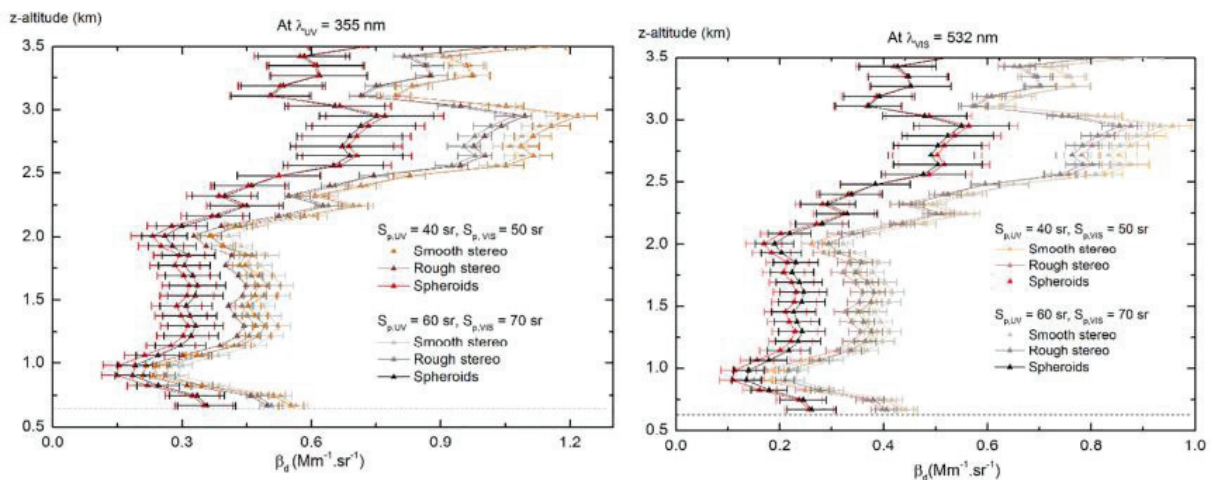


Figure 3.15 Sensibilité de l'algorithme de partitionnement optique d'un mélange à trois composants au ratio lidar assigné à  $\lambda = 355$  nm (graphique de gauche) et  $\lambda = 532$  nm (graphique de droite) lorsque les particules désertiques sont modélisées avec SD2. Les valeurs de  $S_p$  supposées sont:  $S_{p,UV} = 40sr$ ,  $S_{p,VIS} = 50sr$  et  $S_{p,UV} = 60sr$ ,  $S_{p,VIS} = 70sr$ .

## 3.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté la méthodologie pour évaluer le partitionnement des coefficients optiques de mélanges externes de particules. Elle est fondée sur des observations lidar multi spectrales résolues en polarisation et des simulations numériques.

Nous avons ainsi déterminé les profils verticaux des coefficients de rétrodiffusion spécifiques aux particules désertiques présentes dans l'atmosphère au-dessus du campus Universitaire de la Doua. Ceci nous a permis d'évaluer leur concentration massique et d'étudier précisément l'incertitude associée à leur taille et leur forme. Ces paramètres sont essentiels pour l'évaluation numérique des coefficients optiques de ces particules, nécessaires au partitionnement optique des mélanges externes à deux/trois composants. Cette étude a été réalisée pour différents modèles de forme (sphéroïdes, particules de surface lisse, rugueuse) obtenus par simulation numérique en coopération avec l'équipe de T. Nousiainen (Finlande). Nous abordons notamment le cas de formes plus réalistes que le modèle mathématique des sphéroïdes utilisé au chapitre 2, modélisées à partir de véritables particules désertiques atmosphériques issues de la campagne de terrain SAMUM et présentant une minéralogie complexe (CAL, DOL, AGG, SIL) (Kandler et al., 2011<sup>115</sup>). Nous abordons également les effets de l'ajout d'une rugosité de surface potentielle (Kempainen et al., 2015<sup>92</sup>) sur l'évaluation de la concentration massique. Des simulations numériques se basant sur le code T-matrix pour le modèle de forme mathématique des sphéroïdes et sur le DDA pour les modèles de forme plus complexe sont effectuées pour un indice de réfraction identique afin de ne discuter que de la dépendance en taille et en forme. Plus précisément la dépendance en taille, en forme et à la rugosité de surface du rapport de dépolarisation, de l'exposant d'Angström de rétrodiffusion et du ratio lidar des particules désertiques sont calculées pour deux distributions de tailles voulant être représentatives des particules désertiques après transport sur de longues distances pour chaque particule (CAL, DOL, AGG, SIL), puis pour leurs pondération à poids égal (stéréo particule) avec ou sans rugosité de surface. Enfin, les différents modèles de forme (stéréo particules lisses/rugueuses et sphéroïdes) sont comparés. Parmi les paramètres d'entrée  $\{\delta_d, BAE_d, S_d\}$ , le rapport de dépolarisation des particules désertiques est le plus sensible au modèle de taille et de forme assigné aux particules désertiques. Ces résultats sont ensuite appliqués à deux études de cas en atmosphère réelle où les particules désertiques sont présentes dans des mélanges externes. Le lidar (UV, VIS) résolu en polarisation, dont la précision et la sensibilité sont discutés, est utilisé pour traiter le cas d'un mélange externe à deux composants de particules désertiques et de particules considérés sphériques, puis au cas plus complexe d'un mélange à trois composants composé de particules désertiques, de particules de sel marin et de particules hydrosoluble supposées sphérique. Un résultat majeur est que, si les profils verticaux dépendent fortement de la distribution de taille des particules désertiques choisies, le modèle de forme attribué s'avère également important. On a notamment constaté que lorsque l'on passe des sphéroïdes aux stéréo particules lisses, le coefficient de rétrodiffusion des particules désertiques peut varier jusqu'à environ 50 % dans notre étude de cas, correspondant à des variations du coefficient de rétrodiffusion des particules désertiques aussi grand que  $2 \text{ Mm}^{-1}.\text{sr}^{-1}$ . De plus, les concentrations massiques des particules désertiques sont évaluées en calculant le facteur de conversion d'extinction massique pour chaque modèle de forme. Lorsqu'on utilise des stéréo particules au lieu de sphéroïdes, ce facteur peut varier jusqu'à environ 30 %. Les variations de la concentration massique des particules



désertiques dû au modèle de forme retenu pour l'analyse peuvent ainsi être aussi importantes qu'un facteur deux. Ceci démontre que l'évaluation, à partir d'une mesure optique, de la concentration massique de particules spécifiques dans un mélange complexe demande, en plus d'une précision extrême de la mesure, l'application d'un modèle idoine de calcul des coefficients de diffusion optique des différents types de particules. Sur ce dernier point, on remarque qu'un travail important est à réaliser pour accroître la précision. Ces résultats ont été publiés dans la revue Atmospheric Research en 2018 (Mehri et al., 2018<sup>128</sup>).





## Chapitre 4

### Observation lidar d'événements de nucléation en présence de particules désertiques

Lors du transport des particules d'origine désertique sur de longues distances, de nombreux processus physico-chimiques peuvent se produire par interaction avec les vapeurs et particules également présentes dans les couches atmosphériques, tels que la condensation de gaz atmosphériques à la surface de particules solides, l'agrégation de particules ultrafines ou encore la sédimentation. Les aérosols contribuent principalement au forçage radiatif terrestre en interagissant avec le rayonnement solaire et avec les nuages. La formation de nouvelles particules dans l'atmosphère (notée NPF dans ce qui suit, de l'anglais « new particle formation ») a été identifiée comme l'une des sources majeures d'aérosols atmosphériques et de la formation des noyaux de condensations. La concentration totale de particules dans la troposphère est probablement dominée par ces particules nouvellement formées (Yu et al., 2010<sup>253</sup>). Ainsi, mieux comprendre la formation de ces particules dans l'atmosphère est un sujet essentiel, comme le souligne les rapports du GIEC (Boucher et al., 2013<sup>15</sup>), ne serait-ce que parce-que les modèles climatiques exigent une prévision précise de la nucléation atmosphérique, ceci afin de modéliser le bilan radiatif des aérosols de façon plus précise.

La formation de nouvelles particules dans l'atmosphère a été observée dans différentes régions du monde (Kulmala et al., 2008<sup>101</sup>, 2012<sup>102</sup>, Kyrö et al., 2013<sup>105</sup>, O'Dowd et al., 1997<sup>166</sup>) et à différentes altitudes, depuis la couche limite planétaire (PBL) (Crumeyrolle et al., 2010<sup>26</sup>, Wehner et al., 2010<sup>239</sup>) jusqu'à différentes altitudes de la troposphère libre (Bianchi et al., 2016<sup>13</sup>, Boulon et al., 2010<sup>16</sup>, 2011<sup>17</sup>, Bukowiecki et al., 2016<sup>21</sup>, Hallar et al., 2011<sup>64</sup>, Kulmala et al., 2013<sup>103</sup>, Rose et al., 2015b<sup>195</sup>) et même en tropopause (Weigel et al., 2011<sup>240</sup>). Dans les zones urbaines et polluées, les processus d'agrégation et de nucléation sont également prépondérants car ils contribuent à la formation d'aérosols organiques primaires et secondaires dans le mode d'accumulation (Imhof et al., 2005<sup>75</sup>). Des différences ont été rapportées dans l'observation de la nucléation entre les observations de jour et de nuit par Bianchi et al. (2016). Les échelles spatio-temporelles de ce processus sont variables: il peut s'agir d'un phénomène régional s'étendant sur des milliers de kilomètres (Hussein et al., 2009<sup>74</sup>) ou d'un phénomène localisé et court, par exemple au niveau des littoraux (O'Dowd et al., 2002<sup>168</sup>). L'altitude est un paramètre important qui peut influencer le processus de nucléation, qui est un processus qui dépend de la température, comme le souligne Frege et al. (2018<sup>56</sup>). Plus encore, Zha et al. (2018) ont récemment réalisé des mesures de la nucléation à deux altitudes différentes, au-dessus et en dessous de la canopée urbaine. Comme le soulignent Dunne et al. (2016), *“over how much of the troposphere these*

*molecules (i.e. sulfuric acid, ammonia, and organic compounds) are important for nucleation*” reste une question ouverte, et pour y répondre, il est nécessaire de développer des méthodes de mesure du processus de nucléation à différentes altitudes. L’observation de la nucléation dans l’atmosphère est généralement réalisée à l’aide de spectromètres de masse et d’analyseurs à mobilité différentielle particulièrement sensibles, permettant d’évaluer la concentration en nombre de particules de taille aussi faible que quelques nanomètres. Des observations très précises du processus de nucléation ont ainsi pu être réalisées avec succès aussi bien au sol (Boulon et al., 2010<sup>16</sup>, 2011<sup>17</sup>, Rose et al., 2015b<sup>195</sup>) que lors de mesures aéroportées en troposphère libre (Rose et al., 2015a<sup>194</sup>, Quan et al., 2017<sup>182</sup>). Toutefois, l’observation de la nucléation basée sur cette instrumentation reste relativement complexe et de surcroît très coûteuse. Surtout, l’extension spatiale et temporelle du processus de nucléation reste délicate à révéler car elle est limitée par la durée des expériences, comme le soulignent Quan et al. (2017)<sup>182</sup>, notamment dans leur figure 1. Dans ce contexte, comme souligné par K. Lehtipalo du CERN (2014a), une première étape vers la télédétection optique du processus de nucléation a été franchie en 2014 par David et al. (2014) à l’ILM en observant à distance un événement de nucléation promu par des particules désertiques dans la troposphère libre de Lyon, en tirant parti de la sensibilité de la détection optique résolue en polarisation dans le domaine spectral de l’UV (David et al., 2014<sup>35</sup>, Dupart et al., 2012<sup>50</sup>).

Ce chapitre 4 s’inscrit dans la continuité de ces travaux pionniers et il est organisé comme suit. A la suite d’une bibliographie rappelant les principales connaissances sur le processus de nucléation dans l’atmosphère, une simulation numérique est réalisée permettant de discuter de la sensibilité de la rétrodiffusion optique (UV, VIS) résolue en polarisation au processus de nucléation : les coefficients de rétrodiffusion (UV, VIS) associés à plusieurs événements de nucléation réellement observés sont simulés numériquement et l’influence de la taille des centres diffusants et de l’indice optique est discutée. Puis, nous présentons nos observations systématiques des événements de nucléation en présence de particules désertiques dans la troposphère libre de Lyon. Les coefficients de rétrodiffusion des particules présentes dans les mélanges atmosphériques sont obtenus en appliquant la méthodologie de partitionnement optique décrite au chapitre précédent en s’appuyant notamment sur nos résultats de laboratoire du Chapitre 2. Si l’article (David et al., 2014<sup>35</sup>) était une première mondiale, il restait limité à une observation expérimentale de ce processus et à une seule simulation numérique. Ma contribution a été d’étendre cette discussion à plusieurs événements de nucléation se produisant en présence de particules d’origine désertique, aussi bien sur le plan expérimental que numérique.

## **4.1 Eléments de bibliographie sur le processus de nucléation**

La formation de nouvelles particules atmosphériques a été découverte à la fin du 19<sup>ème</sup> siècle (Aitken, 1897<sup>2</sup>). Les aérosols secondaires sont formés par conversion de gaz en particules (Hallquist et al., 2009<sup>65</sup>). Ces événements de formation de particules constituent une source

majeure de particules ultrafines (< 100 nm) et de noyaux de condensation des nuages dans l'atmosphère (Yu et al., 2010<sup>253</sup>). Le processus de formation de nouvelles particules consiste en une suite complexe de réactions en chaîne, comprenant la production d'agrégats de quelques nanomètres de taille à partir de précurseurs gazeux et leur coagulation sur des aérosols préexistants jusqu'à des tailles supérieures au micromètre (Curtius, 2009<sup>28</sup>, Kulmala et al., 2012<sup>102</sup>). Comme schématisé sur la figure 4.1, les particules nouvellement formées croissent par condensation d'espèces présentant une faible pression de vapeur. La production de particules de taille nanométrique dans l'atmosphère suscite un intérêt croissant grâce à l'amélioration des méthodes d'observations en laboratoire et in situ (Almeida et al., 2013<sup>4</sup>, Kirkby et al., 2011<sup>94</sup>, Kulmala et al., 2004<sup>100</sup>). Depuis les travaux de Weber et al. (1995, 1996) et Mäkelä et al. (1997), l'acide sulfurique est considéré comme essentiel à la formation de nouvelles particules atmosphériques. Ces théories classiques de nucléation de l'acide sulfurique en présence d'eau sont toujours utilisées dans les modèles climatiques d'aérosols (Zhang et al., 2012<sup>255</sup>).

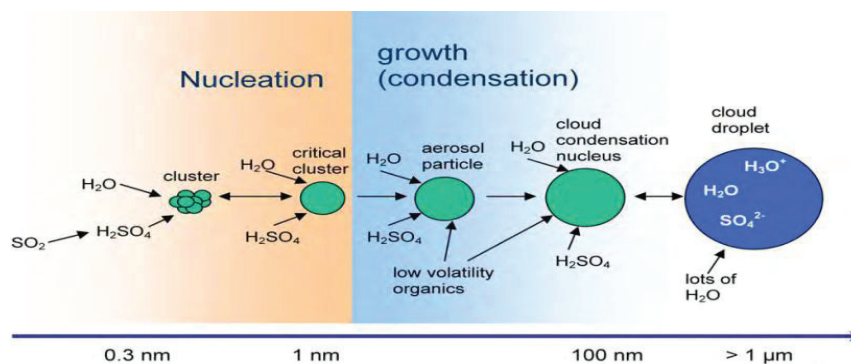


Figure 4.1 Schématisation des étapes de la nucléation homogène dans l'atmosphère. Des précurseurs gazeux aux noyaux de condensations qui vont influencer indirectement le climat à travers la durée de vie des nuages. Extrait de (Curtius et al., 2009<sup>28</sup>).

#### 4.1.1 Etude du processus de nucléation en laboratoire

L'objet de ce paragraphe est de présenter les principales contributions bibliographiques à la compréhension du processus de nucléation, sans toutefois en dresser une liste exhaustive.

En laboratoire, l'état de l'art est donné par l'expérience CLOUD (Cosmic Leaving Outdoor Droplets, P.I. Prof. J. Kirkby) réalisée au CERN, qui a permis de révéler les ingrédients majeurs impliqués dans le processus de nucléation (Almeida et al., 2013<sup>4</sup>, Kirkby et al., 2011<sup>94</sup>, Kirkby et al., 2016<sup>95</sup>, Riccobono et al., 2014<sup>191</sup>). En quelques mots, les études menées au CLOUD ont confirmé l'importance de l'acide sulfurique qui, lorsqu'il est présent en concentration suffisante, est un moteur essentiel de la formation de nouvelles particules dans l'atmosphère (Kirkby et al., 2011<sup>94</sup>). Toutefois, l'acide sulfurique seul ne saurait traduire les taux de nucléation observés dans l'atmosphère, de sorte que des agents stabilisants sont nécessaires pour expliquer la formation de particules aux températures élevées de la troposphère. Ces vapeurs sont des bases au sens chimique du terme comme les amines (processus très efficace) ou encore de l'ammoniac, si les températures sont suffisamment

basses, comme en troposphère libre. Des molécules hautement oxygénées (HOM pour highly oxygenated molecules en anglais) issues de la biosphère (Riccobono et al., 2014<sup>191</sup>) peuvent également servir d'agent stabilisant. La présence d'amines comme celle d'HOM, en stabilisant les agrégats, accroît la vitesse de nucléation (Almeida et al., 2013<sup>4</sup>), comme illustré sur la figure 4.2. Très récemment, la formation de nouvelles particules ne nécessitant que la présence d'HOMs a été observée par l'équipe de J. Kirkby et al. (Kirkby et al., 2016<sup>95</sup>). Il a également été démontré que la présence d'ions aide à stabiliser les espèces nouvellement formées, et ceci est particulièrement vrai pour la formation de particules en présence de HOMs.

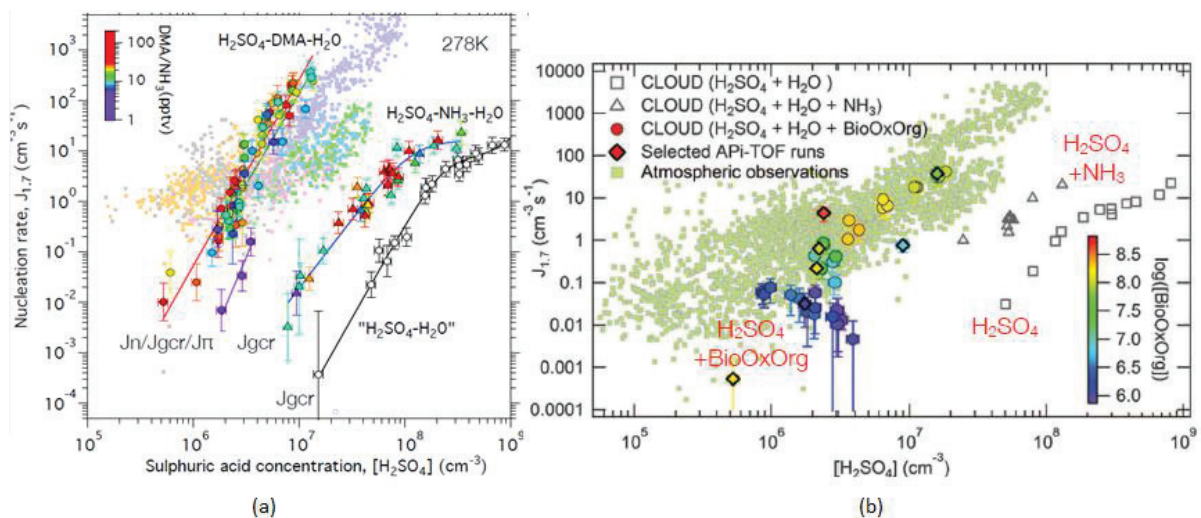


Figure 4.2 Quelques résultats marquants récents issus de l'expérience CLOUD : (a) Nucléation en présence d'acide sulfurique et de diméthylamine (DMA) (Almeida et al, 2013 Kuerten et al, 2014), (b) Nucléation en présence d'acide sulfurique et d'HOM (Riccobono et al., 2014<sup>191</sup>, Schobesberger et al., 2013<sup>204</sup>).

De manière complémentaire, une étude de laboratoire (Dupart et al., 2012<sup>50</sup>) réalisée à IRCELYon (Institut de Recherche sur la Catalyse et l'Environnement) par l'équipe de C. George a montré que les oxydes métalliques présents dans les particules désertiques agissent comme photo catalyseurs favorisant la formation de radicaux OH gazeux, selon le mécanisme présenté dans le Chapitre 1 (figure 1.3 extrait de Dupart et al., 2012<sup>50</sup>). Ces radicaux vont par la suite amorcer la conversion du SO<sub>2</sub> en H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> au voisinage des particules désertiques. L'acide sulfurique produit peut alors déclencher des événements de nucléation par condensation avec l'eau. Dans des conditions spécifiques, ce processus entraîne la formation de nouvelles particules atmosphériques. Comme le montre la figure 4.3 (tirée de Dupart et al., 2012<sup>50</sup>), la formation de particules n'a lieu qu'en présence de lumière et est plus importante à des taux d'humidité plus élevés et lorsque les particules désertiques sont présentes en faible concentration. En effet, la surface de ces particules peut agir comme un puits de condensation. Il s'ensuit que le taux de nucléation est plus élevé lorsque le nombre particules désertiques est faible.

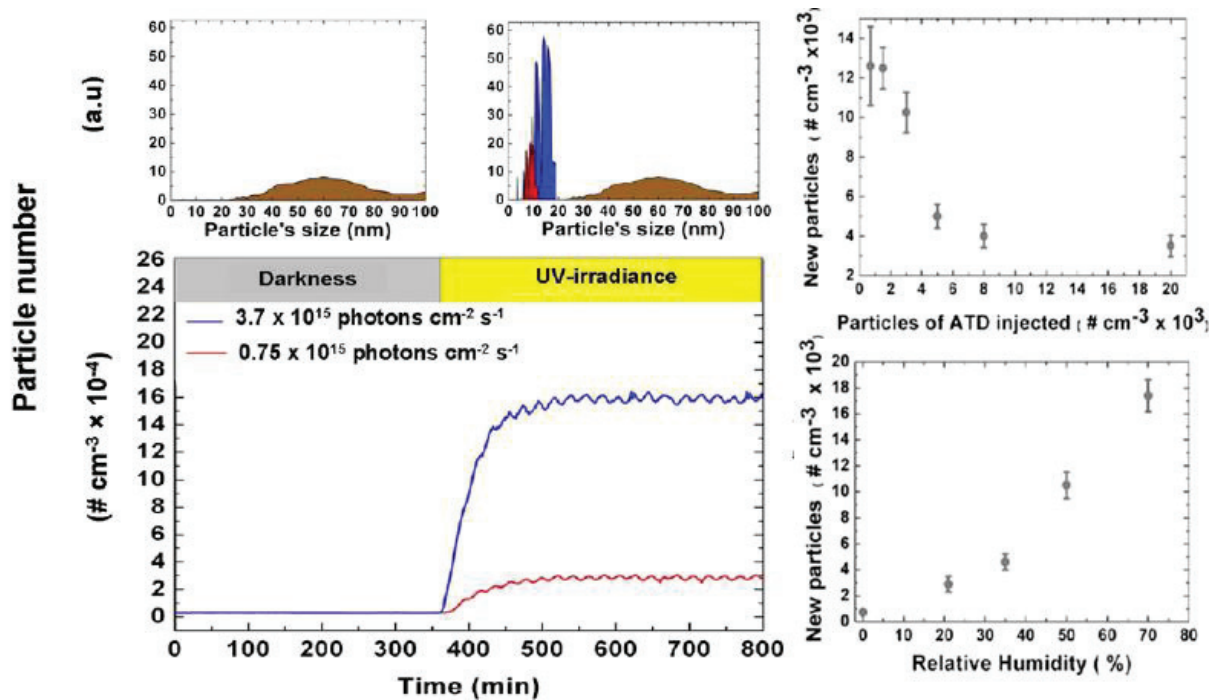


Figure 4.3 A gauche : Évolution du nombre de particules et de la distribution de taille des particules au cours d'une expérience de laboratoire avec de l'ATD (300 ppbv de SO<sub>2</sub> et 3000 cm<sup>-3</sup> d'ATD injecté). Sous l'éclairage UV (les lignes rouges et bleues correspondent à deux flux de photons différents), la concentration en des particules augmente fortement avec l'apparition de petites particules (<20 nm). A droite : Dépendance de la concentration en nombre de nouvelles particules à la concentration en nombre de particules ATD injectée (en haut) et à l'humidité relative (en bas).

#### 4.1.2 Observations du processus de nucléation en atmosphère réelle

Les mesures quantitatives de la formation d'aérosols ont nécessité des développements récents de l'instrumentation et des méthodes pour mesurer des distributions de taille jusqu'à des rayons aussi petits que 3 nm de diamètre (McMurry, 2000<sup>125</sup>). Kulmala et al. (2012) ont établi le protocole à suivre pour adresser la petite taille des particules nouvellement formées, ce qui nécessite une instrumentation spécifique, avec la capacité de détecter des amas moléculaires dans la gamme de taille nanométrique. Le processus de formation de nouvelles particules est ainsi identifié par l'apparition de nouvelles particules suivie de leur croissance en taille, donnant lieu à l'observation de « banana-shaped plot » caractéristiques de ce phénomène lorsque l'on représente la distribution de taille en fonction de l'heure de la journée, comme illustré sur la figure 4.4. La mesure en temps réel de la distribution de taille est effectuée à l'aide d'instruments présentant une dynamique de taille très élevée, comme des compteurs de particules, principalement des CPC (Condensation Particle Counter) et des SMPS (Scanning Mobility Particle Sizers). Ces instruments sont couplés à des spectromètres de masse haute résolution comme le CI-Api-TOF, ceci afin de spécifier les espèces chimiques détectées (Kulmala et al., 2012<sup>102</sup>, Sipila et al., 2008<sup>211</sup>). Ces instruments permettent notamment de mesurer l'évolution au cours du temps de la concentration en acide sulfurique.



Ainsi, dans la couche limite atmosphérique (PBL, pour Planetary Boundary Layer en anglais), plusieurs observations d'événements de particules ultra-fines détectées à quelques nm, accompagnées de la croissance ultérieure de ces particules jusqu'à des tailles de plusieurs centaines de nanomètres dans les heures voir jours suivants ont été rapportées (Crumeypolle et al., 2010<sup>26</sup>, Wehner et al., 2010<sup>239</sup>). Des études menées dans la troposphère libre ont détecté un grand nombre de très petites particules de 3 à 15 nm de diamètre (Bianchi et al., 2016<sup>13</sup>, Boulon et al., 2010<sup>16</sup>, 2011<sup>17</sup>, Bukowiecki et al., 2016<sup>21</sup>, Hallar et al., 2011<sup>64</sup>, Keil et Wendisch, 2001<sup>91</sup>, Kulmala et al., 2013<sup>103</sup>, Rose et al., 2015b<sup>195</sup>, Weber et al., 2001<sup>238</sup>). Ces observations ont été réalisées dans des atmosphères « pures » telles qu'une forêt boréale (Dada et al., 2017<sup>30</sup>, Kulmala et al., 2013, Makela et al., 1997<sup>119</sup>), dans des parcelles d'atmosphère beaucoup plus polluées telles que des environnements urbains (Shi et Qian, 2003<sup>208</sup>, Vakeva et al., 2000<sup>222</sup>) ou encore au niveau des milieux côtiers (O'Dowd et al., 1997<sup>166</sup>, 1999<sup>167</sup>, 2002<sup>168</sup>) et sont principalement attribuées au mécanisme binaire ou ternaire en présence d'amines. Aussi, des mesures in situ validant le rôle des émissions biogéniques dans la formation d'aérosols ont été rapportées (Dada et al., 2017<sup>30</sup>, Kavouras et al., 1998<sup>90</sup>) et une étude in situ récente suggère que la formation de nouvelles particules aux hautes altitudes se produit principalement par condensation de HOMs en plus de se produire par l'intermédiaire de l'acide sulfurique et des amines (Bianchi et al., 2016<sup>13</sup>). En atmosphère marine, l'iode sert de précurseur. Un modèle de la nucléation atmosphérique paramétré à partir des résultats des études en laboratoires effectuées dans la chambre CLOUD du CERN (Dunne et al., 2016<sup>49</sup>) a été comparé aux observations in situ et les résultats montrent que presque toute la nucléation dans l'atmosphère implique de l'acide sulfurique, des amines ou des composés organiques oxydés.

Des observations de la nucléation dans l'atmosphère ont ainsi été réalisées lors de campagnes aéroportées, comme réalisé par Rose et al. (2015a), lors de la campagne HYMEX (HYdrological cycle in Mediterranean EXperiment), ce qui a permis d'observer le processus de nucléation à des altitudes de l'ordre de 2 à 3 000 mètres. Des observations de la nucléation au sol ont également été rapportées lors du passage des cendres volcaniques issus du volcan islandais sur la France (Boulon et al., 2011<sup>17</sup>). Récemment, Zha et al. (2018) ont fait état des premières mesures prises à deux hauteurs différentes, au-dessus et au-dessous de la canopée. Ainsi, alors que la nucléation est un phénomène mondial (Kulmala et al., 2012<sup>101</sup>), l'absence de détection à distance limite les observations NPF dans la troposphère libre à des mesures en montagne (Bianchi et al., 2016<sup>13</sup>, Rose et al., 2015b<sup>195</sup>) ou lors de campagnes aéroportées (Rose et al., 2015a<sup>194</sup>, Quan et al., 2017<sup>182</sup>). Une limitation possible de la plupart de ces observations est que ces mesures sont réalisées soit à un point fixe au sol soit sur des plateformes aéroportées qui ne sont pas nécessairement en mouvement avec la même parcelle d'air. Ainsi, la détection en temps réel de la nucléation atmosphérique est difficile par ces méthodes car elle nécessite le déploiement coûteux et à long terme de plusieurs détecteurs de pointe pour effectuer des mesures sur le terrain dans différents environnements. Dans ce contexte, les observations optiques par télédétection, telles que les observations par lidar, peuvent utilement compléter les dispositifs existants,

en fournissant des profils verticaux du coefficient de rétrodiffusion des particules atmosphériques dans des conditions atmosphériques de température et d'humidité in situ. Au cours d'une étude précédent cette thèse (David et al., 2014<sup>35</sup>), notre équipe a montré sur un cas d'étude qu'il était possible d'observer à distance un événement de nucléation promu par des particules d'origine désertique ou volcanique. Cette mesure s'appuie sur un lidar ultra-sensible, basé sur le Pi-polarimètre, résolu en polarisation et opérant dans l'UV.

## **4.2 Simulation numérique de la rétrodiffusion optique lors d'un événement dust-NPF**

Dans ce paragraphe, les coefficients de rétrodiffusion associés à un événement de nucléation promu par la présence de particules désertiques (processus photo-catalytique) sont évalués numériquement. Nous noterons ces événements par la suite « dust-NPF event » pour faciliter la lecture. Le but de cette simulation numérique est de quantifier la sensibilité de la méthodologie de rétrodiffusion (UV, VIS) résolue en polarisation à la taille et à l'indice optique des particules impliquées dans le processus de nucléation.

Le point de départ de la simulation numérique est donné par la figure 4.4 (a), extraite du cas d'étude de référence (David et al., 2014<sup>35</sup>). Sur cette figure, est représentée l'observation sur le terrain de l'évolution temporelle de la distribution de taille des particules (entre 3 nm et 8  $\mu\text{m}$ ) durant un événement de nucléation en présence de particules désertiques, comme rapporté par le groupe d'A. Widensohler (Dupart et al., 2012<sup>50</sup>). Cette figure est représentative des concentrations de petites particules observées lors des événements de nucléation (Kulmala et al., 2012<sup>102</sup>). On peut voir sur la figure 4.4 (a) l'apparition de particules nouvellement nucléées de diamètre de quelques nanomètres qui croissent jusqu'à des tailles de l'ordre de la centaine de nanomètres. Une telle modification de la SD ne peut être expliquée par un processus physique ou chimique autre que la formation de nouvelles particules (Kulmala et al., 2012<sup>102</sup>). Il est également à noter que de tels événements de nucléation, observés entre 9 h 00 et 12 h 00 puis entre 18 h 00 et 19 h 00, ne se produisent qu'en présence de faibles concentrations de grosses particules (diamètres supérieurs à 800 nanomètres). Dans la littérature, ces grosses particules ont été identifiées comme étant précisément des particules d'origine désertique (Dupart et al., 2012<sup>50</sup>, Wang et al., 2008<sup>233</sup>). Quant aux particules nouvellement nucléées, elles peuvent être considérées comme des particules sphériques et contiennent en première approximation principalement de l'acide sulfurique.

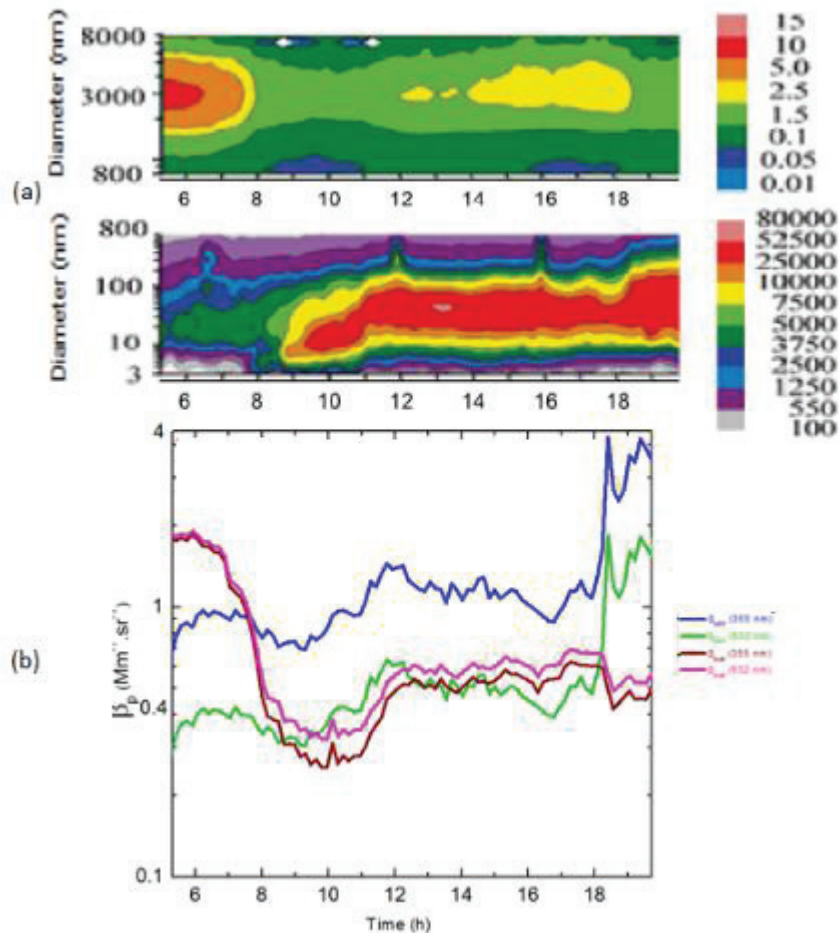


Figure 4.4 (a) : Observation de l'évolution temporelle de la concentration des particules en fonction de leurs taille au cours d'un événement typiquement de nucléation. Mesuré lors d'une campagne de terrain (Dupart et al., 2012<sup>50</sup>) le 13 mars 2009 près de Pékin (Chine). L'heure locale est utilisée. Le comportement observé entre 9h00 et 12h00, puis 18h00 à 19h00, est une signature claire d'un événement de nucléation (Kulmala et al., 2012<sup>102</sup>). Extrait de (Dupart et al., 2012<sup>50</sup>). (b) : Simulation numérique des coefficients de rétrodiffusion  $\beta_{npf}$  et  $\beta_d$  lors de l'événement représenté figure 30.  $\beta_{npf}$  a été obtenu en appliquant la théorie de Mie à  $\lambda = 355$  nm (bleu) et 532 nm (vert) préalablement à cette thèse (extrait de David et al., 2014<sup>35</sup>). Le coefficient de rétrodiffusion des particules désertiques  $\beta_{dust}$  a été numérisé à l'aide du code T-matrix à  $\lambda = 355$  nm (marron) et 532 nm (magenta). Cette simulation numérique, se basant sur une journée spécifique, a été réalisée au cours d'une thèse précédente (David, 2013<sup>35</sup>).

#### 4.2.1 Coefficients de rétrodiffusion associé à un dust-NPF event

Les coefficients de rétrodiffusion associés aux particules impliquées dans un tel événement de nucléation (particules nouvellement formées, particules d'origine désertique) ont été simulés numériquement. Dans tout ce qui suit, on désigne par  $m$  l'indice optique des particules nouvellement formées et par  $D_p$  leur diamètre. On fait l'hypothèse que ces particules sont sphériques, comme expliqué ci-dessus. Dans nos notations, nous utiliserons l'indice npf pour désigner les particules nouvellement formées à la suite du processus de nucléation, et l'indice d pour désigner les particules d'origine désertique. Le coefficient de rétrodiffusion évalué par télédétection lidar est défini comme suit :

$$\beta_{\text{NPF}}(\lambda, t) = \int_{D_{p,\text{min}}}^{D_{p,\text{max}}} \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{NPF}}(D_p, m, \lambda) n_{\text{NPF}}(D_p) dD_p \quad (4.1)$$

où  $(d\sigma/d\Omega)_{\text{npf}}$  désigne la section efficace différentielle de rétrodiffusion des particules nouvellement formées ( $\text{m}^2\text{sr}^{-1}$ ) à la longueur d'onde  $\lambda$  et pour un diamètre de particule  $D_p$ . L'intégration est effectuée sur la distribution de taille de particules (SD) et après intégration  $n_{\text{npf}} = dN_{\text{npf}}/dD_p$  représente ainsi la concentration en nombre de particules  $N_{\text{npf}}$  ( $\#\cdot\text{m}^{-3}$ ). Les particules nouvellement formées ont de petites sections de rétrodiffusions à cause de leur taille. Néanmoins, elles peuvent contribuer significativement au coefficient de rétrodiffusion si elles sont nombreuses comme le montre l'équation (4.1), ce qui rend leur détection optique par lidar faisable, du moins si la sensibilité du détecteur lidar est suffisante. Cette sensibilité du processus de diffusion à la taille et au nombre de centres diffusants est de plus couramment observée dans l'atmosphère : la couleur bleue du ciel, liée au processus de diffusion optique moléculaire, est précisément rendue visible par le grand nombre de molécules présentes dans l'atmosphère, malgré leur taille très faible.

Afin de préciser la méthodologie suivie, je rappelle la démarche suivie, publiée dans (David et al., 2014<sup>35</sup>). Dans ce papier, l'évolution temporelle du coefficient de rétrodiffusion  $\beta_{\text{npf}}$  au cours de l'événement de nucléation est représentée comme rappelé sur la figure 4.4 (b) aux deux longueurs d'onde lidar utilisées, à savoir  $\lambda = 355 \text{ nm}$  et  $\lambda = 532 \text{ nm}$ .  $\beta_{\text{npf}}$  a été calculé en appliquant la théorie de Lorenz-Mie (Mie, 1908<sup>132</sup>) en utilisant pour ce faire l'indice optique de l'acide sulfurique et sa dépendance en longueur d'onde (Hummel, 1988<sup>73</sup>). Comme publié dans (David et al., 2014<sup>35</sup>), le coefficient de rétrodiffusion  $\beta_{\text{npf}}$  peut être évalué numériquement à partir de l'équation 4.1 et des distributions de taille représentées sur la figure 4.4 (a) pour les diamètres compris entre 3 et 800 nm (cadre du bas de la figure a) et ce aux deux longueurs d'onde lidar UV et VIS. Le coefficient de rétrodiffusion  $\beta_{\text{npf}}$  augmente entre 09 h et 12 h pendant la croissance des particules nouvellement nucléées et l'augmentation du coefficient de rétrodiffusion de ces particules est plus importante dans l'UV ( $+ 0,65 \text{ Mm}^{-1}\text{sr}^{-1}$ ) que dans le VIS ( $+ 0,35 \text{ Mm}^{-1}\text{sr}^{-1}$ ). Comme indiqué dans (David et al., 2014<sup>35</sup>), ces simulations confirment que l'UV est plus sensible aux produits de la nucléation que le VIS.

Afin d'étudier la sensibilité à la taille et à la longueur d'onde, David et al. (2014) ont représenté sur la figure 4.5 (a) l'intégrand de l'équation 4.1, i.e.  $(\frac{d\sigma}{d\Omega})_{\text{NPF}} \times n_{\text{NPF}}$  en fonction du diamètre  $D_p$  de la particule et de la longueur d'onde  $\lambda$  à un horaire précis (10 h 45) correspondant au début du processus de nucléation. Du domaine de longueur d'onde de l'IR à celui de l'UV, des intégrands plus importants sont observés à des tailles de particules de plus en plus faibles. La plus petite taille contribuant à  $\beta_{\text{npf}}$  est observée à  $\lambda = 240 \text{ nm}$  et correspond à  $D_{p,\text{min}} = 50 \text{ nm}$ . Ceci signifie que, la nucléation d'agrégats de très petite taille et en particulier la formation de particules ultrafines de quelques nanomètres de taille ne peut pas être adressée avec un lidar, en raison de l'insensibilité du processus de diffusion à

ces tailles, même dans le domaine spectral de l'UV. Toutefois, la croissance des particules jusqu'à des tailles de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres contribue significativement à  $\beta_{\text{NPF}}$  dans l'UV, où les valeurs les plus élevées de l'intégrant sont observées pour des diamètres compris environ entre 50 et 150 nanomètres. Dans l'UV, la quasi-totalité des particules ayant un diamètre compris entre  $D_{p,\text{min}}$  et 800 nm contribue à  $\beta_{\text{NPF}}$ , qui est donc significativement plus important que dans le VIS (cf. Figure 4.4) où principalement les petites particules ayant des diamètres compris entre 100 et 250 nm contribuent à l'intégrant.

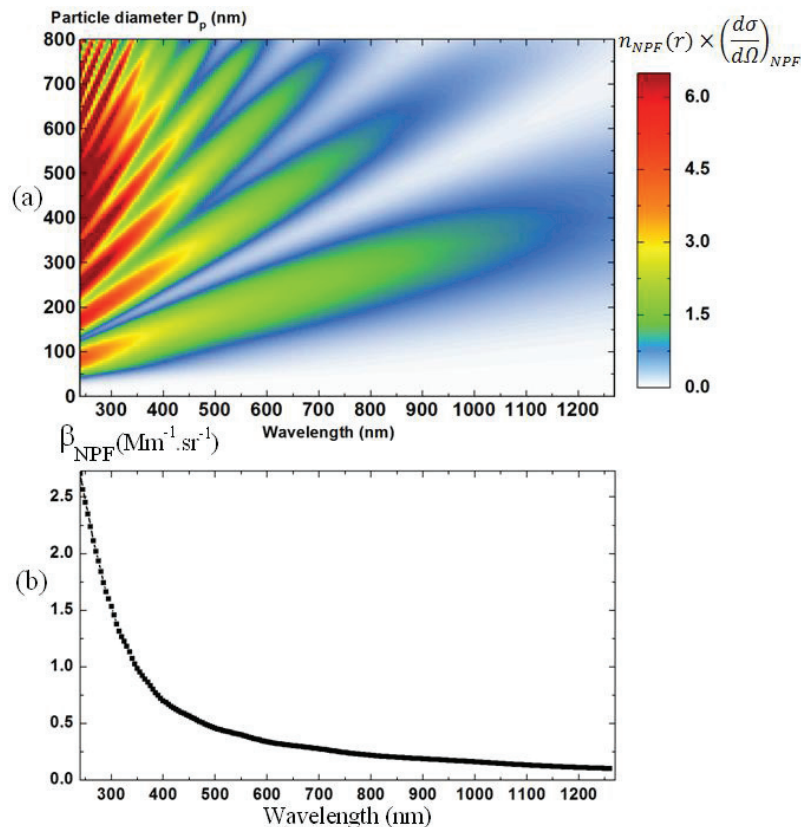


Figure 4.5 (a) Dépendance de la taille et de la longueur d'onde de l'intégrant du coefficient de rétrodiffusion des petites particules sphériques  $(d\sigma/d\Omega)_{\text{NPF}} \times n_{\text{NPF}}$  au début de l'événement de nucléation à 10h45 ( extrait de David et al., 2014<sup>35</sup>) (b) Dépendance spectrale du coefficient de rétrodiffusion  $\beta_{\text{NPF}}$  obtenu en intégrant  $(d\sigma/d\Omega)_{\text{NPF}} \times n_{\text{NPF}}$  sur la distribution de taille des particules sphériques (diamètres inférieurs à 800 nm) au début du processus de nucléation (10 h 45).

Cette simulation numérique a toutefois été réalisée en se basant sur plusieurs hypothèses. D'une part, les particules sont considérées comme étant formées d'acide sulfurique uniquement. D'après les travaux récents de l'expérience CLOUD au CERN brièvement rappelés en bibliographie, nous savons que cette hypothèse est peu réaliste. D'autre part, la sensibilité à la taille doit être mieux caractérisée, notamment en fonction de l'heure de la journée considérée (la figure 4.5 a été tracée à une heure donnée, 10 h 45), et ce pour différents événements de nucléation (la figure 4.4 représente un seul événement de nucléation). Ces actions sont précisément l'objet des prochains paragraphes.

## 4.2.2 Coefficients de rétrodiffusion associés à plusieurs événements

Nous avons ainsi étendu l'étude numérique des coefficients de rétrodiffusion des particules nouvellement formées en considérant plusieurs événements où des dust-NPF events ont été observés à la suite du transport de particules désertiques en Chine en mars 2009 (Dupart et al., 2012<sup>50</sup>). La figure 4.6(a) présente les quatre événements étudiés correspondant aux dates suivantes : 9, 13 et 21 mars et 1 avril 2009. La partie (b) de la figure présente l'évolution temporelle des coefficients de rétrodiffusion associés à chaque événement.

On constate que l'évolution temporelle de la concentration des particules nouvellement formées est similaire pour trois des quatre événements (les 9 et 13 mars ainsi que le 1<sup>er</sup> avril) dans le sens où l'on peut suivre la croissance des très petites particules (quelques nm de rayon, taille minimal détectée de 3 nm) jusqu'à des tailles de l'ordre de plusieurs centaines de nm. On peut voir notamment que les concentrations mises en jeu et la vitesse de croissance des particules est différente pour chacun de ces événements. L'évolution temporelle des coefficients de rétrodiffusion des particules nouvellement formées indique que les coefficients de rétrodiffusion augmentent avec la croissance des particules et que les SD et les concentrations mises en jeu sont différentes puisque les coefficients ne sont pas du même ordre de grandeur (deux fois plus importants le 1<sup>er</sup> avril que le 13 mars aux mêmes heures). Le suivi des coefficients de rétrodiffusion dans l'UV et dans le VIS pour ces événements nous indique que l'UV est toujours plus sensible aux particules nouvellement formées. Le 21 mars 2009 est une date à part puisqu'on ne constate pas de croissance marquée au cours de la journée et la présence en forte concentration de particules de plusieurs centaines de nm tout au long de la journée. Le 9 mars 2009, on constate une diminution des coefficients de rétrodiffusion entre 14 h et 17 h avant une brusque augmentation entre 17 h et 18 h.

Suivant la méthodologie initiée dans David et al. (2014) rappelée au début de ce chapitre, j'ai représenté sur la figure 4.7 la dépendance en taille et à la longueur d'onde de l'intégrant pour trois événements différents : le 9 mars en haut, le 13 mars au centre et le 1<sup>er</sup> avril en bas. Nous avons représenté l'évolution de cette dépendance au cours de la journée en amont de la croissance (à gauche, 12 h pour le 9 mars, 8 h pour le 13 mars et 10 h pour le 1<sup>er</sup> avril), au début de la croissance (au centre, 16 h pour le 9 mars, 10 h 45 pour le 13 mars et 12 h pour le 1<sup>er</sup> avril) et durant la croissance des particules (à droite, 18 h pour le 9 mars, 13 h pour le 13 mars et 15 h pour le 1<sup>er</sup> avril). On constate une augmentation de l'intégrant de part et d'autre de la croissance des particules, notamment pour les plus petites particules. Les 13 mars et 1<sup>er</sup> avril, on constate également une augmentation de l'intégrant au cours de la croissance contrairement au 9 mars où l'intégrant diminue. Une fois l'intégration sur les distributions de taille prise en compte, on retrouve une augmentation du coefficient de rétrodiffusion continue lors des journées du 13 mars et du 1<sup>er</sup> avril. En effet, on constate que

le 13 mars 2009 entre 8h et 13h  $\beta_{\text{npf}}$  augmente de  $0.4 \text{ Mm}^{-1}.\text{sr}^{-1}$  (de  $0.8$  à  $1.2 \text{ Mm}^{-1}.\text{sr}^{-1}$ ) dans l'UV et de  $0.2 \text{ Mm}^{-1}.\text{sr}^{-1}$  (de  $0.35$  à  $0.55 \text{ Mm}^{-1}.\text{sr}^{-1}$ ) dans le VIS. Le 1<sup>er</sup> avril 2009 entre 10h et 15h,  $\beta_{\text{npf}}$  augmente de  $1 \text{ Mm}^{-1}.\text{sr}^{-1}$  (de  $1.5$  à  $2.5 \text{ Mm}^{-1}.\text{sr}^{-1}$ ) dans l'UV et de  $0.45 \text{ Mm}^{-1}.\text{sr}^{-1}$  (de  $0.65$  à  $1.1 \text{ Mm}^{-1}.\text{sr}^{-1}$ ) dans le VIS. Fait intéressant, on retrouve des valeurs très proches (entre 2.2 et 2.3) lorsque l'on divise  $\beta_{\text{npf,uv}}$  par  $\beta_{\text{npf,vis}}$  quel que soit l'événement ou l'heure considérée. Cela semble indiquer que l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion reste constant. A la section suivante, nous allons nous intéresser plus particulièrement à l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion.

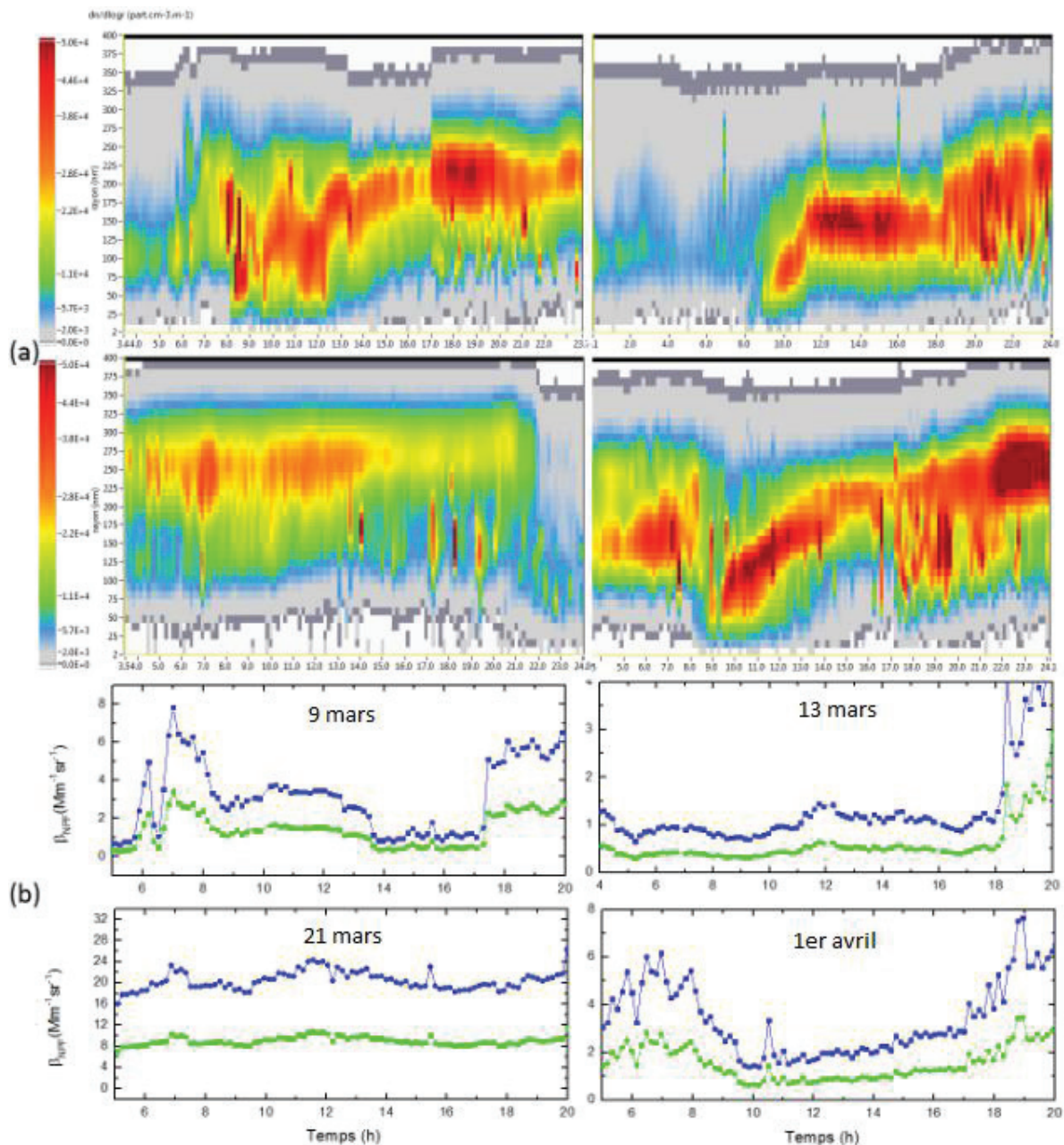


Figure 4.6 (a) Observation de l'évolution temporelle de la concentration des particules nouvellement formées en fonction de leur taille au cours d'événements mesurés lors d'une campagne de terrain (Dupart et al., 2012) (de haut en bas et de gauche à droite) les 9, 13, 21 mars et 1<sup>er</sup> avril 2009. L'heure locale est utilisée. (b) Evolution temporelle des coefficients de rétrodiffusion des particules nouvellement formées (de haut en bas et de gauche à droite) les 9, 13, 21 mars et 1<sup>er</sup> avril 2009.

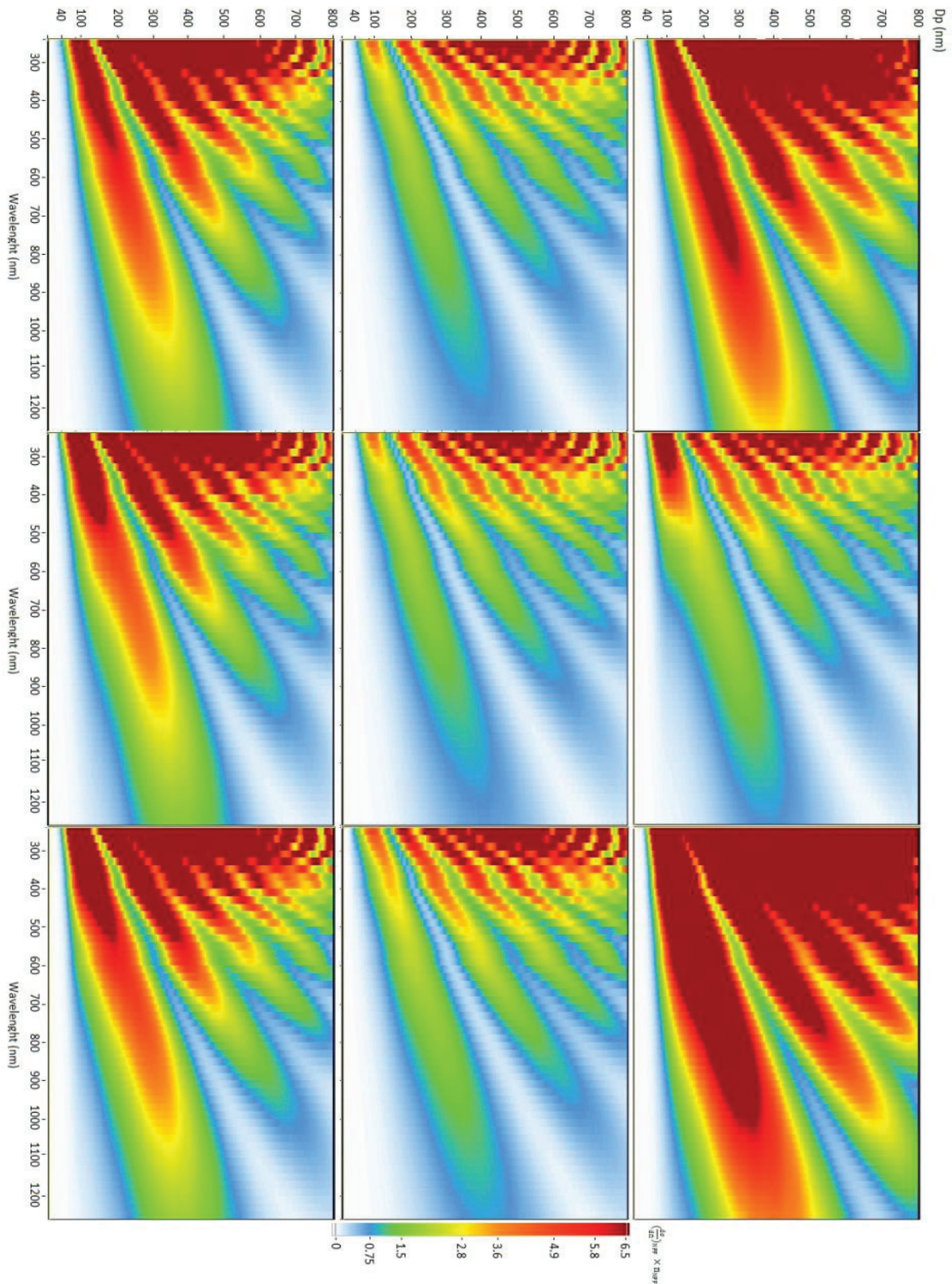


Figure 4.7 Dépendance de la taille et de la longueur d'onde de l'intégrant du coefficient de rétrodiffusion des petites particules sphériques  $(d\sigma/d\Omega)_{\text{NPF}} \times n_{\text{NPF}}$ . La ligne du haut représente l'événement du 9 mars 2009 : au centre la journée du 13 mars 2009 et en bas l'événement du 1<sup>er</sup> avril 2009. L'évolution de cette dépendance au cours de l'événement, en amont de la croissance (à gauche, 12 h pour le 9 mars, 8 h pour le 13 mars et 10 h pour le 1<sup>er</sup> avril), au début de la croissance (au centre, 16 h pour le 9 mars, 10 h 45 pour le 13 mars et 12 h pour le 1<sup>er</sup> avril) et durant la croissance des particules (à droite, 18 h pour le 9 mars, 13 h pour le 13 mars et 15 h pour le 1<sup>er</sup> avril).



### 4.2.3 Exposant d'Angstrom de rétrodiffusion des particules nucléées

Dans ce chapitre, on cherche à évaluer la sensibilité de la mesure lidar aux particules issues de la nucléation impliquant des particules désertiques. La dépendance spectrale des particules présentes dans les couches atmosphériques est une voie d'analyse. L'analyse de la dépendance spectrale des coefficients de rétrodiffusion issus des signaux extraits du polarimètre (UV, VIS), dont la précision et la sensibilité ont été discutées au chapitre précédent (cf section 3.2 du chapitre 4), permet d'évaluer l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion des particules dans l'atmosphère. Dans la communauté lidar, l'exposant Angstrom est souvent utilisé comme indicateur qualitatif de la taille des particules atmosphériques. De nombreuses mesures des exposants d'Angstrom d'extinction et de rétrodiffusion des particules désertiques ont ainsi été effectuées avec des lidars multi spectraux (Ansmann et al., 2012<sup>8</sup>, Dubovik et al., 2002<sup>47</sup>, Muller et al., 2013<sup>160</sup>, Shimizu et al., 2004<sup>209</sup>, Veselovskii et al., 2016<sup>227</sup>). Ces mesures prennent en compte la dépendance spectrale de l'ensemble des particules présentes dans les différentes couches de l'atmosphère. L'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion des particules, défini à l'équation 1.11, peut être relié aux coefficients de rétrodiffusion UV et VIS selon l'équation suivante:

$$\frac{\beta_{p,\lambda_1}}{\beta_{p,\lambda_2}} = \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right)^{-BAE_p} = e^{-\Lambda BAE_p} \quad (4.2)$$

où  $\Lambda = \ln(\lambda_1/\lambda_2)$  avec  $\lambda_1 = 532$  nm et  $\lambda_2 = 355$  nm pour notre lidar (UV, VIS). Nous allons évaluer numériquement l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion des particules nouvellement formées, que nous noterons par la suite  $BAE_{npf}$  :

$$BAE_{npf} = -\frac{1}{\Lambda} \ln\left(\frac{\beta_{npf,\lambda_1}}{\beta_{npf,\lambda_2}}\right) \quad (4.3)$$

La figure 4.8 représente la dépendance spectrale du coefficient de rétrodiffusion des particules nouvellement formées  $\beta_{npf}$  pour les NPF-dust events du 9 (a) et 13 mars (b) et du 1<sup>er</sup> avril (c) 2009, pour les trois heures représentées à la figure 4.7 (respectivement 12 h, 16 h et 18h pour le 9 mars ; 8 h, 10 h 45, 13h pour le 13 mars et 10 h, 12 h et 15 h pour le 1<sup>er</sup> avril). La première heure considérée est représentée en noir, la suivante en rouge et la plus tardive en vert. Sur la figure d, l'exposant d'Angstrom de ces particules est également calculé dans l'UV/VIS (355 et 532 nm, en bleu) et dans le VIS/IR (532 et 1064 nm, en vert) pour les trois journées considérées (carré plein : 9 mars, rond plein : 13 mars, triangle plein : 1<sup>er</sup> avril) et aux trois heures considérées (numérotées 1, 2 et 3 allant du plus tôt au plus tard pour chaque journée considérée) (d). On constate que l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion varie très peu quel que soit la journée ou l'heure considérée, avec des valeurs de  $2 (\pm 0.1)$  pour l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion dans l'UV/VIS et de  $1.55 (\pm 0.1)$  dans le VIS/IR.

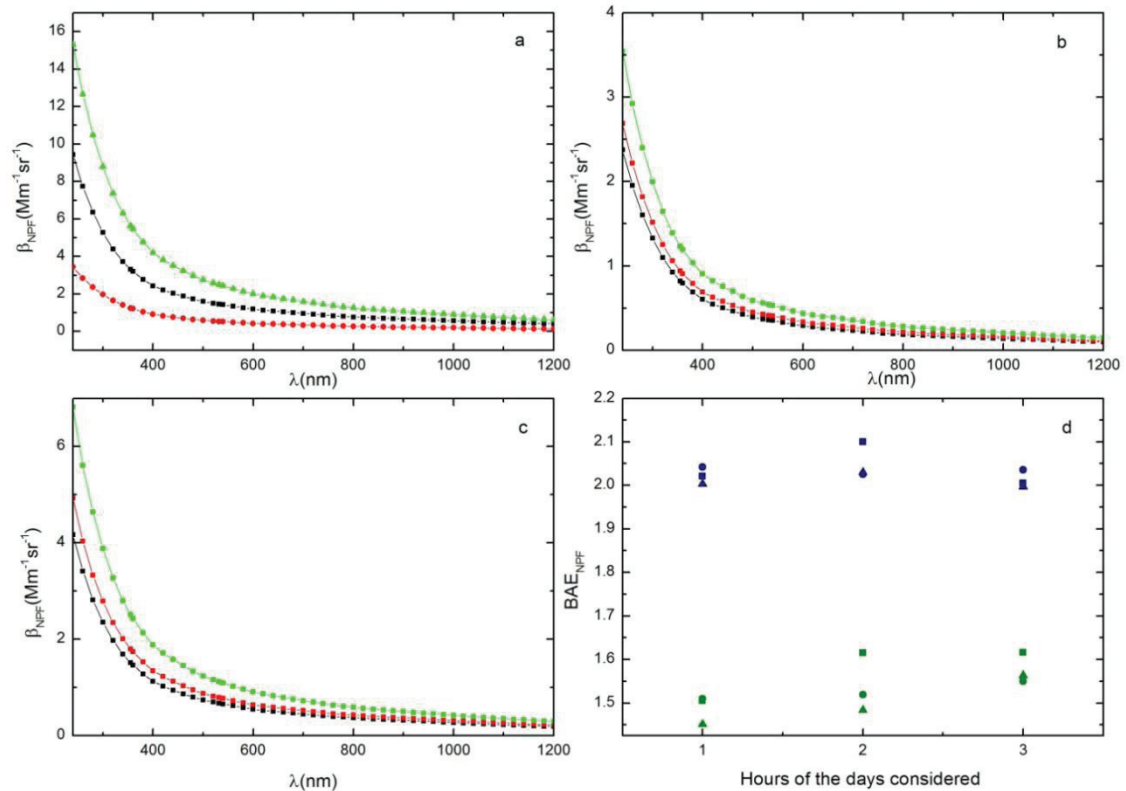


Figure 4.8 Dépendance spectrale du coefficient de rétrodiffusion des particules nouvellement formées pour les NPF-dust events du 9 (a) et 13 mars (b) et du 1<sup>er</sup> avril (c), cela pour les trois heures représentées à la figure 4.7 (respectivement 12 h, 16 h et 18h pour le 9 mars ; 8 h, 10 h 45, 13h pour le 13 mars et 10 h, 12 h et 15 h pour le 1<sup>er</sup> avril). L'exposant d'Angstrom de ces particules est également calculé dans l'UV/VIS (355 et 532 nm, en bleu) et dans le VIS/IR (532 et 1064 nm, en vert) pour les trois journées considérées (carré plein : 9 mars, rond plein : 13 mars, triangle plein : 1<sup>er</sup> avril) et aux trois heures considérées (numérotées 1, 2 et 3 allant du plus tôt au plus tard pour chaque journée considérée) (d).

### (a) Evolution temporelle de l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion

Dans un premier temps, nous gardons les mêmes hypothèses de travail que dans le cas de la simulation numérique représentée figure 4.4, de la journée du 13 mars 2009 ayant donné lieu à publication (David et al., 2014<sup>35</sup>). Ainsi, nous supposons que les particules nouvellement formées sont principalement composées d'acide sulfurique. L'indice de l'acide sulfurique en fonction de la longueur d'onde est issu de la littérature (Hummel, 1988<sup>73</sup>). L'intégration sur la distribution de taille est effectuée pour des diamètres compris entre 3 et 800 nm. La figure 4.9 représente l'évolution temporelle des coefficients de rétrodiffusion et des exposants d'Angstrom de rétrodiffusion des particules nouvellement formées le 9 mars 2009 (à gauche) et le 13 mars 2009 (à droite). On constate que l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion a une valeur constante de 2 quel que soit l'événement ou l'heure considéré, comme constaté précédemment entre le 13 mars et le 1<sup>er</sup> avril. Cela est vrai pour les 4 journées représentées figure 4.6. Ainsi, lorsque l'on considère que les particules nouvellement formées sont des particules composées principalement d'acide sulfurique et que l'intégration sur les distributions de taille est effectuée pour des diamètres compris entre 3 et 800 nm, la dépendance spectrale du coefficient de rétrodiffusion est quasi constante et ne semble pas dépendre des SD retenues.

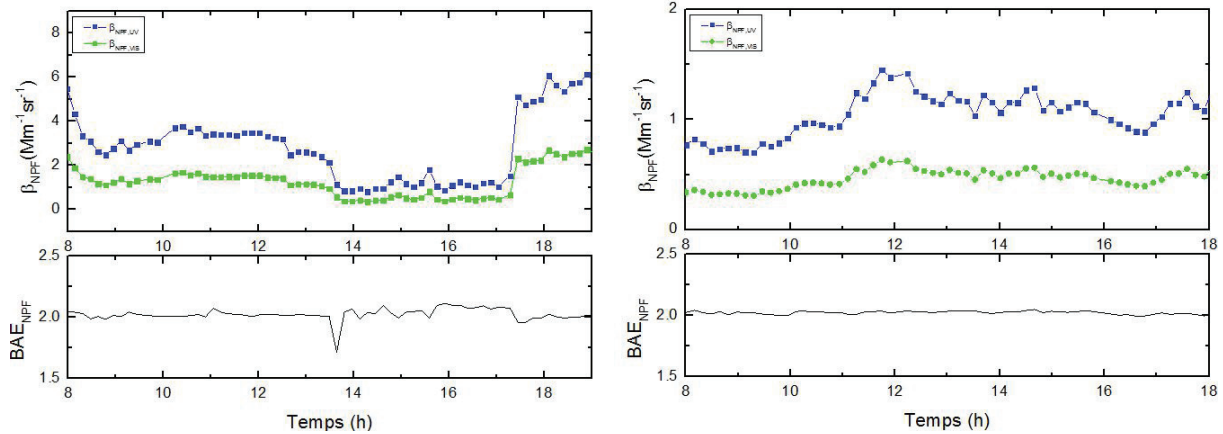


Figure 4.9 Evolution temporelle des coefficients de rétrodiffusion et des exposants d'Angstrom de rétrodiffusion des particules nouvellement formées le 9 mars 2009 (à gauche) et le 13 mars 2009 (à droite).

### (b) Influence de la taille maximale de la distribution de taille

La figure 4.10 représente l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion de particules sphériques nouvellement formées au cours de l'événement décrit sur la figure 4.4 en fonction du diamètre maximal considéré lors de l'intégration sur la SD  $D_{p,max}$ , quantité définie par l'équation 4.1.

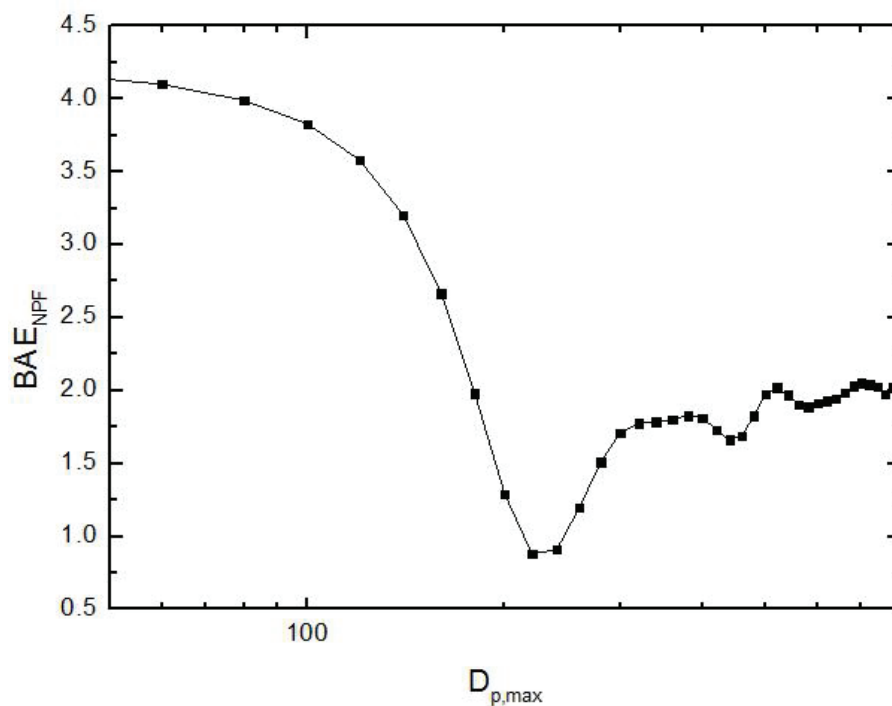


Figure 4.10 Exposant d'Angstrom de rétrodiffusion moyenné sur l'ensemble de la journée du 13 mars 2009 en fonction du diamètre maximal d'intégration considéré ( $50 < D_{p,max} < 800$  nm).

On constate que pour les particules de taille très petite devant la longueur d'onde considérée, on retrouve le comportement de la diffusion de Rayleigh (intensité diffusée inversement proportionnelle à la puissance 4 de la longueur d'onde). On peut également voir que dans la zone située entre 130 et 240 nm, l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion atteint des valeurs inférieures à 1 (jusqu'à 0.6). On peut relier ce comportement de  $BAE_{NPF}$  aux conclusions tirées des figures 4.5 et 4.7, ce sont les petites particules ayant des diamètres compris entre 100 et 250 nm qui contribuent principalement à  $\beta_{NPF}$  dans le VIS. Lorsque l'on considère des diamètres maximaux d'intégration de plus en plus grands, on constate que  $BAE_{NPF}$  tends vers 2 comme attendu. Ce comportement de l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion en fonction du diamètre maximal d'intégration se retrouve pour tous les événements considérés comme on le verra sur la figure 4.12.

### **(c) Influence de l'indice de réfraction**

La figure 4.11 représente l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion moyenné sur l'ensemble de la journée en fonction de la partie réelle de l'indice de réfraction pour les quatre événements étudiés (les 8, 9, 13 et 21 mars 2009). La partie réelle de l'indice utilisée est celle de l'acide sulfurique issu de la littérature (Hummel, 1988<sup>73</sup>) c'est-à-dire un indice de 1.48 dans l'UV et de 1.46 dans le VIS. On constate que l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion peut varier d'un facteur 2 entre un indice de 1.33 dans l'UV (1.31 dans le VIS) et un indice de 1.68 dans l'UV (1.66 dans le VIS). On constate que l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion peut ainsi varier fortement en cas de variation de la chimie des couches atmosphériques. Les parties réelles de l'indice de réfraction supérieures à 1.6 semblent surestimées par rapport aux indices de réfraction des principaux aérosols atmosphériques, du moins sans la prise en compte de grosses particules non sphériques telles que les particules désertiques. La dépendance de l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion à la partie imaginaire de l'indice a également été étudiée et on constate que seules les particules très absorbantes (partie imaginaire supérieures à  $10^{-1}$ ) peuvent induire une variation de l'exposant d'Angstrom. Etant donné la faible absorption des composés mis en jeu dans le processus de nucléation que nous étudions et les altitudes considérées qui sont au-dessus de la PBL, on peut estimer qu'il n'y a pas suffisamment de particules très absorbantes pour induire de fortes variations de l'exposant d'Angstrom.

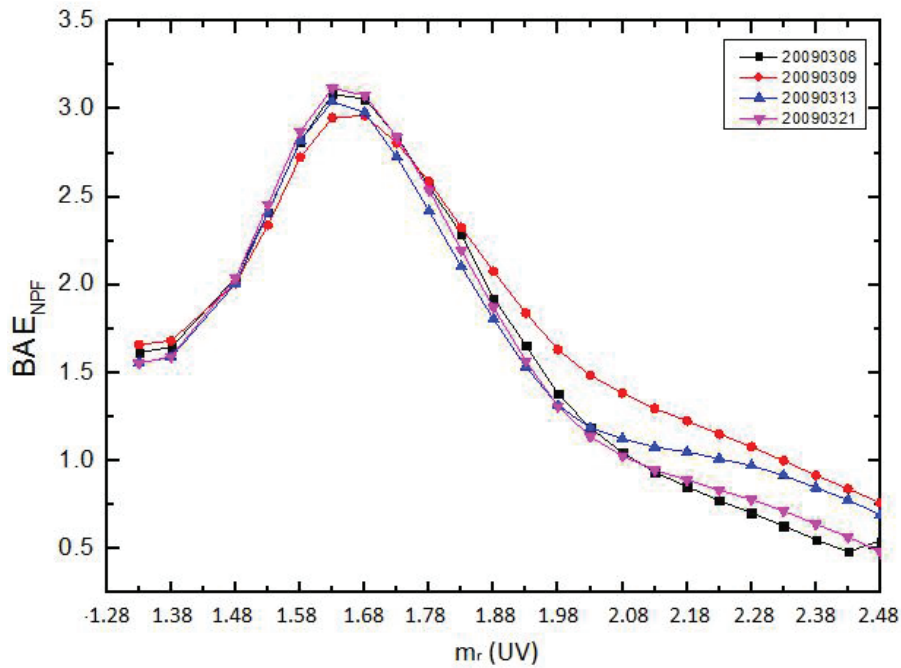


Figure 4.11 Exposant d'Angstrom de rétrodiffusion moyenné sur l'ensemble de la journée en fonction de la partie réelle de l'indice de réfraction pour 4 événements différents (les 8, 9, 13 et 21 mars 2009).

## (d) Conclusions

En conclusion à cette étude sur  $BAE_{npf}$ , on a représenté sur la figure 4.12 l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion des particules nouvellement formées en fonction du diamètre maximal d'intégration (entre 3 et 800 nm, calculé avec un pas de 50 nm) et de la partie réelle de l'indice de réfraction (entre 1.33 et 2.08, calculé avec un pas de 0.05), ceci pour trois événements différents superposés (9, 13 mars et 1<sup>er</sup> avril 2009). On constate que pour tous les événements, l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion a un comportement robuste, présentant la même dérivée quelle que soit la zone de la courbe considérée. On constate que les écarts relatifs les plus importants sont au niveau de la zone  $50 < D_{p,max} < 150$  nm où l'on retrouve un écart de  $\pm 0.5$  de  $BAE_{npf}$  entre les différents événements. Ainsi, l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion des particules nouvellement formées est une fonction complexe, dépendant de l'indice de réfraction et de la taille des particules en présence. Néanmoins, on constate que l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion dépend très peu de l'événement considéré. Afin de conclure, on a représenté sur la figure 4.13 une coupe transversale de la figure 4.12 pour l'événement du 9 mars (à gauche) et du 13 mars (à droite) 2009, pour  $BAE_{npf} = 1$  (en rouge),  $BAE_{npf} = 2$  (en bleu) et  $BAE_{npf} = 3$  (en vert). On constate que  $BAE_{NPF} = 3$  correspond à un ensemble de couples possibles (indice optique, Diamètre maximal). Ainsi,  $BAE_{npf}$  peut permettre de discuter de la sensibilité en taille de la rétrodiffusion au processus de nucléation pour peu que la chimie mise en jeu soit connue. A titre d'exemple, si l'on suppose que la chimie est celle de l'acide sulfurique d'indice 1,48 dans l'UV (1.46 dans le VIS), la figure 4.13 montre que un  $BAE_{npf}$  égal ou supérieur à 2 (resp.

3) est associé un diamètre maximal supérieur à environ 600 nm ou compris entre 150 et 200 nm (resp. inférieur à 150 nm). On constate également que pour des diamètres maximaux d'intégration supérieurs à 150 nm, on atteint des valeurs supérieures à  $BAE_{npf} = 3$  uniquement pour des parties réelles d'indice de réfraction supérieur à 1.6 dans l'UV. Ainsi, une variation de l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion des particules nouvellement formées et de leurs produits considérés sphériques ne peut indiquer qu'un changement de taille ou de chimie de ces particules.

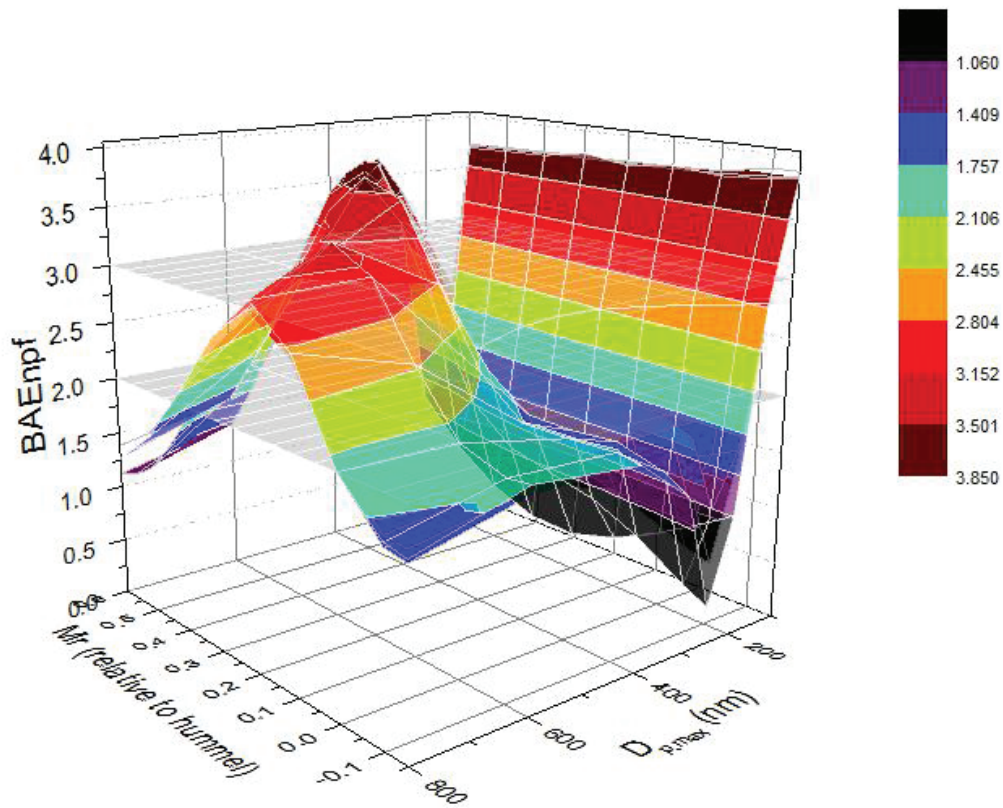


Figure 4.12 Exposant d'Angstrom de rétrodiffusion des particules nouvellement formées en fonction du diamètre maximal d'intégration (entre 3 et 800 nm) et de la partie réelle de l'indice de réfraction (entre 1.33 et 2.08) pour 3 événements différents superposés (les 9 et 13 mars et le 1<sup>er</sup> avril 2009). Il est à noter que l'indice est présenté relativement à l'indice de l'acide sulfurique donné par Hummel.

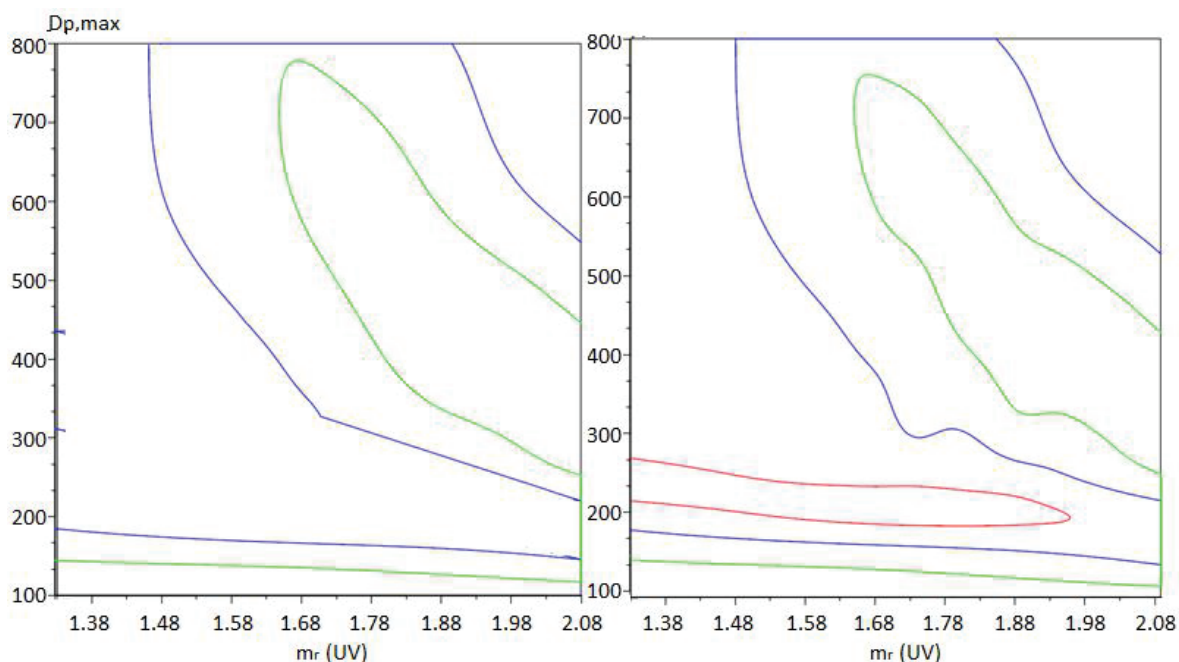


Figure 4.13 Coupe transversale de la figure 4.12 pour l'événement du 9 mars (à gauche) et du 13 mars (à droite) 2009. En rouge coupe pour  $BAE_{NPF} = 1$ , en bleu coupe pour  $BAE_{NPF} = 2$  et en vert coupe pour  $BAE_{NPF} = 3$ .

Néanmoins, pour être en mesure de comparer les observations atmosphériques, il faut être en mesure de séparer la contribution des particules sphériques de celles des particules non sphériques. Cela nous est permis par la sensibilité de notre détection (cf. section 3.2.2) qui nous permet d'isoler précisément la contribution des particules sphériques présentes dans les mélanges externes atmosphériques.

### 4.3 Observation de la formation de nouvelles particules en présence de particules désertiques

Dans cette section, nous présentons les observations lidar d'épisodes de particules désertiques réalisées à l'ILM (Villeurbanne, campus de la DOUA) depuis 2015. Nous commençons par rappeler la méthodologie optique utilisée, tirée de (David et al., 2014<sup>35</sup>) pour identifier les événements de nucléation. Nous présentons ensuite un exemple d'observation lidar de ce type, sous la forme d'une étude de cas, associé au 2 juillet 2015. Nous résumerons les résultats des observations systématiques menées durant les périodes d'advection de particules désertiques originaire du Sahara dans la troposphère libre de Lyon.

#### 4.3.1 Méthodologie optique pour la télédétection lidar de la nucléation

La méthodologie permettant d'observer par lidar la nucléation a été présentée de manière détaillée dans la publication de (David et al., 2014<sup>35</sup>). En quelques mots, elle est basée sur l'utilisation d'un lidar UV résolu en polarisation, de très grande sensibilité. En effet, comme expliqué à la section précédente, les particules nouvellement formées peuvent être

considérées comme sphériques tandis que, comme mesuré au chapitre 2 en laboratoire, les particules désertiques sont de forme non sphérique ( $f_{22}$  différent de 1). Or, l'algorithme de partitionnement optique à deux composantes décrit au chapitre 3 permet d'évaluer les coefficients de rétrodiffusion des particules sphériques et non-sphériques, et ce quelle que soit leur taille. De plus, la sensibilité de la rétrodiffusion à des particules de petite taille est accrue dans l'UV, comme expliqué dans (David et al., 2014<sup>35</sup>). On détecte alors à distance la présence d'un événement dust-NPF en notant que lors d'un tel événement, le taux de nucléation est plus élevé lorsque la quantité de particules désertiques est la plus faible, en accord avec les observations de laboratoire (Dupart et al., 2012<sup>50</sup>). C'est précisément ce que montre la simulation numérique de la figure 4.4 qui indique une anti-corrélation durant la journée entre  $\beta_d$  et  $\beta_{npf}$ . En effet, on peut voir sur cette Figure 4.4 que ce n'est que lorsque  $\beta_d$  atteint son minimum vers 10 h que  $\beta_{npf}$  commence à augmenter.  $\beta_{npf}$  augmente alors de nouveau jusqu'à atteindre un seuil à midi, où l'on constate que  $\beta_{npf}$  commence à diminuer. Un tel comportement corrélatif entre  $\beta_{npf}$  et  $\beta_d$  n'est pas observé avant ou après l'événement, durant la nuit. Ce comportement anti-corrélé des coefficients de rétrodiffusion des petites particules sphériques nouvellement formées et des plus grosses particules minérales non sphériques en présence du rayonnement solaire qui ne se prolonge pas en l'absence de ce dernier est en accord avec les mesures de laboratoire et les observations in situ où l'on constate ce comportement spatialement et temporellement (David et al., 2014<sup>35</sup>, Dupart et al., 2012<sup>50</sup>). Par conséquent, et comme expliqué dans (David et al., 2014<sup>35</sup>), les coefficients de rétrodiffusion  $\beta_{npf}$  et  $\beta_d$  peuvent être utilisés comme traceurs optiques pour observer la nucléation à distance. Comme nous l'avons vu au chapitre 3, on accède à ces coefficients à partir des équations 3.20 et 3.21 :

$$\begin{bmatrix} \beta_s \\ \beta_d \end{bmatrix} = [M_p] \begin{bmatrix} \beta_{p, //} \\ \beta_{p, \perp} \end{bmatrix} \text{ avec } [M_p] = \begin{bmatrix} 1 & -\frac{1}{\delta_d} \\ 0 & 1 + \frac{1}{\delta_d} \end{bmatrix} \quad (4.4)$$

Afin d'étudier la dépendance spectrale de la rétrodiffusion, on évaluera l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion des particules sphériques  $BAE_s$  qui suit la théorie de Mie et peut donc être comparé à  $BAE_{npf}$ .  $BAE_s$  peut être évalué par la mesure lidar (UV, VIS) des coefficients de rétrodiffusion à partir de  $\beta_s$  aux deux longueurs d'onde (UV, VIS).

### 4.3.2 Etude de cas : le 2 juillet 2015

Nous décrivons ici un exemple d'étude, ce qui nous permettra d'appliquer la méthodologie décrite à la section précédente et des observations spatio-temporelles typiques lors de la présence de particules désertiques dans la troposphère de Lyon. On discute notamment des paramètres retenus pour l'inversion Klett (1985) et le partitionnement optique réalisé. Les observations lidar sont réalisées de jour et de nuit car nous sommes sensibles aux conséquences d'un processus qui est photo-catalytique. Les observations réalisées le 2 juillet



2015 en journée sont comparées à celles réalisées la veille, lorsque les masses d'air au-dessus de Lyon ne contenaient pas de particules désertiques et aux observations réalisées de nuit lors de la présence de particules désertiques. Enfin, nous présentons l'ensemble des observations réalisées au cours des deux dernières années lors des dust-NPF events.

### (a) Paramètres pour l'inversion des données

Afin de faciliter l'analyse des données issues des différentes observations réalisées au cours de cette thèse, nous avons établi un protocole d'analyse afin d'isoler les données les plus pertinentes. Les prédictions météorologiques sont suivies en continu, en particulier la présence éventuelle de particules désertiques dans la troposphère libre de Lyon, pour être en mesure de mettre en marche la station lidar lors des événements de nucléation éventuels (cf. section (c)), si possible quelques jours en amont et quelques jours suivants l'événement afin d'avoir des données comparatives. La figure 4.14 présente à gauche des profils verticaux des signaux bruts, ajustés à l'altitude et auxquelles on a retiré le bruit de fond, obtenus à 14 h le 2 juillet 2015 par le lidar spécifié à la section 3.1 du chapitre 3. Les signaux sont échantillonnés à une fréquence minimale de 20 Mhz, ce qui conduit à une résolution de 7.5 m verticalement. On constate que c'est le signal détecté par la voie de détection de polarisation croisée qui limite l'altitude maximale d'analyse des signaux entre 8 et 10 Km où l'intensité rétrodiffusé de polarisation croisée est trop faible pour être discernée du bruit de fond.

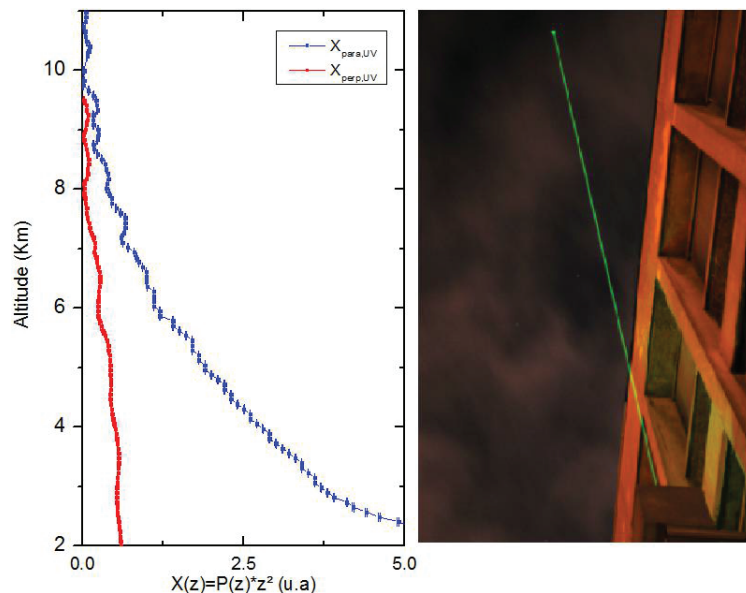


Figure 4.14 A gauche, puissance détectée par les deux voies du détecteur  $\{//, \perp\}$  ajusté à l'altitude ( $X=P(z)z^2$ ). A droite une photo du lidar émettant dans l'UV-VIS en début de soirée dans la troposphère libre de Lyon.

Comme indiqué aux chapitres 1 et 3, nous suivons la méthode d'inversion de Klett (Klett, 1985<sup>98</sup>), ce qui nécessite de choisir le ratio lidar du mélange de particules  $S$  défini à l'équation 3.13. Les résultats obtenus au chapitre 3 indiquent une large variabilité du ratio lidar des particules désertiques seules. En effet, on retrouve des valeurs pour le ratio lidar

des particules désertiques compris entre 19 et 72 sr selon la distribution de taille et la forme considérée. Néanmoins ces valeurs ne peuvent pas être utilisées dans le cas de l'inversion d'un mélange de particules atmosphériques. Dans le cas d'un mélange externe comprenant des particules désertiques après un long transport, les valeurs du ratio lidar des mélanges de particules comprenant des particules désertiques sont très variables dans la gamme spectrale UV-VIS et il n'y a pas de valeurs absolues qui peuvent être retenues car elles dépendent fortement de l'état de l'atmosphère considéré. Des valeurs de 55 ( $\pm 10$ ) sr et 50 ( $\pm 15$ ) sr respectivement à 355 et 532 nm ont été utilisées lors d'études in situ effectuées par la communauté AERONET (European Aerosol Research Network) pour l'analyse de signaux en présence de particules désertiques dans le ciel d'Europe centrale (Muller et al., 2010<sup>159</sup>). Pour l'inversion des signaux du 2 juillet 2015, nous avons choisi une valeur pour le ratio lidar des particules de 60 ( $\pm 10$ ) sr dans l'UV et 55 ( $\pm 10$ ) sr dans le VIS.

Pour le partitionnement optique du mélange externe des particules désertiques et des particules sphériques présentes dans les couches atmosphériques du 2 juillet 2015, nous avons retenu les valeurs obtenues en laboratoire (Miffre et al., 2016<sup>139</sup>) afin de partitionner. Les études in situ au moyen d'un réseau lidar coordonné dans le cadre d'AERONET ont du reste obtenu un rapport de dépolarisation des particules désertiques d'environ ( $24 \pm 7$ ) % à 355 nm et ( $31 \pm 2$ ) % à 532 nm après un transport sur une longue distance jusqu'en Europe (Muller et al., 2010<sup>159</sup>). Les différences dans l'évaluation du rapport de dépolarisation dans la littérature peuvent s'expliquer par la grande variabilité de forme, de taille et de l'état de surface des particules désertiques à l'origine, qui s'amplifie après une longue période d'advection dans les couches atmosphériques. Fait intéressant, les simulations numériques réalisées à l'aide du code DDA (cf. chapitre 3) pour la SD2 donnent pour les stéréo particules lisses des valeurs de dépolarisation très proche de 25 % dans l'UV et dans le VIS. Pour les stéréo particules auxquelles on a ajouté une rugosité de surface le rapport de dépolarisation est supérieur à 30 % dans le VIS et supérieure à 35 % dans l'UV.

## **(b) Observations lidar (UV, VIS) d'un événement dust-NPF**

Nous avons représenté l'évolution spatio-temporelle des coefficients de rétrodiffusion des particules sphériques et non sphériques sur la figure 4.15 sous la forme de cartes temps-altitude de  $\beta_s$  (à gauche) et  $\beta_{dust}$  (à droite) dans l'UV (en haut) et dans le VIS (à droite) obtenues le 2 juillet 2015. Les altitudes sous 2 Km ne sont pas représentées car la couche limite atmosphérique (PBL) n'est pas l'objet de notre étude. On constate que les particules désertiques sont principalement situées au-dessus de 3 km d'altitude, comme suggéré par les modèles de rétro trajectoires des masses d'air (cf. section (c)). Entre 2 et 4 km, on constate une augmentation de  $\beta_s$  dans l'UV et dans le VIS de 16 h à 20 h avec une extension spatiale s'accroissant au cours du temps. L'augmentation du coefficient de rétrodiffusion des particules sphériques n'est observée qu'à la limite de la couche de particules désertiques. De façon analogue, le coefficient de rétrodiffusion des particules sphériques connaît ses plus faibles valeurs au centre de la couche de particules désertiques dans l'UV.

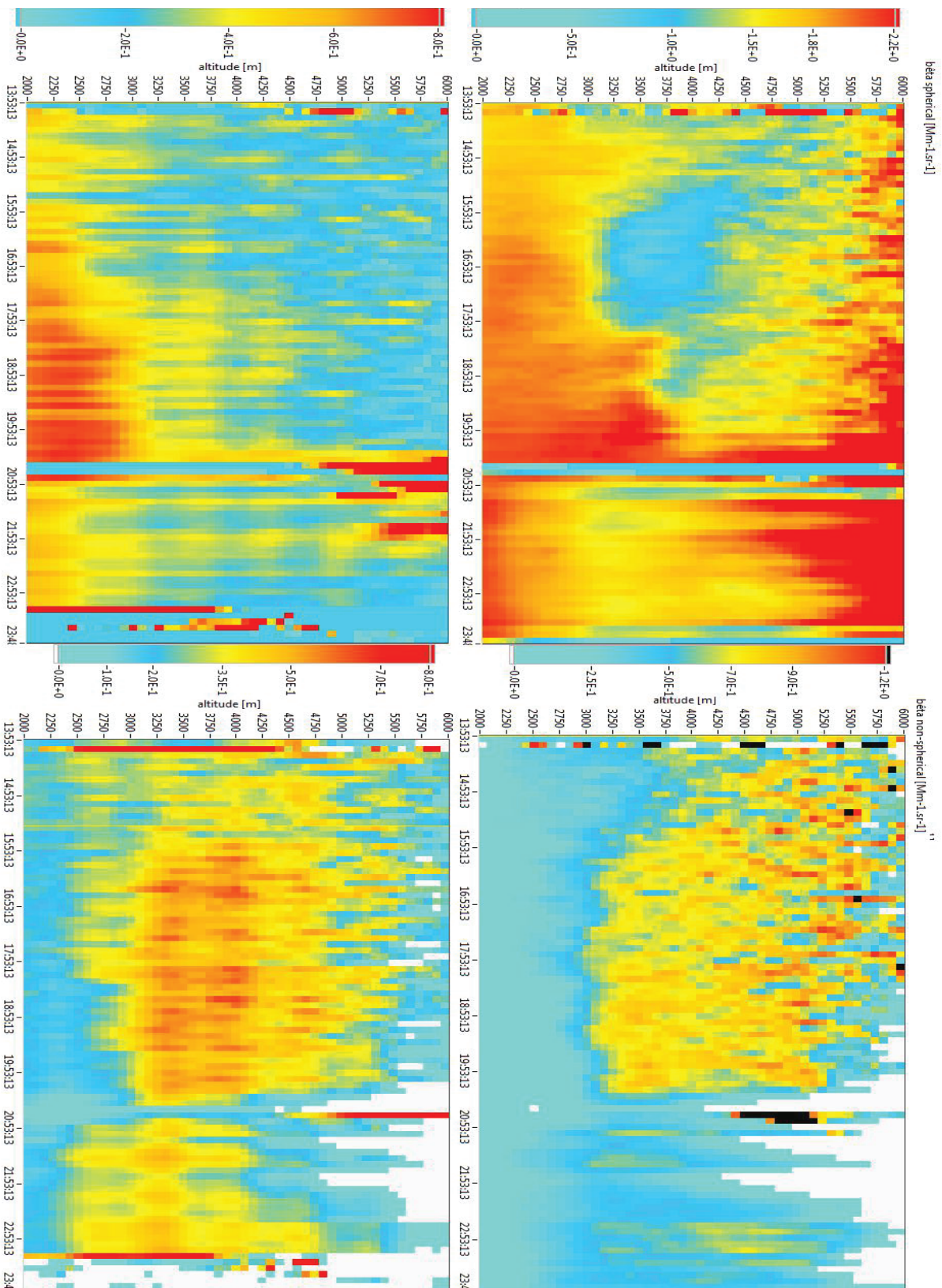


Figure 4.15 Cartes temps-altitude des coefficients de rétrodiffusion  $\beta_s$  et  $\beta_d$  ( $\text{Mm}^{-1} \text{sr}^{-1}$ ) des particules sphériques (à gauche) et des particules non sphériques (à droite) supposées être majoritairement des particules désertiques. Mesurés à Lyon à  $\lambda = 355 \text{ nm}$  (en haut) et  $\lambda = 532 \text{ nm}$  (en bas) le 2 juillet 2015.

Comme identifié dans (Dupart et al., 2012<sup>50</sup>), une concentration trop élevée en particules désertiques peut inhiber la nucléation car les particules désertiques peuvent agir comme des puits de condensation. Ici, l'augmentation du coefficient de rétrodiffusion des particules sphériques est observée uniquement à la frontière de la couche contenant des particules désertiques. Ce suivi spatio-temporelle des coefficients de rétrodiffusion sphériques et non sphériques semble ainsi confirmer leur comportement anti-corrélé lors de la journée du 2 juillet 2015, en accord avec les simulations numériques (cf. section 4.2) et les observations précédentes (David et al., 2014<sup>35</sup>, Dupart et al., 2012<sup>50</sup>). La figure 4.16 montre les profils verticaux des coefficients de rétrodiffusion dans l'UV et dans le VIS, à 16h (en haut) et à 23h (en bas). Les altitudes vont de 2.5 à 5.5 Km, cela représente la plage d'altitude de la troposphère libre contenant les particules désertiques (cf. figure 4.15). On peut voir sur les deux premières colonnes les profils de  $\beta_{p, //}$  puis  $\beta_{p, \perp}$  en bleu (resp. vert) dans l'UV (resp. VIS). Afin de mettre en exergue l'anti corrélation de  $\beta_s$  et  $\beta_d$ , les deux colonnes suivantes représentent les profils verticaux de ces deux coefficients dans l'UV (en bleu et en marron ) puis dans le VIS (en vert et en magenta ). La dernière colonne représente l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion des particules sphériques  $BAE_s$ . On peut tout d'abord noter que, au-dessus de 3 Km, les coefficients de rétrodiffusion des particules désertiques sont supérieurs à  $0.5 \text{ Mm}^{-1} \text{ sr}^{-1}$  dans l'UV et dans le VIS de jour comme de nuit. Pour les paramètres d'inversion retenus, il n'y a que les journées où la présence de particules désertiques a été confirmée par des observations satellitaires ou des simulations numériques que  $\beta_d$  dépasse cette valeur, du moins sur l'ensemble des journées analysées. Aussi, l'humidité relative n'est pas élevée aux altitudes considérées, de l'ordre de 40 % (cf figure 4.21) et reste constante au cours de la journée (cf. figure 4.3). On constate que de jour, pour les altitudes considérées, les coefficients de rétrodiffusion des particules sphériques et désertiques sont anti corrélés dans l'UV et dans le VIS. Alors que de nuit, il n'y a pas de relation particulière entre les coefficients dans le visible, dans l'UV c'est une corrélation que nous observons. Cela est mis en exergue Figure 4.17 où l'on peut voir les diagrammes de dispersion de  $\beta_s$  en fonction de  $\beta_d$  dans l'UV (en haut) et dans le VIS (en bas) entre 2.5 et 4.5 Km. Ces diagrammes montrent une corrélation négative en journée (16 h, à gauche) et une corrélation positive la nuit (23 h, à droite) dans l'UV. Dans le VIS, l'anti-corrélation est beaucoup moins marquée durant la journée, comme attendu, et il ne semble pas y avoir de corrélation durant la nuit. Ces observations sont en accord avec les études menées précédemment dans l'UV (David et al., 2014<sup>35</sup>, Dupart et al., 2012<sup>50</sup>). On constate également que  $\beta_{s,uv}$  est compris entre 0.6 et  $2.25 \text{ Mm}^{-1} \text{ sr}^{-1}$  et que  $\beta_{s,vis}$  est compris entre 0.25 et  $0.75 \text{ Mm}^{-1} \text{ sr}^{-1}$  alors que la veille, en l'absence de particules désertiques dans l'atmosphère à ces mêmes altitudes,  $\beta_{s,vis}$  atteint des valeurs comparables à  $\beta_{s,uv}$  allant jusque  $2 \text{ Mm}^{-1} \text{ sr}^{-1}$  (cf. Figure 4.18). Cela peut être une conséquence de la présence de particules désertiques qui peuvent agir en puit de condensation (Dupart et al., 2012<sup>50</sup>). Ces observations de l'anti-corrélation spatio-temporelle de  $\beta_s$  et  $\beta_d$  de jour qui s'estompe de nuit (s'inverse même dans cette étude de cas aux altitudes considérées) sont un indicateur de la formation de nouvelles particules in situ.

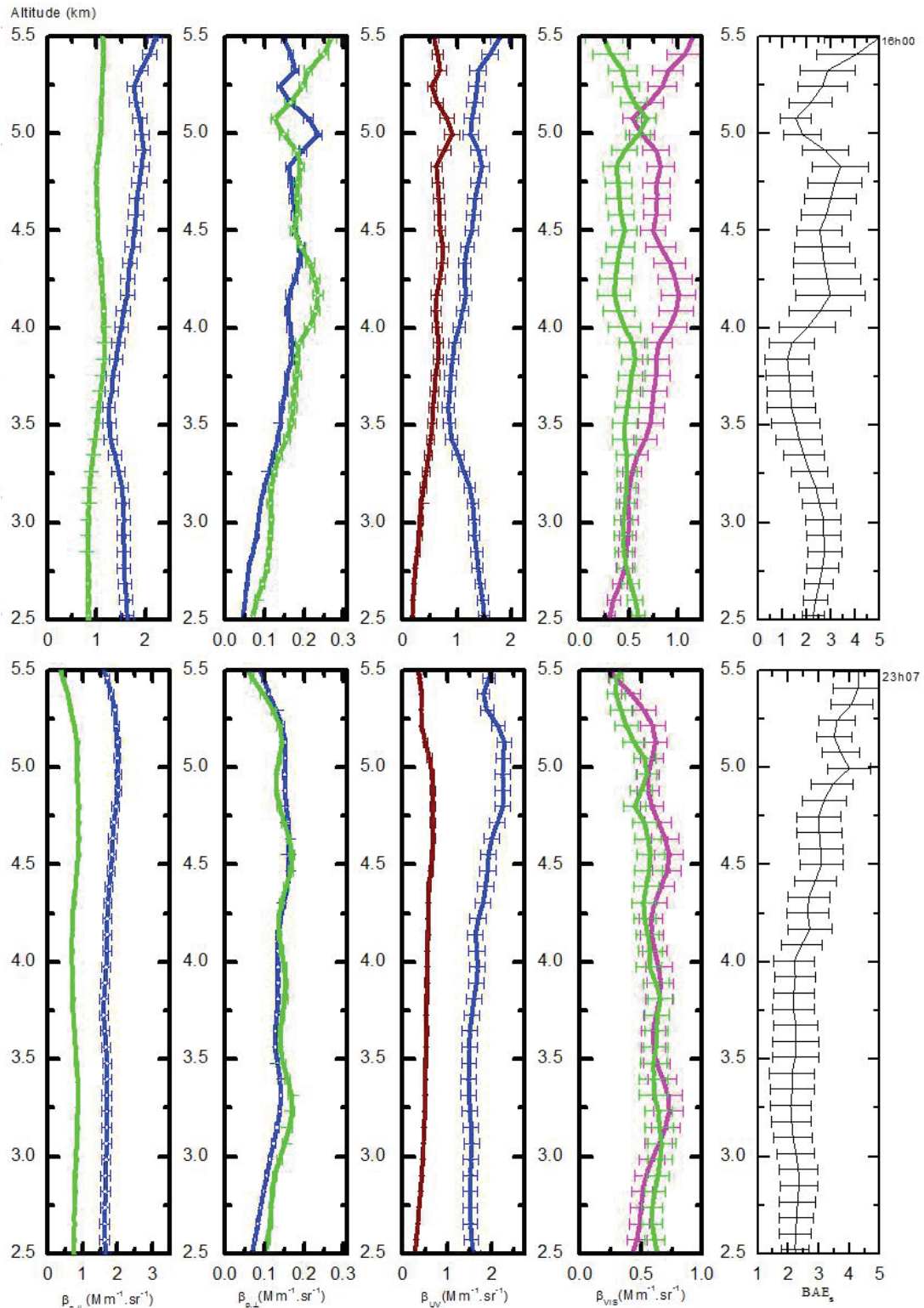


Figure 4.16 Profils verticaux des coefficients de rétrodiffusion dans l'UV et dans le VIS. En haut à 16h, en bas à 23h, le 2<sup>er</sup> juillet 2015. A gauche, 1<sup>er</sup> cadran : profils de  $\beta_{p, //}$ , 2<sup>er</sup> cadran profils de  $\beta_{p, \pm}$  (Bleu UV, vert VIS). Le cadran central représente les coefficients de rétrodiffusion sphériques et des particules désertiques  $\beta_s$  (bleu) et  $\beta_{dust}$  (marron) dans l'UV. A droite 1<sup>er</sup> cadran :  $\beta_s$  (vert) et  $\beta_{dust}$  (magenta) dans le VIS. 2<sup>e</sup> cadran :  $BAE_s$ . Pour faciliter la lecture, le graphe est limité aux altitudes où les particules désertiques sont présentes.

L'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion connaît un grand nombre de variations spatio-temporelles durant la journée et cette variabilité s'estompe durant la nuit. On peut voir figure 4.16 à 16 h que  $BAE_s$  a des valeurs supérieures à 2 entre 2.5 et 3 Km puis diminue jusqu'à atteindre une valeur inférieure à 2 entre 3 et 4 Km alors qu'entre 4 et 4.75 Km il augmente de nouveau jusqu'à des valeurs proches d'environ 3 (entre 4 et 5.5 Km, il est difficile de conclure à cause des barres d'erreurs). On a vu dans la section dédiée aux simulations numériques qu'un  $BAE_s$  supérieur à 2 peut indiquer que les diamètres maximaux des distributions de taille des particules sphériques sont inférieurs à 200 nm ou que la partie réelle de leur indice est supérieur à 1.6. Cette variabilité de jour de l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion que l'on ne retrouve pas de nuit peut être un indicateur supplémentaire du processus photo catalytique auquel nous sommes sensibles avec notre lidar (UV, VIS) résolu en polarisation.

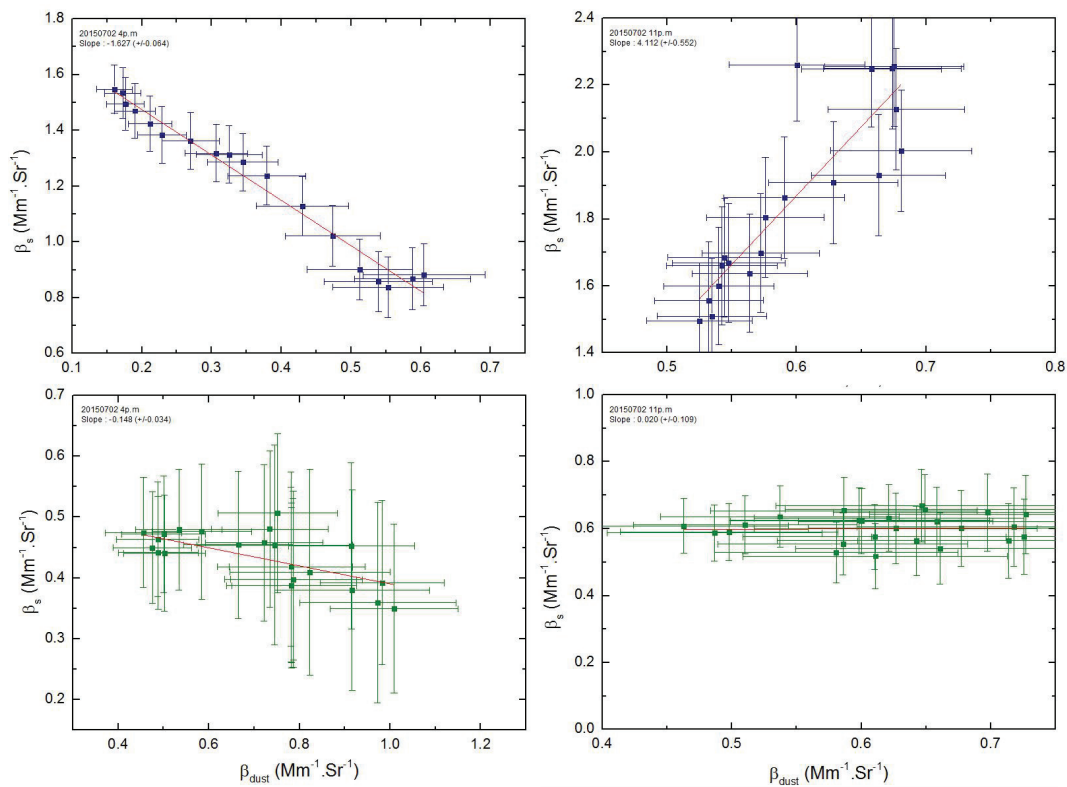


Figure 4.17 Diagrammes de dispersion du coefficient de rétrodiffusion des particules sphériques en fonction du coefficient de rétrodiffusion des particules désertiques dans l'UV (en haut) et dans le VIS (en bas) entre 2.5 et 4.5 Km, le 2 juillet 2015. Ces diagrammes montrent une corrélation négative durant la journée (16h, à gauche) et une corrélation positive durant la nuit (23h, à droite) dans l'UV. Dans le VIS, l'anti-corrélation est beaucoup moins marquée durant la journée et il ne semble pas y avoir de corrélation durant la nuit.

## (c) Discussion

### i- Comparaison à la journée précédente en l'absence de particules désertiques

La veille de notre journée référence du 2 juillet 2015, les conditions de température et d'humidité relative sont relativement proches. Par contre, les particules désertiques

originaires du Sahara ne sont pas encore arrivées à Lyon d'après les rétro trajectoires modélisées au NILU et par l'extinction optique des particules désertiques modélisées par l'organisation mondiale de la météorologie.

La figure 4.18 représente les profils verticaux des coefficients de rétrodiffusion dans l'UV et dans le VIS à 14 h le 1<sup>er</sup> juillet 2015, de façon analogue à la figure 4.16. On peut voir sur les deux premières colonnes les profils de  $\beta_{p, //}$  et  $\beta_{p, \perp}$  en bleu (resp. vert) dans l'UV (resp. VIS). Afin de mettre en exergue la relation entre  $\beta_s$  et  $\beta_d$ , les deux colonnes suivantes représentent les profils verticaux de ces deux coefficients dans l'UV (en bleu et en marron) puis dans le VIS (en vert et en magenta). La dernière colonne représente l'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion des particules sphériques  $BAE_s$  tel que défini à l'équation 4.5.b. Nous considérons les mêmes altitudes que pour le jour référence. On constate que les coefficients de rétrodiffusion des particules non sphériques, partitionnés en utilisant les mêmes paramètres que pour le 2 juillet 2015 (c'est-à-dire en prenant la valeur de dépolarisation des particules désertiques) ne dépassent pas  $0.5 \text{ Mm}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ , ce qui semble confirmer l'absence de particules désertiques. Aussi, on constate que le coefficient de rétrodiffusion des particules sphériques dans le VIS est du même ordre de grandeur que dans l'UV. Cela se reflète par un exposant d'Angstrom de rétrodiffusion des particules sphériques qui est de l'ordre de 1 de façon étonnamment constante entre 2.5 et 4 Km, de jour comme de nuit, et qui reste relativement bas jusqu'aux hautes altitudes (au-delà de 5 Km). Il est possible que l'atmosphère soit composée principalement de grosses particules sphériques (au-delà des simulations numériques que nous avons conduites) ou que les distributions de taille des aérosols présentant une symétrie sphérique aient leur mode principaux compris entre 150 et 300 nm. La relativement faible variabilité de  $BAE_s$  peut être un indicateur du manque d'activité physico-chimique et notamment de la formation de très petites particules par le processus physico chimique étudié dans le cadre de cette thèse. Enfin, on constate qu'il n'y a pas d'anti-corrélation entre les coefficients de rétrodiffusion sphériques et non sphériques, que ce soit dans l'UV ou dans le VIS. De fait, c'est même une corrélation positive que l'on retrouve entre ces deux observables, représentée figure 4.19 par les diagrammes de dispersion dans l'UV (à gauche) et dans le VIS (à droite). Ce comportement se retrouve tout au long de la journée et durant la soirée (prise de données jusqu'à minuit) précédant la journée du 2 juillet 2015 où l'anti-corrélation est observée dès le début des prises de données. Ces observations comparatives lors des journées en l'absence de particules désertiques et en l'absence de rayonnement solaire (de nuit) semblent confirmer les observations indiquant la formation de nouvelles particules in situ le 2 juillet 2015.

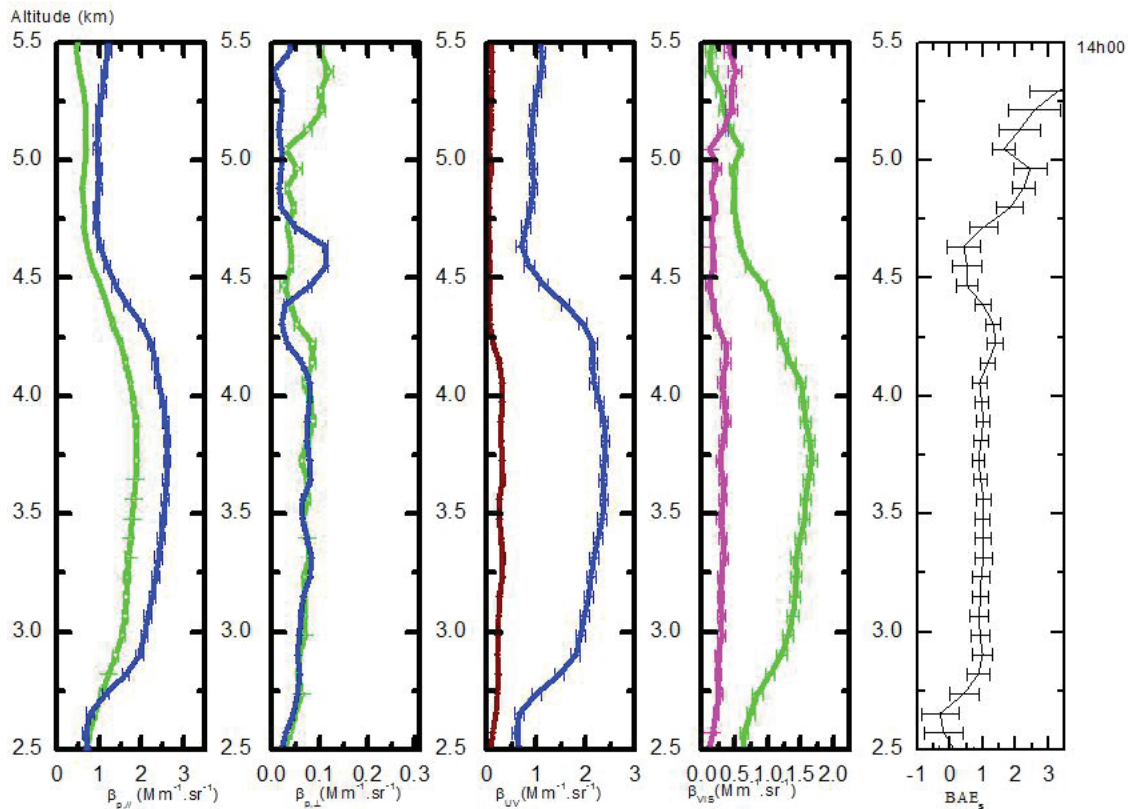


Figure 4.18 Profils verticaux des coefficients de rétrodiffusion dans l’UV et dans le VIS à 14h la veille de l’arrivée des particules désertiques (1 juillet 2015). A gauche, 1<sup>er</sup> cadran : profils de  $\beta_{p, //}$  // 2<sup>e</sup> cadran profils de  $\beta_{p, \perp}$  (Bleu UV, vert VIS). Le cadran central représente les coefficients de rétrodiffusion sphériques et des particules désertiques  $\beta_s$  (bleu) et  $\beta_{dust}$  (marron) dans l’UV. A droite 1<sup>er</sup> cadran :  $\beta_s$  (vert) et  $\beta_{dust}$  (magenta) dans le VIS. 2<sup>e</sup> cadran :  $BAE_s$ . Pour faciliter la lecture, le graphique est limité aux altitudes au-dessus du PBL où les particules désertiques sont présentes.

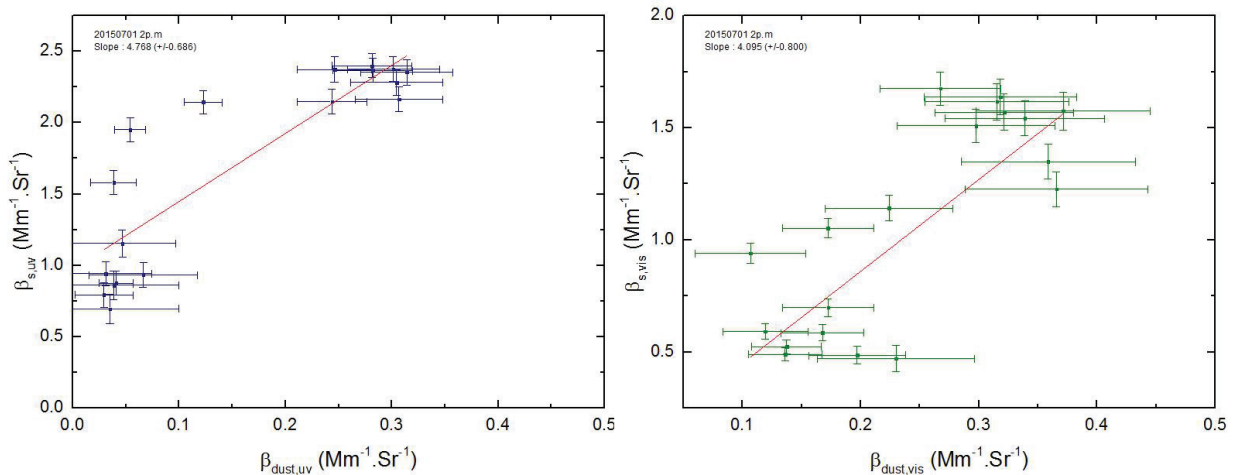


Figure 4.19 Diagrammes de dispersion du coefficient de rétrodiffusion des particules sphériques en fonction du coefficient de rétrodiffusion des particules désertiques dans l’UV (à gauche) et dans le VIS (à droite) entre 2.5 et 4.5 Km, le 1<sup>er</sup> juillet 2015 à 14 h. Ces diagrammes montrent une corrélation positive durant la journée.

## ii- Considérations atmosphériques

La figure 4.20 représente les trajectoires des masses d’airs calculées en utilisant le modèle Flextra développé par Andreas Stohl (NILU) en coopération avec Gerhard Wotawa et Petra Seibert (Institut de Météorologie et de Géophysique, Vienna) et en utilisant les données



météorologiques fournies par ECMWF (European Centre for Medium Range Weather Forcast). Lors de l'épisode d'advection de particules désertiques issues du Sahara jusqu'à Lyon du 2 juillet 2015, les particules non sphériques présentes dans la troposphère peuvent être assimilées à des particules désertiques. En effet, comme le montre la figure 5.7, on peut voir que dès l'aube des masses d'air transportant des particules désertiques originaires du sud du Maroc (les masses d'air sont au niveau du sol lorsqu'elles passent par le sud du Maroc) arrivent au niveau du ciel lyonnais à des altitudes comprises entre 4.5 et 6 Km. Des masses d'air continuent à arriver du Sahara tout au long de la journée, même si ces dernières ne passent plus au niveau du sol lorsqu'elles traversent le Sahara algérien, à des altitudes comprises environ entre 2.5 et 5.5 Km. On constate également plus tard dans la journée des masses d'air en provenance de l'atlantique, néanmoins elles sont à des altitudes élevées et on peut estimer qu'elles ne transportent pas de particules marines en concentration suffisamment élevées pour qu'elles influent sur nos coefficients de rétrodiffusion. Dans l'atmosphère de Lyon, on peut supposer une forte concentration des polluants issus de l'activité humaine, et notamment du dioxyde de soufre essentiel au mécanisme décrit dans (Dupart et al., 2012<sup>50</sup>). Notre étude se concentre sur la troposphère libre où l'on suppose, au regard des rétro trajectoires de masses d'air, qu'il n'y a pas de présence de particules très dépolarisantes à l'exception des particules désertiques. Ainsi, pour un mélange externe  $\{p\}=\{s, d\}$ , on peut supposer que  $\delta_s$  est proche de 0 % lors du partitionnement optique.

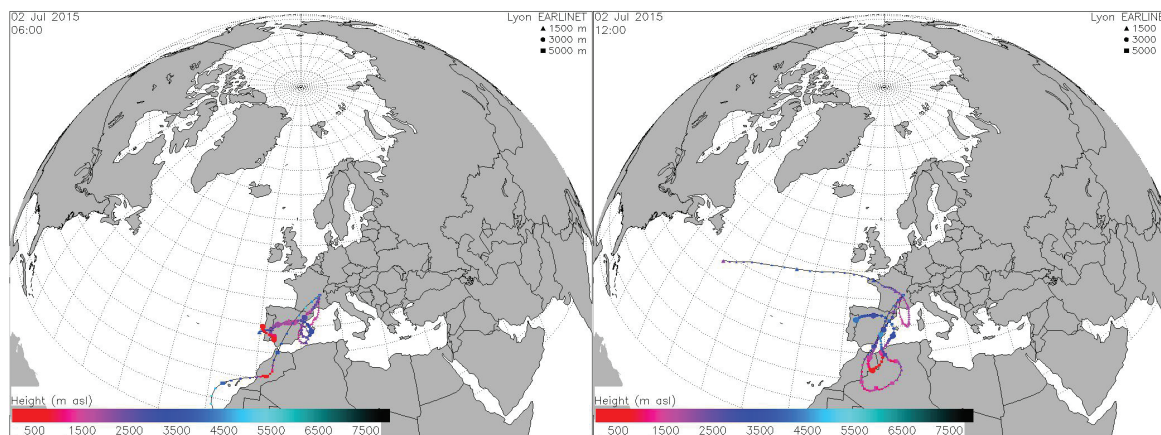


Figure 4.20 Trajectoires des masses d'airs atteignant la troposphère libre de Lyon le 2 juillet 2015. Calculées en utilisant le modèle Flextra développé par Andreas Stohl (NILU) en coopération avec Gerhard Wotawa et Petra Seibert (Institut de Météorologie et de Géophysique, Vienna) et en utilisant les données météorologiques fournies par ECMWF (European Centre for Medium Range Weather Forcast)

La figure 4.21 représente, à gauche les profils verticaux de l'humidité relative à Villeurbanne et à droite l'épaisseur optique moyenne des particules désertiques à 12 h et 18 h le 2 juillet 2015 issues respectivement des données des analyses menées par la division des sciences physiques de OAA/ESRL (NOAA/ESRL Physical Sciences Division, Boulder Colorado from their Web site at <http://www.esrl.noaa.gov/SD/>) et du modèle SDS-WAS de l'organisation mondiale de météorologie (WMO, Northern Africa- Middle East – Europe (NA-ME-E) regional

center, <https://sds-was.aemet.es>). On constate que l'humidité relative est comprise entre 30 et 60 % au cours de la journée et reste stable, notamment entre 2 et 5 Km où l'humidité relative reste relativement faible (< 40 %). La présence de particules désertiques dans la troposphère libre de Lyon a été confirmée par les prévisions et modèles utilisés (SDS-WAS) et par les observations satellitaires (EUMETSAT) de la journée, effectuées par l'organisation mondiale de météorologie.

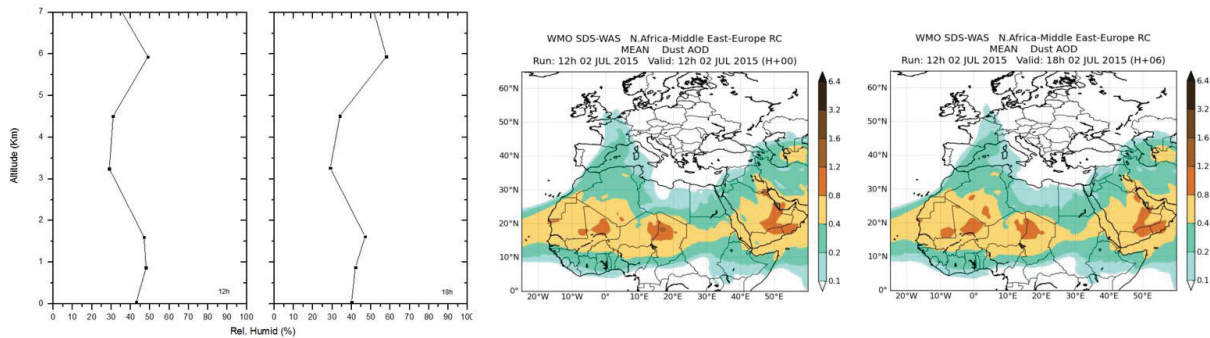


Figure 4.21 A gauche, profils verticaux de l'humidité relative ; à 12h (gauche) et 18h (droite), du 2 juillet 2015 issus des données des analyses menées par la division des sciences physiques de OAA/ESRL (NOAA/ESRL Physical Sciences Division, Boulder Colorado from their Web site at <http://www.esrl.noaa.gov/SD/>). A droite, l'épaisseur optique moyenne des particules désertiques le 2 juillet 2015 aux mêmes heures, extrait des données de l'organisation mondiale de météorologie (WMO, SDS-WAS, Northern Africa- Middle East –Europe (NA-ME-E) regional center, <https://sds-was.aemet.es>).

### 4.3.3 Observations systématiques lors de la présence de particules désertiques dans la troposphère de Lyon entre 2015 et 2017

La méthodologie décrite ci-dessus a été appliquée de façon systématique sur la période s'étendant de 2015 à 2017. A l'heure actuelle, nous avons analysé, de façon analogue à notre étude de cas, 10 journées où les observables du lidar  $\beta_s$  et  $\beta_d$  ont un comportement corrélatif semblable à celui observé lors de la journée du 2 juillet 2015, indiquant la formation de nouvelles particules in situ selon le mécanisme décrit dans (Dupart et al., 2012<sup>50</sup>). Le tableau 4-1 recense les journées d'observations où la présence de particules désertiques a été confirmée et ayant conduit à des analyses détaillées des coefficients de rétrodiffusion des particules atmosphériques. Nous avons également ajouté des événements analysés précédant et suivant les événements (dans les jours et les mois qui suivent) où il n'y a pas de particules désertiques dans la troposphère libre de Lyon. La colonne Dust recense les jours où la présence de particules désertiques a été confirmée. La colonne NPF indique si nos analyses ont conduit à des résultats semblables à ceux de notre étude de cas (ie l'observation de dust-NPF events).

Measurement days	NPF	Dust
2015 06 02	-	-
2015 06 03	-	-
2015 06 17	-	-
2015 06 18	-	-
2015 06 19	-	-
2015 06 25	-	-
2015 07 01	-	-
2015 07 02	+	+
2015 07 03	+	+
2015 07 06	-	-
2015 07 07	-	-
2015 07 16	-	-
2015 07 17	-	-
2015 07 21	-	-
2015 07 22	-	-
2015 08 31	+	+
2016 01 26	-	-
2016 01 27	-	-
2016 01 28	-	-
2016 01 29	-	-
2016 03 14	-	-
2016 03 15	-	-
2016 03 16	-	-
2017 01 24	-	-
2017 06 21	-	-
2017 06 22	-	-
2017 06 23	-	-
2017 06 24	-	-
2017 06 25	*	-
2017 06 26	*	-
2017 07 06	-	-
2017 07 07	+	+
2017 07 08	+	+
2017 07 09	+	+
2017 07 10	-	-
2017 08 28	+	+
2017 08 29	+	+
2017 08 30	+	+
2017 08 31	+	+

Tableau 4-1 Observations systématiques des journées où la présence de particules désertiques a été puis confirmée. La 1<sup>er</sup> colonne indique la date d'observation (AAAA MM DD), la 2<sup>ème</sup> si un événement NPF a été observé (+ : oui / - : non / \* : oui mais barres d'erreurs trop importantes pour conclure dû à la qualité des signaux). La dernière colonne indique si des particules désertiques sont présentes dans l'atmosphère (à partir des calculs de rétro trajectoires effectués par le NILU et des calculs de l'extinction des particules désertiques effectuées par satellite et simulations numériques par l'organisation mondiale de météorologie (WMO)).

## 4.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés à l'étude optique systématique de particules sphériques présentes dans l'atmosphère en utilisant notre méthodologie de partitionnement optique d'un mélange de particules contenues dans l'aérosol atmosphérique observé au moyen de notre instrument Lidar (UV, VIS) et résolu en polarisation. Ainsi nous montrons que la présence de ces particules sphériques est corrélée à celle de particules désertiques dans la troposphère libre au-dessus du campus universitaire de la Doua à Lyon, issues d'un transport à longue distance de masses d'air depuis la région du Sahara. Des études précédentes, présentées dans la première partie de ce chapitre, permettent d'associer la présence de ces particules sphériques au phénomène complexe de nucléation photocatalytique impliquant les particules désertiques.

Pour affiner notre analyse nous avons modélisé la réponse optique ( $\beta_{npf}$ ,  $BAE_{npf}$ ) attendue lors de la télédétection des produits d'un processus de nucléation photo catalytique nécessitant la présence de particules désertiques en s'appuyant sur des événements reconnus (Dupart et al., 2012<sup>50</sup>). Une simulation numérique a été réalisée permettant de discuter de la sensibilité de la rétrodiffusion optique (UV, VIS) résolue en polarisation au processus de nucléation de ce type: les coefficients de rétrodiffusion (UV, VIS) associés à plusieurs événements de nucléation de ce type réellement observés ont été simulés numériquement et l'influence de la taille des centres diffusants et de l'indice optique discutée. Ce travail sera prochainement soumis à publication.

En appliquant la méthodologie développée pour la télédétection d'événements de nucléation de ce type (David et al., 2014<sup>35</sup>), s'appuyant sur le partitionnement optique décrit au chapitre précédent, nous avons présenté en détail les résultats de nos observations dans la troposphère libre de Lyon le 2 juillet 2015, date à laquelle un épisode de particules désertiques en provenance du Sahara a été identifié. Les résultats obtenus ont été comparés aux observations précédant l'arrivée des particules désertiques originaires du Sahara dans la troposphère libre de Lyon et aux données obtenues de nuit en suivant la même démarche. Le comportement des quantités d'intérêt ( $\beta_s$ ,  $\beta_d$ ,  $BAE_s$ ) est distinct les jours où des particules désertiques sont présentes dans la troposphère libre de celui observé de nuit. On constate en effet, en présence du rayonnement solaire (de jour) et en présence de particules désertiques en troposphère un comportement anti-corrélé entre  $\beta_s$  et  $\beta_d$  spatialement et temporellement, dans l'UV comme dans le VIS. De nuit comme de jour, en l'absence de particules désertiques, ces quantités ne sont plus anti-corrélées. L'exposant d'Angstrom de rétrodiffusion des particules sphériques, qui dépend de la taille des centres diffusants et de leur indice de réfraction, semble manifester une plus grande variabilité aux altitudes où le processus de formation de nouvelles particules est observé.

Enfin, nous avons présenté le résultat de nos observations systématiques de l'atmosphère au-dessus de Lyon lors des épisodes d'arrivée de particules désertiques originaires du Sahara. Ainsi, le lidar (UV, VIS) résolu en polarisation nous a permis de suivre l'évolution spatio-temporelle des particules présentes dans l'atmosphère. L'application d'un partitionnement rigoureux entre les particules sphériques et non sphériques, à l'aide des mesures effectuées en laboratoire (Chapitre 2) et des simulations numériques (Chapitre 3), à deux longueurs d'onde nous ont ainsi permis, à partir de mesures sensibles et précises du Pi-Polarimètre (UV, VIS) implémenté dans l'instrument Lidar, d'identifier la formation de nouvelles particules et de leurs produits en présence de particules désertiques originaires du Sahara. Cette étude, basée sur des observations systématiques réalisées sur une durée de deux années, a ainsi permis de montrer que ce processus est récurrent dans l'atmosphère libre de Lyon et apporte de nouvelles informations sur le suivi spatio-temporel de ces particules sphériques, issues du processus de nucléation.





# Chapitre 5

## Conclusion et perspectives

Les particules minérales d'origine désertique contribuent au cycle global du carbone en fertilisant les écosystèmes pauvres en nutriments comme la surface de certains océans et la forêt Amazonienne (Bristow et al., 2010<sup>19</sup>). Les déserts sont ainsi les sources naturelles d'engrais qui permettent à la Terre d'être fertile. Ces particules désertiques sont de plus parmi les plus présentes dans l'atmosphère terrestre. Or, leur impact sur le bilan radiatif terrestre reste à quantifier en raison de leur grande diversité de taille, de forme et de composition chimique. Ces particules manifestent une grande complexité : en mouvement dans l'air ambiant, elles possèdent des propriétés semi-conductrices (à la base du processus photo-catalytique de nucléation, Dupart et al., 2012<sup>50</sup>) et leur morphologie complexe rend impossible la donnée d'une solution analytique aux équations de Maxwell. Plusieurs questions ont ainsi été soulevées au chapitre 1, paragraphe 1.4, consacré au questionnement de cette thèse. Ces questions sont relatives à l'interaction du rayonnement électromagnétique avec ces particules désertiques, laquelle reste à quantifier du fait de la complexité de ces particules, liée à leur nature diélectrique ou semi-conductrice et leur forme très irrégulière avec parfois même de la rugosité de surface. Mieux connaître cette interaction permet, sur le plan fondamental, de connaître les signatures spectrales et de polarisation de ces particules en étudiant la diffusion du rayonnement électromagnétique par ces particules désertiques. Il convient ici de rappeler qu'il n'existe pas de base de données pour les aérosols comme cela est le cas pour la spectroscopie moléculaire. De plus, si cette interaction est connue avec suffisamment de sensibilité et de précision, il devient possible d'étudier des processus complexes se produisant dans l'atmosphère comme la nucléation, dont certains ingrédients restent encore de nos jours à révéler. La connaissance de cette interaction est également impactante d'un point de vue applicatif : bien maîtrisée, elle peut permettre de réduire l'incertitude associée à l'évaluation de la concentration en masse des aérosols désertiques par télédétection lidar.

Ce travail de thèse tire parti de la sensibilité de l'interaction du rayonnement électromagnétique (UV, VIS) avec les particules désertiques en étudiant leur diffusion optique, en géométrie de rétrodiffusion, très utilisée en télédétection (Leon et al., 2009<sup>111</sup>, Miffre et al., 2011<sup>135</sup>, Vernier et al., 2011<sup>224</sup>). La thèse repose sur un Pi-polarimètre de laboratoire (UV, VIS) sensible et précis, permettant de traiter la rétrodiffusion des particules désertiques, évaluée au moyen d'expériences de laboratoire (chapitre 2) et d'observations lidar (UV, VIS) résolu en polarisation sensibles et précises (chapitres 3 et 4). Des simulations numériques sont utilisées de façon complémentaire à nos mesures (chapitres 2 et 3). Chaque chapitre aborde les propriétés spectrales et de polarisation des particules



désertiques et met l'accent sur certaines applications potentielles, comme pour l'évaluation de la concentration en masse des particules désertiques présentes dans des mélanges externes au sein de l'atmosphère (Chapitre 3) ou l'observation d'événements de formation de particules in situ (chapitre 4).

Au chapitre 2, nous présentons notre étude de polarimétrie en laboratoire d'un ensemble de particules désertiques en mouvement dans l'air. Nous avons décrit le polarimètre de laboratoire (UV, VIS) adressant la géométrie de rétrodiffusion avec précision ( $180.0 \pm 0.2^\circ$ ) et le montage expérimental permettant la génération de particules désertiques (ATD) en suspension dans l'air. Ce polarimètre de laboratoire nous permet d'évaluer le rapport des éléments de la matrice de rétrodiffusion des particules  $f_{22,p} = F_{22,p}/F_{11,p}$ . Nous avons validé notre méthodologie expérimentale sur des gouttelettes d'eau sphériques avec une très bonne précision ( $< 1\%$ ). Nous avons ensuite généré deux distributions de taille (SD a et b) de particules d'origines désertique nous permettant d'évaluer avec précision ( $< 2\%$ ) le rapport des coefficients de la matrice de rétrodiffusion de l'ATD :  $f_{22,d} = 0.456 \pm 0.002$  dans l'UV et  $f_{22,d} = 0.475 \pm 0.004$  dans le VIS pour la SD-a et  $f_{22,d} = 0.482 \pm 0.009$  dans l'UV et  $f_{22,d} = 0.533 \pm 0.010$  dans le VIS pour la SD-b. De plus, ces évaluations précises de la matrice de rétrodiffusion des particules désertiques ont permis de discuter de l'applicabilité du modèle mathématique des sphéroïdes, décrit par le code T-matrix, pour décrire la rétrodiffusion optique de ces particules dans la géométrie d'exacte rétrodiffusion. Nous avons conclu que le modèle sphéroïdal est en accord avec nos résultats expérimentaux pour des distributions de forme mettant en exergue les particules les plus éloignées de la symétrie sphérique (loi de puissance en  $n = 3$  ou  $n = 10$ ). Nous n'avons cependant pas pu reproduire la dépendance spectrale des coefficients de la matrice de diffusion pour une distribution de taille donnée avec le modèle mathématiques des sphéroïdes, et d'autres auteurs sont arrivés à la même conclusion pour d'autres angles de diffusion (Dubovik et al., 2006<sup>48</sup>, Zubko et al., 2013<sup>260</sup>). Par conséquent, notre contribution montre que cette affirmation s'applique également dans la direction d'exacte rétrodiffusion, au moins pour les distributions de taille considérées ici. Ces résultats expérimentaux représentent une première mondiale et ont été publiés dans la revue JQSRT (Miffre et al., 2016<sup>139</sup>).

Au chapitre 3, nous avons tiré parti de la sensibilité et de la précision de ce Pi-polarimètre (UV, VIS) pour s'intéresser à l'interaction du rayonnement (UV, VIS) avec ces particules désertiques directement dans l'atmosphère, où ces particules sont présentes après un long transport sous la forme de mélanges externes avec d'autres aérosols atmosphériques. Nous avons étudié les profils verticaux des coefficients de rétrodiffusion des particules désertiques et évalué leur concentration massique. Cela nous a permis de discuter de l'incertitude sur l'évaluation de la concentration massique lié à la taille et la forme retenues pour la modélisation des particules désertiques nécessaire au partitionnement optique des mélanges externes à deux/trois composants. Dans un premier temps, nous avons présenté le

problème de l'inversion de données atmosphériques, notamment dans le cas d'un mélange externe d'aérosols. La méthodologie optique permettant d'isoler la contribution des particules désertiques d'un mélange externe à deux/trois composants a été décrite, ce qui a notamment permis d'aborder la précision et la sensibilité de notre lidar (UV, VIS) résolu en polarisation. Nous présentons ensuite les résultats des simulations numériques nécessaires à l'obtention des paramètres d'entrée  $\{\delta_d, BAE_d, S_d\}$  nécessaires au partitionnement optique. Enfin, les résultats des simulations numériques pour les différents modèles de formes retenus (sphéroïdes, particules de surface lisse, rugueuse) sont appliqués à deux études de cas en atmosphère réelle où les particules désertiques sont présentes dans des mélanges externes. Le lidar (UV, VIS) résolu en polarisation est utilisé pour traiter le cas d'un mélange externe à deux composants de particules désertiques et de particules considérés sphériques, puis au cas plus complexe d'un mélange à trois composants. Un résultat majeur est que, si les profils verticaux dépendent fortement de la distribution de taille des particules désertiques choisies, le modèle de forme attribué s'avère également important. On a notamment constaté que lorsque l'on passe des sphéroïdes aux stéréo particules lisses, le coefficient de rétrodiffusion des particules désertiques peut varier jusqu'à environ 60 % dans notre étude de cas, correspondant à des variations du coefficient de rétrodiffusion des particules désertiques aussi grand que  $2 \text{ Mm}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$ . De plus, lorsqu'on utilise des stéréo particules au lieu de sphéroïdes, le facteur de conversion d'extinction massique peut varier jusqu'à environ 30 %. Les variations de la concentration massique des particules désertiques dû au modèle de forme retenu pour l'analyse peuvent ainsi être aussi importantes qu'un facteur deux. Ces résultats ont été publiés dans la revue Atmospheric Research (Mehri et al., 2018<sup>128</sup>).

Au chapitre 4, nous avons à nouveau utilisé l'interaction du rayonnement électromagnétique avec les particules désertiques et plus particulièrement la rétrodiffusion (UV, VIS) résolue en polarisation pour s'intéresser à la sensibilité de cette interaction aux événements de nucléation en présence de particules désertiques dans la troposphère libre de Lyon. Nous avons ainsi modélisé les quantités associées à la rétrodiffusion optique ( $\beta_{\text{npf}}, BAE_{\text{npf}}$ ) attendues lors de la télédétection des produits issus de la nucléation en présence de particules désertiques, ceci en s'appuyant sur des événements reconnus (Dupart et al., 2012<sup>50</sup>), mettant ainsi en exergue la sensibilité à la taille des centres diffusants et l'indice de réfraction. Après avoir détaillé notre méthodologie d'observation sur un cas d'étude, le 2 juillet 2015, les résultats de cette journée ont été comparés aux observations précédant l'arrivée des particules désertiques originaire du Sahara dans la troposphère libre de Lyon et aux données de nuit. Le comportement des observables ( $\beta_s, \beta_d, BAE_s$ ) est distinct les jours où des particules désertiques sont présentes dans la troposphère libre de Lyon. En effet, on constate un comportement anti-corrélé de  $\beta_s$  et  $\beta_d$  spatialement et temporellement en présence du rayonnement solaire lors de la présence de particules désertiques dans les couches de la troposphère, que ce soit dans l'UV ou le VIS, qui diffère de celui observé de nuit comme de jour en l'absence de particules désertiques. Enfin, nous avons présenté le résultat de nos observations systématiques de l'atmosphère au-dessus de Lyon lors des

épisodes d'arrivée de particules désertiques originaires du Sahara. Nous avons ainsi étendu le cas d'étude réalisé par l'équipe avant cette thèse (David et al., 2014<sup>35</sup>) en multipliant les observations lors de la présence de particules désertiques et en étendant l'analyse au domaine spectral visible ce qui permet de discuter de la dépendance spectrale des coefficients de rétrodiffusion. La sensibilité et la précision du Pi-Polarimètre (UV, VIS) ont ainsi été utilisées pour révéler le processus photo-catalytique de nucléation en présence de particules désertiques via des observations systématiques de ce processus, réalisées sur une durée de deux années.

Ces travaux donnent lieu à de nombreuses perspectives. Nous présentons ici quelques perspectives pour les trois axes d'étude de cette thèse :

- En laboratoire, d'autres distributions de taille peuvent être générées afin d'évaluer plus précisément la dépendance des coefficients de la matrice de diffusion au paramètre de taille. Etudier simultanément la réponse optique des particules désertiques à trois longueurs d'onde (355, 532 et 1064 nm) serait également intéressant car de nombreux lidars sont équipés de deux ou trois de ces longueurs d'onde. De plus, contraindre la dépendance spectrale à l'aide de trois longueurs d'onde pourrait permettre de mieux comprendre le fait que le modèle sphéroïdal peut ne pas reproduire la dépendance spectrale des coefficients de la matrice de diffusion.
- Pour l'évaluation de la concentration massique, l'étude de la dépendance spectrale de l'indice de réfraction complexe peut être prise en compte afin d'affiner les modélisations préalables au partitionnement optique. Dans le même ordre d'idée, la prise en compte de la variabilité de l'indice de réfraction complexe d'une particule à l'autre (CAL, DOL, AGG, SIL) pourrait permettre de mieux modéliser la complexité des particules désertiques. On peut également citer la prise en compte de paramètres de taille plus important que 20 qui permettrait de modéliser des distributions de taille plus proche de celle auxquelles on peut s'attendre proche des régions sources afin de mener des observations sur le terrain au niveau de ces régions.
- L'ensemble des données analysées dans le cadre de nos observations systématiques des conséquences associées au processus de nucléation en présence de particules désertiques présente un intérêt dans le cadre du projet COSLID (pour Cosmic Lidar), qui est un projet de recherche réalisé à l'ILM en coopération avec l'équipe de J. Marteau de l'IPNL. Le but de ce projet est de confirmer ou d'infirmer la corrélation éventuelle GCR-CN entre la formation de nouvelles particules dans l'atmosphère (CN : cloud nuclei) et le rayonnement cosmique GCR (pour Galactic Cosmic Rays). Ce projet de recherche a été soutenu par la Fédération de Recherche André-Marie Ampère (FRAMA) qui impulse la politique de recherche en physique à Lyon, ce qui a

permis d'effectuer des premiers essais d'observations simultanées de la télédétection lidar et d'événements GCR, mesuré en installant un trajectographe à muons à l'ILM où est réalisée l'expérimentation lidar. Les premiers signaux obtenus avec le trajectographe à muons sont toutefois difficiles à analyser car très bruités. Une hypothèse est que ce bruit est précisément lié à la présence du laser utilisé pour l'acquisition lidar. Des observations dans deux bâtiments différents (ILM, IPNL) sont prévues, même si elles demandent un travail d'analyse des volumes sondés plus complexe à réaliser.

A plus court terme, ce travail montre également le potentiel de notre démarche basée sur le Pi-polarimètre et l'algorithme de partitionnement optique de l'aérosol est applicable à l'observation des processus atmosphériques impliquant le phénomène de photo-catalyse sur les particules solides présentes dans l'atmosphère, telles que les particules volcaniques et les particules issues de l'érosion des sols. Dans le contexte climatique à venir, ces processus seront potentiellement prépondérants dans le processus fondamental de condensation des phases gazeuses présentes dans l'atmosphère. On peut penser que la sensibilité et la précision de l'interaction du rayonnement avec ces particules apporte, dans ce contexte, des éclairages intéressants.



# Bibliographie

1. Abou Chacra M. : Télédétection résolue en polarisation dans l'ultraviolet des particules atmosphériques; thèse, Université Claude Bernard Lyon1, 2009.
2. Aitken, J. A. (1897). On some nuclei of cloudy condensation. Transactions of the Royal Society, XXXIX.
3. Alfaro SC, L. Gomes : Modeling mineral aerosol production by wind erosion: emission intensities and aerosol size distributions in source areas. *J Geophys Res*,106:18075–84, 2001.
4. Almeida J., S. Schobesberger, A. Kürten, I. K. Ortega, O. Kupiainen-Määttä, A. P. Praplan, A. Adamov, A. Amorim, F. Bianchi, M. Breitenlechner, A. David, J. Dommen, N. M. Donahue, A. Downard, E. Dunne, J. Duplissy, S. Ehrhart, R. C. Flagan, A. Franchin, R. Guida, J. Hakala, A. Hansel, M. Heinritzi, H. Henschel, T. Jokinen, H. Junninen, M. Kajos, J. Kangasluoma, H. Keskinen, A. Kupc, T. Kurtén, A. N. Kvashin, A. Laaksonen, K. Lehtipalo, M. Leiminger, J. Leppä, V. Loukonen, V. Makhmutov, S. Mathot, M. J. McGrath, T. Nieminen, T. Olenius, A. Onnela, T. Petäjä, F. Riccobono, I. Riipinen, M. Rissanen, L. Rondo, T. Ruuskanen, F. D. Santos, N. Sarnela, S. Schallhart, R. Schnitzhofer, J. H. Seinfeld, M. Simon, M. Sipilä, Y. Stozhkov, F., Stratmann, A. Tomé, J. Tröstl, G. Tsagkogeorgas, P. Vaattovaara, Y. Viisanen, A. Virtanen, A. Vrtala, P. E. Wagner, E. Weingartner, H. Wex, C. Williamson, D. Wimmer, P. Ye, T. Yli-Juuti, K. S. Carslaw, M. Kulmala, J. Curtius, U. Baltensperger, D. R. Worsnop, H. Vehkamäki, and J. Kirkby, "Molecular understanding of sulphuric acid-amine particle nucleation in the atmosphere," *Nature*, 502(7471), 359–363, 2013.
5. Alvarez J.M., M. A. Vaughan, C. A. Hostelier, W. H. Hunt and D. M. Winker: Calibration technique for polarization-sensitive Lidars, *J. Atm. Ocean. Tech.*, 23, 683-699, 2006.
6. Anselmo, C., Welschinger, JY, Cariou, JP, Miffre, A., and Rairoux P., "Gas concentration measurement by optical similitude absorption spectroscopy: methodology and experimental demonstration," *Opt. Express* 24, 12588-12599 (2016)
7. Ansmann, A., A. Petzold, K. Kandler, I. Tegen, M. Wendisch, D. Müller, B. Weinzierl, T. Müller and J. Heintzenberg: Saharan Mineral Dust Experiments SAMUM–1 and SAMUM–2: what have we learned ?, *Tellus*, 63B, 403–429, 2011.
8. Ansmann A., P. Seifert, M. Tesche and U. Wandinger: Profiling of fine and coarse particle mass: case studies of Saharan dust and Eyjafjallajökull/Grimsvötn volcanic plumes, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 9399–9415, 2012.
9. Balkanski, Y. and Schulz, M. and Claquin, T. and Guibert, S.: Reevaluation of Mineral aerosol radiative forcings suggests a better agreement with satellite and AERONET data, *Atm. Chem. Phys.*, 7, 1, 81-95, 2007
10. Barja B. and J. C. Antuña: The effect of optically thin cirrus clouds on solar radiation in Camagüey, Cuba, *Atmos. Chem. Phys.*, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 8625–8634, 2011, 8625–8634, 2011.
11. Baumgardner D., R. Newton and N. Boyouk,: The Aerosol Particle Spectrometer with Polarization Detection (APSPD) Part I: laboratory studies, *Atmos. Chem. Phys. Special Issue*, in preparation, 2012.
12. Behrendt A. and T. Nakamura: 'Calculation of the calibration constant of polarization lidar and its dependency on atmospheric temperature", *Opt. Exp.*, 10, 805-817, 2002.
13. Bianchi, F. et al. New particle formation in the free troposphere: a question of chemistry and timing. *Science* **352**, 2016.
14. Bohren C. F. and D. R. Huffman: Absorption and scattering of light by small particles, Wiley New York, 1983.
15. Boucher, O., D. Randall, P. Artaxo, C. Bretherton, G. Feingold, P. Forster, V.-M. Kerminen, Y. Kondo, H. Liao, U. Lohmann, P. Rasch, S.K. Satheesh, S. Sherwood, B. Stevens and X.Y. Zhang, 2013: Clouds and Aerosols. In: *Climate Change : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [Stocker, T.F., D.

- Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P.M. Midgley (eds.)). Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 2013
16. Boulon, J, K. Sellegri, H. Venzac, D. Picard, E. Weingartner, G. Wehrle, M. Collaud Coen, R. Bütikofer, E. Flückiger, U. Baltensperger, P. Laj, New particle formation and ultrafine charged aerosol climatology at a high altitude site in the Alps (Jungfrauoch, 3580 m a.s.l., Switzerland). *Atmos. Chem. Phys.*10, 9333–9349, 2010.
  17. Boulon, J, K. Sellegri, M. Hervo, D. Picard, J.-M. Pichon, P. Fréville, P. Laj, Investigation of nucleation events vertical extent: A long term study at two different altitude sites. *Atmos. Chem. Phys.*11, 5625–5639, 2011.
  18. Bourcier, L., Sellegri, K., Chausse, P., Pichon, J. M., and Laj, P.: Seasonal variation of water-soluble inorganic components in aerosol size-segregated at the puy de Dome station (1465 m a.s.l.), France, *J. Atm. Chem.*, 69, 47–66, 2011.
  19. Bristow, C. S., K. A. Hudson - Edwards, and A. Chappell : Fertilizing the Amazon and equatorial Atlantic with West African dust, *Geophys. Res. Lett.*, 37, L14807, 2010.
  20. Bucholtz A.: Rayleigh-scattering calculations for the terrestrial atmosphere, *Appl. Opt.* 34, 2765-2773, 1995.
  21. Bukowiecki, N, E. Weingartner, M. Gysel, M. C. Coen, P. Zieger, E. Herrmann, M. Steinbacher, H. W. Gäggeler, U. Baltensperger, A review of more than 20 years of aerosol observation at the high altitude research station Jungfrauoch, Switzerland (3580 m asl). *Aerosol Air Qual. Res.*16, 764–788, 2016.
  22. Burlakov V. D., S. I. Dolgii, , A. P. Makeev, , A. V.Nevzorov, , O. A. Romanovskii and O. V. Kharchenko: A differential-absorption lidar for ozone sensing in the upper atmosphere-lower stratosphere, *Instrum. Exp. Tech.*, 53, 886-889, 2010.
  23. Cairo F., G. Di Donfrancesco, A. Adriani, L. Pulvirenti and F. Fierli: Comparison of various depolarization parameters measured by lidar, *Appl. Optics*, 38, 4425–4432, 1999.
  24. Chylek P. and J. Wong: Effect of absorbing aerosols on global radiation budget, *Geophys. Res. Lett.*, 22, 929–931, 1995.
  25. Clarke, A. D., Kapustin, V. N., Eisele, F. L., Weber, R. J., & McMurry, P. H. (1999a). Particle production near marine clouds: Sulfuric acid and predictions from classical binary nucleation. *Geophysical Research Letters*, 26, 2425–2428
  26. Crumeyrolle, S. ; Manninen, H.E. ; Sellegri, K. ; Roberts, G. ; Gomes, L. ; Kulmala, M. ; Weigel, R. ; Laj, P. ; Schwarzenböck, A. : New particle formation events measured on board the ATR-42 aircraft during the EUCAARI campaign *Atmos. Chem. Phys.* Vol. 10 , No. 14 , p. 6721-6735, 2010
  27. Curtis DB, Meland B, Aycibin M, Arnold NP, Grassian VH, Young MA, et al. A laboratory investigation of light scattering from representative components of mineral dust aerosol at a wavelength of 550 nm. *J Geophys Res*;113:D08210, 2008.
  28. Curtius J.: Nucleation of atmospheric particles, *EPI Web of Conferences* 1 199-209, 2009.
  29. Cziczo D.J and J.P. Abbatt: Infrared Observations of the Response of NaCl, MgCl<sub>2</sub>, NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub>, and NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> Aerosols to Changes in Relative Humidity from 298 to 238 K, *J. Phys. Chem. A*, 104, 2038-2047, 2000.
  30. Dada, L., Paasonen, P., Nieminen, T., Buenrostro Mazon, S., Kontkanen, J., PerÄäkyläÄä, O., Lehtipalo, K., Hussein, T., PetÄäjäÄä, T., Kerminen, V.-M., BÄäck, J. and Kulmala, M : Long-term analysis of clear-sky new particle formation events and nonevents in HyytiÄäläÄä. *Atmos. Chem. Phys.*, 17-10, 6227-6241, 2017.
  31. David G., A. Miffre, B. Thomas and P. Rairoux: Sensitive and accurate dual-wavelength UV-VIS polarization detector for optical remote sensing of tropospheric aerosols, *Appl. Phys. B*, 108, 197–216, 2012.
  32. David G., B. Thomas, T. Nousiainen, A. Miffre and P. Rairoux: Retrieving simulated volcanic, desert dust, and sea-salt particle properties from two / three-component particle mixtures using UV-VIS polarization Lidar and T-matrix, *Atmos. Chem Phys.*, 13, 6757-6776, 2013a.

33. David G., B. Thomas, E. Coillet, A. Miffre and P. Rairoux: Polarization-resolved exact light backscattering by an ensemble of particles in air, *Opt. Express*, 21, 16, 18624-18639, 2013b.
34. David G. : Polarization resolved backscattering from nanoparticles in the atmosphere : field and laboratory experiments, Université Claude Bernard Lyon1, 2013
35. David G., B. Thomas, Y. Dupart, B. D'Anna, C. George, A. Miffre and P. Rairoux : UV polarization lidar for remote sensing new particles formation in the atmosphere, *Opt.Exp*, 22, 1009-1022, 2014.
36. Debye, P. : Der Lichtdruck auf Kugeln von beliebigem Material. *Ann. Phys.*, 335: 57-136, 1909.
37. Del Guasta M., M. Morandi, L. Stefanutti, B. Stein, J. Kolenda, P. Rairoux, J. P. Wolf, R. Matthey and E. Kyro: Multiwavelength lidar observation of thin cirrus at the base of the Pinatubo stratospheric layer during the EASOE Campaign, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 1339-1342, 1994.
38. Del Guasta M. and E. Valla: In-cloud variability of LIDAR depolarization of polar and midlatitude cirrus, *Geophys. Res. Lett.*, 30, No. 11, 1578, 2003.
39. Del Guasta M., E. Vallar, O. Riviere, F. Castagnoli, V. Venturi and M. Morandi: Use of polarimetric lidar for the study of oriented ice plates in clouds, *Appl Opt.*, 45, 4878-4887, 2006.
40. Devore JR. Refractive indices of rutile and sphalerite. *J Opt Soc Am*;41:416–9, 1951.
41. Di Biagio, H. Boucher, S. Caquineau, S. Chevaillier, J. Cuesta, and P. Formenti : Variability of the infrared complex refractive index of African mineral dust: experimental estimation and implications for radiative transfer and satellite remote sensing. *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 11093–11116, 2014
42. Di Girolamo P., D. Summa, R. Bhawar, T. Di Iorio, M. Cacciani, I. Veselovskii, O. Dubovik, and A. Kolgotin: Raman lidar observations of a Saharan dust outbreak event: characterization of the dust optical properties and determination of particle size and microphysical parameters, *Atmos. Env.* 50, 66-78, 2012.
43. Dias, A., Ehrhart, S., Vogel, A., Williamson, C., Almeida, J., Kirkby, J., Mathot, S., Mumford, S., Onnela, A. : Temperature uniformity in the CERN CLOUD chamber. *Atmos. Meas. Tech.*, 10-12, 5075-7088, 2017.
44. Dinar E., A. Abo Riziq, C. Spindler, C. Erlick, G. Kiss and Y. Rudich: The complex refractive index of atmospheric and model humic-like substance (HULIS) retrieved by cavity ring down aerosol spectrometer, *Faraday Discuss.*, 137, 279-295, 2008.
45. Dockery D. W. and C. A. Pope: Acute respiratory effects of particulate air pollution. *Annual review of public health*, 15, 107-132, 1994.
46. Draine B.T. and P.J. Flatau: Discrete-dipole approximation for scattering calculations, *J Opt Soc Am* 11, 1491–9, 1994.
47. Dubovik, O., B. Holben, T. Eck, A. Smirnov, Y. Kaufman, M. King, D. Tanre, and I. Slutsker : Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations, *J. Atmos. Sci.*, 59, 590–608, 2002.
48. Dubovik O., A. Sinyuk, , T. Lapyonok, , B. N. Holben, , M. I. Mishchenko, P. Yang, , T. F. Eck, H. Volten, O. Muñoz, B. Veihelmann, W. J. van der Zande, J.-F. Leon, M. Sorokin, and I. Slutsker: Application of spheroid models to account for aerosol particle nonsphericity in remote sensing of desert dust, *J. Geophys. Res.*, 111, D11208, 2006.
49. Dunne EM., Gordon H, Kurten A., Almeida J., Duplissy J., Williamson C., Ortega I., Pringle K., Adamov A., Baltensperger U., Barmet P., Benduhn F., Bianchi F., Breitenlechner M., Clarke A., Curtius J. Dommen J., Donahue N. Ehrhart S., Flagan R., Franchin A., Guida R., Hakala J., Hansel A., Heinritzi M., Jokinen T., Kangasluoma J., Kulmala M., Kupc A., Lawler M., Lehtipalo K., Makhmutov V., Mann G., Mathot S., Merikanto J., Miettinen P., Nenes A., Onnela A., Rap A., Reddington C., Riccobono F., Richards N., Rissanen M., Rondo L., Sarnela N., Schobersberger S., Sengupta K, Simon M., Sipila M., Smith J., Steozkhov Y., Toma A., Trastl J., Wagner P., Wimmer D., Winkler P., Worsnop D., Carslaw K. : Global atmospheric particle formation from CERN CLOUD measurements, *Science*, 1119-1124, 354, 6316, 2016.
50. Dupart Y., S.M. King, B. Nekat, A. Nowak, A. Wiedensohler, H. Herrmann, G. David, B. Thomas, A. Miffre, P. Rairoux, B. D'Anna, and C. George: Mineral dust photochemistry induces nucleation events



in the presence of SO<sub>2</sub>, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, [www.pnas.org/cgi/doi/10.1073/pnas.1212297109](http://www.pnas.org/cgi/doi/10.1073/pnas.1212297109), 2012.

51. Ehn, M., J. A. Thornton, E. Kleist, M. Sipilä, H. Junninen, I. Pullinen, M. Springer, F. Rubach, R. Tillmann, B. Lee, F. Lopez-Hilfiker, S. Andres, I. H. Acir, M. Rissanen, T. Jokinen, S. Schobesberger, J. Kangasluoma, J. Kontkanen, T. Nieminen, T. Kurtén, L. B. Nielsen, S. Jørgensen, H. G. Kjaergaard, M. Canagaratna, M. D. Maso, T. Berndt, T. Petäjä, A. Wahner, V. M. Kerminen, M. Kulmala, D. R. Worsnop, J. Wildt, and T. F. Mentel: A large source of low-volatility secondary organic aerosol, *Nature* 506(7489), 476–479, 2014.
52. Engelstaedter S., I. Tegen and R. Washington: North African dust emissions and transport, *Earth-Science Reviews*, 79, 73-100, 2006.
53. Fann, N. and D. Risley: The public health context for PM<sub>2.5</sub> and ozone air quality trends, *Air Qual. Atmos. Health*, 6, 1-11, 2013.
54. Finlayson-Pitts, B. J., J. N. Pitts Jr: Chemistry of the upper and lower atmosphere: theory, experiments, and applications, Academic Press., San Diego, 2000.
55. Flamant C., Pelon J., Chazette P., Trouillet V., Quinn P., Leon J-F. et al.. Airborne lidar measurements of aerosol spatial distribution and optical properties over the Atlantic Ocean during a European pollution outbreak of ACE-2. *Tellus B, Co-Action Publishing/Blackwell*, 52 (2), pp.662-677, 2000
56. Frege, C. and Ortega, I. K. and Rissanen, M. P. and Praplan, A. P. and Steiner, G. and Heinritzi, M. and Ahonen, L. and Amorim, A. and Bernhammer, A.-K. and Bianchi, F. and Brilke, S. and Breitenlechner, M. and Dada, L. and Dias, A. and Duplissy, J. and Ehrhart, S. and El-Haddad, I. and Fischer, L. and Fuchs, C. and Garmash, O. and Gonin, M. and Hansel, A. and Hoyle, C. R. and Jokinen, T. and Junninen, H. and Kirkby, J. and Kürten, A. and Lehtipalo, K. and Leiminger, M. and Mauldin, R. L. and Molteni, U. and Nichman, L. and Petäjä, T. and Sarnela, N. and Schobesberger, S. and Simon, M. and Sipilä, M. and Stolzenburg, D. and Tomé, A. and Vogel, A. L. and Wagner, A. C. and Wagner, R. and Xiao, M. and Yan, C. and Ye, P. and Curtius, J. and Donahue, N. M. and Flagan, R. C. and Kulmala, M. and Worsnop, D. R. and Winkler, P. M. and Dommen, J. and Baltensperger, U., *Atm. Chem. Phys.*, 18, 65-79, 2018
57. Freudenthaler V., M. Esselborn, M. Wiegner, B. Heese, M. Tesche, A. Ansmann, D. Müller, D. Althausen, M. Wirth, A. Fix, G. Ehret, P. Knippertz, C. Toledano, J. Gasteiger, M. Garhammer and M. Seefeldner: Depolarization ratio profiling at several wavelengths in pure Saharan dust during Samum 2006, *Tellus*, 61B, 165–179, 2009.
58. Gasteiger, J., Wiegner, M., Groß, S., Freudenthaler, V., Toledano, C., Tesche, M., Kandler, K.. Modelling lidar-relevant optical properties of complex mineral dust aerosols. *Tellus B* 63, 2011
59. Glen A. and S.D. Brooks: A new method for measuring optical scattering properties of atmospherically relevant dusts using the Cloud Aerosol Spectrometer Polarization (CASPOL) instrument, *Atmos. Chem. Phys.* 13, 1345-1356, 2013.
60. Gimmetstad G.: Reexamination of depolarization in lidar measurements, *Appl. Opt.*, 47, 3795-3802, 2008.
61. Ghosh G. : Dispersion-equation coefficients for the refractive index and birefringence of calcite and quartz crystals, *Opt. Commun.*, 163, 95-102, 1999.
62. Ghosh N., M.F.G. Wood, I.A. Vitkin: Polarimetry in turbid, birefringent, optically active media: A Monte Carlo study of Mueller matrix decomposition in the backscattering geometry *J. Appl. Phys.* 105, 102023, 2009.
63. Gross, S. and Esselborn, M. and Weinzierl, B. and Wirth, M. and Fix, A. and Petzold, A.: Aerosol classification by airborne high spectral resolution lidar observations, *Atm. Chem. Phys.*, 13, 5, 2487-2013, 2013.
64. Hallar, A. G. , D. H. Lowenthal, G. Chirokova, R. D. Borys, C. Wiedinmyer, Persistent daily new particle formation at a mountain-top location. *Atmos. Environ.* 45, 4111–4115, 2011
65. Hallquist M., J. C. Wenger, U. Baltensperger, Y. Rudich, D. Simpson, M. Claeys, J. Dommen, N. M. Donahue, C. George, A. H. Goldstein, J. F. Hamilton, H. Herrmann, T. Hoffmann, Y. Iinuma, M. Jang, M. E. Jenkin, J. L. Jimenez, A. Kiendler-Scharr, W. Maenhaut, G. McFiggans, Th. F. Mentel, A. Monod, A. S. H. Prévôt, J. H. Seinfeld, J. D. Surratt, R. Szmigielski, and J. Wildt: The formation,

- properties and impact of secondary organic aerosol: current and emerging issues, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5155–5236, 2009.
66. Hayman M., S. Spuler, B. Morley and J. VanAndel: Polarization lidar operation for measuring backscatter phase matrices of oriented scatterers, *Opt. Exp.*, 20, 29553-29567, 2012.
  67. Haywood J.M. and O. Boucher: Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: A review, *Rev. Geophys.*, 38, 513–543, 2000.
  68. Herich H., T. Tritscher, A. Wiacek, M. Gysel, E. Weingartner, U. Lohmann, U. Baltensperger and D.J. Cziczo: Water uptake of clay and desert dust aerosol particles at sub- and supersaturated water vapor conditions, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 11, 7804–7809, 2009.
  69. Hess, Michael & Koepke, Peter & Schult, I.. Optical properties of Aerosols and Clouds: The Software Package OPAC. *Bulletin of the American Meteorological Society*. 79. 831-844. 10.1175/1520-0477(1998)079<0831:OPOAAC>2.0.CO;2, 1998.
  70. Hioki, S. and Yang, P. and Baum, B. A. and Platnick, S. and Meyer, K. G. and King, M. D. and Riedi, J.: Degree of ice particle surface roughness inferred from polarimetric observations, *Atm.Chem.Phys.*, 16-7545, 2016
  71. Hovenier J.W., H. Volten, O. Muñoz, W.J. van der Zande and L.B.F.M. Waters: Laboratory studies of scattering matrices for randomly oriented particles: potentials, problems and perspectives, *J. Quant. Spec. Rad. Transf.* 79-80, 741-755, 2003.
  72. Hovenier J.W, Guirado D. : Zero slopes of the scattering function and scattering matrix for strict forward and backward scattering by mirror symmetric collections of randomly oriented particles , *J. Quant. Spec. Rad. Transf.* 133, 596-602,2014.
  73. Hummel, J. R., E. P. Shettle and D. R. Longtin: A New Background Stratospheric Aerosol Model for Use in Atmospheric Radiation Models, AFGL-TR-88-0166, Air Force Geophysics Laboratory, Hanscom AFB, MA, 1988.
  74. Hussein, T. et al. : Time span and spatial scale of regional new particle formation events over Finland and Southern Sweden. *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 4699–4716, 2009.
  75. Imhof, D & Weingartner, Ernest & Vogt, Ulrich & Dreiseidler, A & Rosenbohm, Elisa & Scheer, Volker & Vogt, R & Nielsen, Ole & Kurtenbach, Ralf & Corsmeier, U & Kohler, Martin & Baltensperger, Urs. : Vertical distribution of aerosol particles and NO<sub>x</sub> close to a motorway. *Atmospheric Environment*. 39. 5710-5721, 2005
  76. IPCC: Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Stocker, T.F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P.M. Midgley (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 1535 pp, 2013
  77. Jacobson, M. Z.: Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols, *Nature*, 409, 695-697, 2001.
  78. Järvinen E., O. Kempainen, T. Nousiainen, T. Kociok, O. Möhler, T. Leisner, M. Schnaiter : Laboratory investigations of mineral dust near-backscattering depolarization ratios, *J. Quant. Spec. Rad. Transf.*, 178, 192-208, 2016
  79. Kaaden, N., A. Massling, A. Schladitz, T. Müller, K. Kandler, L. Schütz, B. Weinzierl, A. Petzold, M. Tesche, S. Leinert, C. Deutscher, M. Ebert, S. Weinbruch, and A. Wiedensohler: 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, 2009.
  80. Kacenelenbogen, M., Vaughan, M. A., Redemann, J., Hoff, R. M., Rogers, R. R., Ferrare, R. A., Russell, P. B., Hostetler, C. A., Hair, J. W., and Holben, B. N.: An accuracy assessment of the CALIOP/CALIPSO version 2/version 3 daytime aerosol extinction product based on a detailed multi-sensor, multi-platform case study, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 3981-4000, <https://doi.org/10.5194/acp-11-3981-2011>, 2011.

81. Kahnert M., T. Nousiainen and B. Veihelmann: Spherical and spheroidal model particles as an error source in aerosol climate forcing and radiance computations: a case study for feldspar aerosols, *J Geophys Res*, 110:D18S13, 2005.
82. Kahnert M., T. Nousiainen, H. Lindqvist, and M. Ebert: Optical properties of light absorbing carbon aggregates mixed with sulfate: assessment of different model geometries for climate forcing calculations, *Opt. Express*, 20, 9, 10042-10058, 2012.
83. Kahnert M.: The T-matrix code Tsym for homogeneous dielectric particles with finite symmetries. *J. Quant. Spec. Rad. Transf.*, 123, 62–78, 2013.
84. Kahnert M., T. Nousiainen, and H. Lindqvist: Models for integrated and differential scattering optical properties of encapsulated light absorbing carbon aggregates, *Opt. Express*, 21, 7974-7993, 2013.
85. Kahnert M, T. Nousiainen, H. Lindqvist . Review: model particles in atmospheric optics. *J Quant Spectrosc Radiat Transf*, 146: 41–58, 2014.
86. Kahnert M : Modelling radiometric properties of inhomogeneous mineral dust particles : Applicability and limitations of effective medium theories. *J Quant Spectrosc Radiat Transf*, 152: 16–27, 2015.
87. Kandler K., K. Lieke, N. Benker, C. Emmel, M. Küpper, D. Müller-Ebert, M. Ebert, D. Scheuvs, A. Schladitz, L. Schütz, and S. Weinbruch: Electron microscopy of particles collected at Praia, Cape Verde, during the Saharan Mineral Dust Experiment: particle chemistry, shape, mixing state and complex refractive index, *Tellus 63B*, 475–496, 2011.
88. Kasparian J., E. Frejafon., P. Rambaldi, J. Yu, B. Vezin, J.P. Wolf: Characterization of urban aerosols using SEM-microscopy, X-ray-analysis and Lidar measurement. *Atmos. Environ.* 32 (17), 2957-2967, 1998.
89. Katanoda K., T. Sobue, H. Satoh, K. Tajima, T. Suzuki, H. Nakatsuka, T. Takezaki, T. Nakayama, H. Nitta, K. Tanabe and S. Tominaga: An association between long-term exposure to ambient air pollution and mortality from lung cancer and respiratory diseases in Japan, *J Epidemiol.*, 21, 132-43, 2011.
90. Kavouras, I. G., Mihalopoulos, N., & Stephanou, E. G. : Formation of atmospheric particles from organic acids produced by forests. *Nature*, 395, 683–686, 1998.
91. Keil, A., & Wendisch, M. : Bursts of Aitken mode and ultrafine particles observed at the top of continental boundary layer clouds. *Journal of Aerosol Science*, 32, 649–660, 2001.
92. Kemppinen, O., Nousiainen, T., Lindqvist , H.: The impact of surface roughness on scattering by realistically shaped wavelength-scale dust particles. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* 150, 55 –67, 2015.
93. Keskinen H, Kortelainen AK, Jaatinen A, et al. Increased hygroscopy of Arizona Test Dust seeds by secondary organic aerosol coating from  $\alpha$ -pinene ozonolysis. *Boreal Environ Res.*;19:182–90, 2014.
94. Kirkby J. et al.: Role of sulphuric acid, ammonia and galactic cosmic rays in atmospheric aerosol nucleation, *Nature*, 476, 429-433, 2011.
95. Kirkby, J. et al. : Ion-induced nucleation of pure biogenic particles, *Nature*, 533, 521, 2016.
96. Khalizov A. F., H. Xue, L. Wang, , J. Zheng and R. Zhang,: Enhanced light absorption and scattering by carbon soot aerosol internally mixed with sulfuric acid, *J. Phys. Chem. A*, 113, 1066-1074, 2009.
97. Klein H. , S. Nickovic, W. Haunold, U. Bundke, B. Nillius, M. Ebert, S. Weinbruch, L. Schuetz, Z. Levin, L. A. Barrie and H. Bingemer: Saharan dust and ice nuclei over central Europe, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 10211-10221, 2010.
98. Klett J.D.: Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratios, *Appl. Opt.*, 24, 1638-1643, 1985.
99. Kulmala, M., Pirjola, L., & Makkela., J. M. : Stable sulphate clusters as a source of new atmospheric particles, *Nature*, 404, 66–69, 2000.
100. Kulmala M., H. Vehkamäki, T. Petäjä, M. Dal Maso, A. Lauri, V.-M. Kerminen, W. Birmili and P.H. McMurry: Formation and growth rates of ultrafine atmospheric particles: a review of observations, *J. Aerosol Sci.*, 35, 143–176, 2004.
101. Kulmala, M. & Kerminen , V. M. : On the formation and growth of atmospheric nanoparticles. *Atmos. Res.* 90, 132–150, 2008.

102. Kulmala M., T. Petäjä, T. Nieminen, M. Sipilä, H. E. Manninen, K. Lehtipalo, M. Dal Maso, P. P. Aalto, H. Junninen, P. Paasonen, I. Riipinen, K. E. J. Lehtinen, A. Laaksonen and V. M. Kerminen: Measurement of the nucleation of atmospheric aerosol particles, *Nat. Protoc.*, 7, 9, 1651, 2012.
103. Kulmala M. et al. : Direct observations of atmospheric aerosol nucleation. *Science*, 339, 943, 2013.
104. Kuga Y. and A. Ishimaru: Retroreflectance from a dense distribution of spherical particles, *J. Opt. Soc. Am. A* 1, 831-835, 1984.
105. Kyrö E. M., V. M. Kerminen, A. Virkkula, M. D. Maso, J. Parshintsev, J. Ruíz-Jimenez, L. Forsström, H. E. Manninen, M.-L. Riekkola, P. Heinenon and M. Kulmala: Antarctic new particle formation from continental biogenic precursors, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 3527-3546, 2013.
106. Laan EC, Volten H, Stam DM, Muñoz O, Hovenier JW, Roush TI. Scattering matrices and expansion coefficients of Martian analogue palagonite particles. *Icarus*;199:219–30, 2009.
107. Lashof D. A. and D. R. Ahuja: Relative contributions of greenhouse gas emissions to global warming, *Nature*, 344, 529-531, 1990.
108. Lehtipalo; K : Spotlight Summary <https://www.osapublishing.org/spotlight/summary.cfm?id=284277>, 2014
109. Lehtipalo, K, M. Kulmala, M. Sipilä, T. Petäjä, M. Vana, D. Ceburnis, R. Dupuy, C. O'Dowd, Nanoparticles in boreal forest and coastal environment: A comparison of observations and implications of the nucleation mechanism. *Boreal Environ. Res.* 19, 215–236, 2014
110. Lelieveld, J, Evans, J. S., Fnais, M., Giannadaki, D. and Pozzer, A. : The contribution of outdoor air pollution sources to premature mortality on a global scale, *Nature*, 525, 367, <http://dx.doi.org/10.1038/nature15371>, 2015
111. Leon, J-F Y. Derimian, I. Chiapello, D. Tanr, T. Podvin, B. Chatenet, A. Diallo, and C. Deroo : 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, 2009
112. Lesins G., P. Chylek and U. Lohmann: A study of internal and external mixing scenarios and its effect on aerosol optical properties and direct radiative forcing, *J. Geophys. Res.*, 107, 4094, 2002.
113. Li J., J. G. D. Wong, J. S. Dobbie and P. Chylek: Parameterization of the Optical Properties of Sulfate Aerosols, *J. Atmospheric Sci.*, 58, 193-209, 2001.
114. Lindqvist H., T. Nousiainen, E. Zubko, O. Munoz: Optical modeling of vesicular volcanic ash particles, *J. Quant. Spec. Rad. Transf.* 112, 1871–1880, 2011.
115. Lindqvist, H. , Jokinen, O., Kandler, K ., Scheuven, D., Nousiainen, T. : Single scattering by realistic, inhomogeneous mineral dust particles with stereogrammetric shapes. *Atmos. Chem. Phys.* 14 (1), 143–157, 2014 .
116. Liu L., M.I. Mishchenko, J.W. Hovenier, H. Volten and O. Muñoz: Scattering matrix of quartz aerosols: comparison and synthesis of laboratory and Lorenz-Mie results, *J. Quant. Spec. Rad. Transf.* 79-80, 911-920, 2003.
117. Liu Z, Omar A, Vaughan M, Hair J, Kittaka C, Hu Y, et al. CALIPSO lidar observations of the optical properties of Saharan dust: a case study of long range transport. *J Geophys Res: Atmos*; 113, 1984-2012, 2008.
118. Longtin DR, Shettle EP, Hummel JR, Pryce JD. In: A wind dependent desert aerosol model: radiative properties. Massachusetts: Air Force Geophysics Laboratory, Hanscom AFB; 1988.
119. Makela., J. M., Aalto, P., Jokinen, V., Pohja, T., Nissinen, A., Palmroth, S., Markkanen, T., Seitsonen, K., Lihavainen, H., & Kulmala, M. : Observations of ultrafine particle formation and growth in boreal forest. *Geophysical Research Letters*, 24, 1219–1222 , 1997.
120. Malitson IH, MJ. Dodge : Refractive index and birefringence of synthetic sapphire. *J Opt Soc Am*, 62, 1405, 1972.
121. Mallet, M & Roger, Jean-Claude & Despiou, S & Putaud, Jean-Philippe & Dubovik, Oleg : A study of the mixing state of black carbon in urban zone. *J. Geophys. Res.* 109, 2004.
122. Marengo F. and R.J. Hogan, Determining the contribution of volcanic ash and boundary layer aerosol in backscatter lidar returns: A three-component atmosphere approach, *J. Geophys. Res.*, 116, 2011

123. Markel, V.A : Introduction to the Maxwell Garnett approximation: tutorial, *J. Opt. Soc. Am. A* 33, 1244-1256, 2016
124. Markowicz K.M., T. Zielinski, A. Pietruczuk, M. Posyniak, O. Zawadzka, P. Makuch, I.S. Stachlewska, A.K. Jagodnicka, T. Petelski, W. Kumala, P. Sobolewski, T. Stacewicz: Remote sensing measurements of the volcanic ash plume over Poland in April 2010, *Atm. Env.*, 48, 66-75, 2012.
125. McMurry, P. H. : A review of atmospheric aerosol measurements. *Atmospheric Environment*, 34, 1959–1999, 2000.
126. McMurry, P. H. : The history of condensation nucleus counters. *Aerosol Science and Technology*, 33, 297–322, 2000.
127. Measures, RM : *Laser Remote Sensing: Fundamentals and Applications*, 1984
128. Mehri T., Kempainen O. , David G. , Lindqvist H., Tyynelä J. , Nousiainen T. , Miffre A., Rairoux P. : Investigating the size, shape and surface roughness dependence of polarization lidars with light-scattering computations of real mineral dust particles : Application to dust particles external mixtures and dust mass concentration retrievals, *J. Atm. Res.*, 203, 44-61, 2018.
129. Mejean G., J. Kasparian, J. Yu, S. Frey, E. Salmon, JP Wolf: Remote detection and identification of biological aerosols using a femtosecond terawatt lidar system, *App. Phys. B*, 78, 535-537, 2004.
130. Merikallio S., H. Lindqvist, T. Nousiainen and M. Kahnert: Modelling light scattering by mineral dust using spheroids: assessment of applicability, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 5347–5363, 2011.
131. Metzger, A., Verheggen, B., Dommen, J., Duplissy, J., Prevot, A. S., Weingartner, E., Riipinen, I., Kulmala, M., Spracklen, D. V., Carslaw, K. S., and Baltensperger, U.: Evidence for the role of organics in aerosol particle formation under atmospheric conditions, *P. Natl. Acad. Sci.*, 107, 6646–6651 , 2010.
132. Mie G.: Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen, *Annalen der Physik* 330, 377-445 (1908).
133. Miffre A., M. Abou Chacra, S. Geffroy, P. Rairoux, L. Soulhac, R.J. Perkins and E. Frejafon: Aerosol load study in urban area by Lidar and numerical model, *Atm. Env.*, 44, 1152-1161, 2010a.
134. Miffre A., G. David, B. Thomas and P. Rairoux: Characterization of Iceland volcanic aerosols by UV-polarization Lidar at Lyon, SW Europe, *Proceedings of SPIE*, 7832, 2010b.
135. Miffre A., G. David, B. Thomas and P. Rairoux: Atmospheric non-spherical particles optical properties from UV-polarization lidar and scattering matrix, *Geophys. Res. Lett.*, 38, L16804, 2011.
136. Miffre A., G. David, B. Thomas, P. Rairoux, A.M. Fjaeraa, N.I. Kristiansen and A. Stohl: Volcanic aerosol optical properties and phase partitioning behavior after long-range advection characterized by UV-Lidar measurements, *Atm. Env.* 48, 76-84, 2012a.
137. Miffre A., G. David, B. Thomas, M. Abou Chacra, and P. Rairoux,: Interpretation of accurate UV-Polarization Lidar measurements: Application to volcanic ash number concentration retrieval, *J. Atm. Ocean. Tech.*, 29, 2012b.
138. Miffre, A., C. Anselmo, S. Geffroy, E. Frejafon and P. Rairoux, Lidar remote sensing of Light-Induced-Incandescence in the atmosphere, *Opt. Exp.*, Vol. 23, Issue 3, pp. 2347-2360, 2015.
139. Miffre A., Mehri T., Francis M., Rairoux P : UV– VIS depolarization from Arizona Test Dust particles at exact backscattering angle . *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, 169 , 79 –90, 2016.
140. Mishchenko M.I. and J. W. Hovenier: Depolarization of light backscattered by randomly oriented non spherical particles, *Opt. Lett.*, 20, 1356–1359, 1995.
141. Mishchenko M .I., Travis L.D., Kahn R ., West R.A. : Modeling phase functions for dust-like tropospheric aerosols using a shape mixture of randomly oriented polydisperse spheroids . *J. Geophys. Res.* 102, 16831 –16847, 1997.
142. Mishchenko M.I. and L.D. Travis: Capabilities and limitations of a current Fortran implementation of the T-matrix method for randomly oriented rotationally symmetric scatterers, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, 60, 309-324, 1998.
143. Mishchenko M. I. and K. Sassen: Depolarization of lidar returns by small ice crystals: An application to contrails, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 309-312, 1998.

144. Mishchenko M.I.: Calculation of the amplitude matrix for a nonspherical particle in a fixed orientation, *Appl. Opt.*, 39, 1026-1031, 2000.
145. Mishchenko M.I., J. W. Hovenier and L. D. Travis: *Light scattering by nonspherical particles: theory, measurements, and applications*, San Diego Academic Press, 2000.
146. Mishchenko M.I., L.D. Travis and A.A. Lacis: *Scattering, absorption and emission of Light by small particles*, 3rd edition, Cambridge University Press, UK, 2002.
147. Mishchenko M. I., J. W. Hovenier, and D. W. Mackowski: Single scattering by a small volume element, *J. Opt. Soc. Am. A*, 21, 71–87, 2004a
148. Mishchenko, M.I., L. Liu, L.D. Travis, and A.A. Lacis: Scattering and radiative properties of semi-external versus external mixtures of different aerosol types. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 88, 139-147, 2004b
149. Mishchenko M. I., L. Liu, and G. Videen: Conditions of applicability of the single-scattering approximation, *Opt. Express*, 15, 12, 7522–7527, 2007.
150. Mishchenko, M. I., B. Cairns, G. Kopp, C. F. Schueler, B. A. Fafaul, J. E. Hansen, J. E. Hansen , R. J. Hooker , T. Itchkawich, H. B. Maring and L. D. Travis: Accurate monitoring of terrestrial aerosols and total solar irradiance: introducing the Glory Mission, *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 88, 677-691, 2007.
151. Mishchenko M.I.: Electromagnetic scattering by nonspherical particles: A tutorial review, *J. Quant. Spec. Rad. Transf.*, 110, 808–832, 2009.
152. Mishchenko MI, Zakarova NT, Khlebtsov NG, Wriedt T, Videen G. Comprehensive thematic T-matrix reference database: a 2013–2014 update. *J Quant Spectrosc Radiat Transf*;146:349–54, 2014.
153. Muñoz O., H. Volten, J. W. Hovenier, B. Veihelmann, W. J. van der Zande, L. B. F. M. Waters, and W. I. Rose: Scattering matrices of volcanic ash particles of Mount St Helens, Redoubt, and Mount Spurr volcanoes. *J. Geophys. Res.*, 109, D16201, 2004.
154. Munoz O.: Laboratory measurements for small particles in single-scattering conditions, *ELS XII*, 2010.
155. Muñoz O. and J.W. Hovenier: Laboratory measurements of single light scattering by ensembles of randomly oriented small irregular particles in air. A review, *J. Quant. Spec. Rad. Transf.*, 112, 1646-1657, 2011.
156. Muñoz O., H. Volten, J. W. Hovenier, T. Nousiainen, K. Muinonen, D. Guirado, F. Moreno, L. B. F. M. Waters : Scattering matrix of large Saharan dust particles: Experiments and computations. *J. Geophys. Res.*, 112, D13, 2017.
157. Müller T., M. Laborde, G. Kassell and A. Wiedensohler, Design and performance of a three-wavelength LED-based total scatter and backscatter integrating nephelometer, *Atmos. Meas. Tech.*, 4, 1291–1303, 2011.
158. Müller, D., I. Mattis, U. Wandinger, A. Ansmann, D. Althausen, O. Dubovik, S. Eckhardt, and A. Stohl : Saharan dust over a central European EARLINET - AERONET site: Combined observations with Raman lidar and Sun photometer, *J. Geophys. Res.*, 108, 4345, doi: 10.1029/2002JD002918, D12, 2003.
159. Müller, D., et al. : Mineral dust observed with AERONET Sun photometer, Raman lidar, and in situ instruments during SAMUM 2006: Shape - dependent particle properties, *J. Geophys. Res.*, 115, D11207, 2010.
160. Müller D., Veselovskii I., Kolgotin A., Tesche M., Ansmann A., Dubovik O. : Vertical profiles of pure dust and mixed smoke-dust plumes inferred from inversion of multiwavelength Raman/polarization lidar data and comparison to AERONET retrievals and in situ observations, *Appl. Opt.*, 52, 3178-3202, 2013.
161. Murayama T., H. Okamoto, N. Kaneyasu, H. Kamataki and K. Miura: Application of lidar depolarization measurement in the atmospheric boundary layer: Effects of dust and sea-salt particles, *J. Geophys. Res.*, 104, No. D24, 1999.
162. Nishizawa T., N. Sugimotoa, I. Matsui, A. Shimizu and H. Okamoto: Algorithms to retrieve optical properties of three component aerosols from two-wavelength backscatter and one-

- wavelength polarization lidar measurements considering nonsphericity of dust, *J. Quant. Spec. Rad. Transf.*, 112, 254–267, 2011.
163. Nousiainen T.: Optical modeling of mineral dust particles: a review, *J. Quant. Spec. Rad. Transf.*, 110, 1261-1279, 2009.
164. Kahnert, M.: The T-matrix code Tsym for homogeneous dielectric particles with finite symmetries, *J. Quant. Spec. Rad. Transf.*, 123, 62-78, 2013.
165. Nousiainen T., E. Zubko, H. Lindqvist, M. Kahnert and J. Tyynel: Comparison of scattering by different nonspherical, wavelength-scale particles, *J. Quant. Spec. Rad. Transf.*, 113, 2391–2405, 2012.
166. O'Dowd C., M. H. Smith, I. E. Consterdine and J. A. Lowe: Marine aerosol, sea salt, and the marine sulfur cycle: a short review, *Atm. Env.*, 31, 73-80, 1997.
167. O'Dowd, C. D., McFiggans, G., Greasey, D. J., Pirjola, L., Hoell, C., Smith, M. H., Allan, B. J., Plane, J. M. C., Heard, D. E., Lee, J. D., Pilling, M. J., & Kulmala, M.: On the photochemical production of new particles in the coastal boundary layer. *Geophysical Research Letters*, 26, 1707–1710, 1999.
168. O'Dowd C. D., J. L. Jimenez, R. Bahreini, R. C. Flagan, J. H. Seinfeld, K. Hämeri, L. Pirjola, M. Kulmala, S. G. Jennings and T. Hoffmann: Marine aerosol formation from biogenic iodine emissions, *Nature*, 417, 632-636, 2002.
169. Ovadnevaite, J., Ceburnis, D., Plauskaite-Sukiene, K., Modini, R., Dupuy, R., Rimselyte, I., Ramonet, R., Kvietkus, K., Ristovski, Z., Berresheim, H., and O'Dowd, C.: Volcanic sulfate and arctic dust plumes over the North Atlantic Ocean, *Atmos. Environ.*, 43, 4968–4974, 2009.
170. Palmer K. F. and D. Williams: Optical constants of sulfuric acid: Application to the clouds of Venus? *Appl. Opt.* 14, 208–219, 1975.
171. Park, J. H., A. H. Goldstein, J. Timkovsky, S. Fares, R. Weber, J. Karlik and R. Holzinger: Active Atmosphere-Ecosystem Exchange of the Vast Majority of Detected Volatile Organic Compounds, *Science*, 341, 643-647, 2013.
172. Pelon, J. Cyrille Flamant, Patrick Chazette, J.-F. Leon, D. Tanre, et al.: Characterization of aerosol spatial distribution and optical properties over the Indian Ocean from airborne LIDAR and radiometry during INDOEX'99. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, American Geophysical Union, 107 (D19), 8029 (13 p.), 2002
173. Perrin F., A. Abragam. Polarisation de la lumière diffusée par des particules sphériques. *J. Phys. Radium*, 12 (2), pp.69-73, 1951
174. Petters M.D. and S. M. Kreidenweis: A single parameter representation of hygroscopic growth and cloud condensation nucleus activity, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 1961–1971, 2007.
175. Poirson J., T. Lanternier, J.C. Cotteverte, A. Le Floch and F. Bretenaker: Jones matrices of a quarter-wave plate for Gaussian beams, *Appl. Opt.* 34, 6806-6818, 1995.
176. Pope III C. A. and D. W. Dockery Health Effects of Fine Particulate Air Pollution: Lines that Connect, *Journal of the Air & Waste Management Association*, 56:6, 709-742, DOI: 10.1080/10473289.2006.10464485, 2006
177. Pope III C. A., M. Ezzati and D. W. Dockery: Fine particulate air pollution and life expectancies in the United States: The role of influential observations, *J. Air. Waste. Manage.*, 63(2), 129-132, 2013.
178. Pöschl U.: Atmospheric aerosols: Composition, transformation, climate and health effects. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 44, 7520-7540, 2005.
179. Prospero, J. M., P. Ginoux, O. Torres, S. E. Nicholson, and T. E. Gill, ENVIRONMENTAL CHARACTERIZATION OF GLOBAL SOURCES OF ATMOSPHERIC SOIL DUST IDENTIFIED WITH THE NIMBUS 7 TOTAL OZONE MAPPING SPECTROMETER (TOMS) ABSORBING AEROSOL PRODUCT, *Rev. Geophys.*, 40(1), 1002, doi:doi:10.1029/2000RG000095, 2002.
180. Pungler E. M. and J. J. West: The effect of grid resolution on estimates of the burden of ozone and fine particulate matter on premature mortality in the USA, *Air Qual. Atmos. Health*, 1-11, 2013.
181. Purcell, E.M., Pennypacker, C.R.: Scattering and absorption of light by non spherical dielectric grains. *Astrophys. J.* 186, 705–714, 1973.

182. Quan, J., Y. Liu, Q. Liu, X. Jia, X. Li, Y. Gao, D. Ding, J. Li and Z. Wang, Anthropogenic pollution elevates the peak height of new particle formation from planetary boundary layer to lower free troposphere, *Geophys. Res. Lett.*, 44, 7537–7543, 2017
183. Query, M.R.: Optical constants, Contractor Report CRDC-CR-85034, 1985
184. Ramaswamy V. et al.: Radiative forcing of climate change. In: *Climate Change 2001: The Scientific Basis. Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [Houghton, J.T., et al. (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 349–416, 2001.
185. Randriamiarisoa H., P. Chazette, P. Couvert, J. Sanak and G. Mégie: Relative humidity impact on aerosol parameters in a Paris suburban area, *Atm. Chem. Phys.*, 6, 1389–1407, 2006.
186. Ravishankara, A. R.: Heterogeneous and multiphase chemistry in the troposphere. *Science*, 278, 1058–1065, 1997.
187. Revuelta M.A., M. Sastre, A.J. Fernández, L. Martín, R. García, F.J. Gómez-Moreno, B. Artíñano, M. Pujadas and F. Molero: Characterization of the Eyjafjallajökull volcanic plume over the Iberian Peninsula by lidar remote sensing and ground-level data collection, *Atm Env.*, 48, 46-55, 2012.
188. Riemer N., M. West, R. Zaveri and R. Easter: Estimating black carbon aging time-scales with a particle-resolved aerosol model, *Aerosol Science*, 41, 143-158, 2010.
189. Riley C.M., W.I. Rose and G.J.S. Bluth: Quantitative shape measurements of distal volcanic ash, *Journ. Geophys. Res.* 108, 2504, 2003.
190. Riccobono F., L. Rondo, M. Sipilä, P. Barmet, J. Curtius, J. Dommen, M. Ehn, S. Ehrhart, M. Kulmala, A. Kürten, J. Mikkilä, P. Paasonen, T. Petäjä, E. Weingartner, and U. Baltensperger: Contribution of sulfuric acid and oxidized organic compounds to particle formation and growth, *Atm. Chem. Phys.* 12, 20, 9427-9439, 2012.
191. Riccobono, F. *et al.* Oxidation products of biogenic emissions contribute to nucleation of atmospheric particles. *Science* **344**, 717–721, 2014.
192. Robock, A., Volcanic eruptions and climate, *Rev. Geophys.*, 38, 191–219, 2000.
193. Rodgers, C.: *Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice*, World Scientific, Singapore, 2000.
194. Rose, C. ; Sellegri, K. ; Asmi, E. ; Hervo, M. ; Freney, E. ; Colomb, A. ; Junninen, H. ; Duplissy, J. ; Sipilä, M. ; Kontkanen, K. ; Lehtipalo, K. ; Kulmala, M. :Major contribution of neutral clusters to new particle formation at the interface between the boundary layer and the free troposphere *Atmos. Chem. Phys.* Vol. 15 , p. 3413-3428, 2015a
195. Rose, C. ; Sellegri, K. ; Velarde, F. ; Moreno, I. ; Weinhold, K. ; Krejci, R. ; Ginot, P. ; Andrade, M. ; Wiedensholer, A. ; Laj, P. :Frequent nucleation events at the high altitude station of Chacaltaya (5240 m a.s.l.), *Bolivia Atmospheric Environment* Vol. 102[2] , p. 18-29, 2015b
196. Rothman L.S., I.E. Gordon, A. Barbe, D. Chris Benner, P.F. Bernath, M. Birk, V. Boudon, L.R. Brown, A. Campargue, J.-P. Champion, K. Chance, L.H. Coudert, V. Dana, V.M. Devi, S. Fally and J.-M. Flaud: The HITRAN 2008 molecular spectroscopic database, *J. Quant. Spec. Rad. Transf.*, 110, 533, 2009.
197. Roy G., X. Cao and R. Bernier: On linear and circular depolarization LIDAR signatures in remote sensing of bioaerosols: experimental validation of the Mueller matrix for randomly oriented particles. *Opt. Engineering*, 50, 126001, 2011.
198. Sakaï T., Nagai T., Zaizen Y., and Mano Y.: Backscattering linear depolarization ratio measurements of mineral, sea-salt, and ammonium sulfate particles simulated in a laboratory chamber, *Appl. Opt.* 49, Vol. 23, 4441-4449, 2010.
199. Sasano Y., and E. V. Browell: Light scattering characteristic of various aerosol types derived from multiple wavelength lidar observations, *Appl. Opt.*, 28, 1670-1679, 1989.
200. Sassen K., "Polarization in Lidar", in *Lidar, Range-Resolved Optical Remote Sensing of the Atmosphere*, C. Weitkamp, Springer, 2005.



201. Sassen K., J. Zhu, P. Webley, K. Dean and P. Cobb: Volcanic ash plume identification using polarization lidar: Augustine eruption, Alaska, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L08803, 2007
202. Schnaiter M., H. Horvath, O. Möhler, K.-H. Naumann, H. Saathoff and O.W. Schöck: UV-VIS-NIR spectral optical properties of soot and soot containing aerosols. *Aerosol Sci.* 34, 1421-1444, 2003.
203. Schnaiter M., S. Büttner, O. Möhler, J. Skrotzki, M. Vragel and R. Wagner: Influence of particle size and shape on the backscattering linear depolarization ratio of small ice crystals – cloud chamber measurements in the context of contrail and cirrus microphysics, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 10465–10484, 2012.
204. Schobesberger, S., Junninen, H., Bianchi, F., Gustaf Lönn, Mikael Ehn, Katrianne Lehtipalo, Josef Dommen, Sebastian Ehrhart, Ismael K. Ortega, Alessandro Franchin, Tuomo Nieminen, Francesco Riccobono, Manuel Hutterli, Jonathan Duplissy, João Almeida, Antonio Amorim, Martin Breitenlechner, Andrew J. Downard, Eimear M. Dunne, Richard C. Flagan, Maija Kajos, Helmi Keskinen, Jasper Kirkby, Agnieszka Kupc, Andreas Kürten, Theo Kurtén, Ari Laaksonen, Serge Mathot, Antti Onnela, Arnaud P. Praplan, Linda Rondo, Filipe D. Santos, Simon Schallhart, Ralf Schnitzhofer, Mikko Sipilä, António Tomé, Georgios Tsagkogeorgas, Hanna Vehkamäki, Daniela Wimmer, Urs Baltensperger, Kenneth S. Carslaw, Joachim Curtius, Armin Hansel, Tuukka Petäjä, Markku Kulmala, Neil M. Donahue, Douglas R. Worsnop : Molecular understanding of atmospheric particle formation from sulfuric acid and large oxidized organic molecules, *Proceedings of the National Academy of Sciences (PNAS)*, 110 (43) 17223-17228; 2013
205. Schumann U., B. Weinzierl, O. Reitebuch, H. Schlager, A. Minikin, C. Forster, R. Baumann, T. Sailer, K. Graf, H. Mannstein, C. Voigt, S. Rahm, R. Simmet, M. Scheibe, M. Lichtenstern, P. Stock, H. Rüba, D. Schäuble, A. Tafferner, M. Rautenhaus, T. Gerz, H. Ziereis, M. Krautstrunk, C. Mallaun, J.-F. Gayet, K. Lieke, K. Kandler, M. Ebert, S. Weinbruch, A. Stohl, J. Gasteiger, S. Groß, V. Freudenthaler, M. Wiegner, A. Ansmann, M. Tesche, H. Olafsson and K. Sturm: Airborne observations of the Eyjafjalla volcano ash cloud over Europe during air space closure in April and May 2010, *Atm. Chem. Phys.*, 11, 2245-2279, 2011.
206. Seinfeld J.H. and S.N. Pandis: Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change, John Wiley & Sons, 2006.
207. Shettle E. P. and R. W. Fenn: Models for the Aerosols of the Lower Atmosphere and the Effects of Humidity Variations on Their Optical Properties, AFGL-TR-79-0214, 1979.
208. Shi, & Qian : Continuous measurements of 3 nm to 10 μm aerosol size distributions in St. Louis, M.S. Thesis, Department of Mechanical Engineering, University of Minnesota, Minneapolis, MN 55455, 2003.
209. Shimizu A., N. Sugimoto, I. Matsui, K. Arao, I. Uno, T. Murayama, N. Kagawa, K. Aoki, A. Uchiyama and A. Yamazaki: Continuous observations of Asian dust and other aerosols by polarization lidars in China and Japan during ACE-Asia. *J. Geophys. Res.*, 109, D19S17, 2004.
210. Shurcliff W.A.: Polarized light, Harvard University Press, 1962.
211. Sipilä, M. et al. Applicability of condensation particle counters to measure atmospheric clusters. *Atmos. Chem. Phys.* 8, 4049 – 4060, 2008.
212. Sokolik I, Andronova A, Johnson TZ : Complex refractive index of atmospheric dust aerosols. *Atmos Environ*;27:2495–502, 1993.
213. Strawa, A. W., R. Elleman, A. G. Hallar, D. Covert, K. Ricci, R. Provencal, T. W. Owan, H. H.
214. Sugimoto N. et al.: Observation of dust and anthropogenic aerosol plumes in the Northwest Pacific with a two-wavelength polarization lidar on board the research vessel Mirai, *Geophys. Res. Lett.* 29, 2002.
215. Sugimoto N. and C. H. Lee: Characteristics of dust aerosols inferred from lidar depolarization measurements at two wavelengths, *Appl. Opt.*, 45, 2006.
216. Tesche M., A. Ansmann, D. Müller, D. Althausen, R. Engelmann, V. Freudenthaler and S. Groß: Vertically resolved separation of dust and smoke over Cape Verde using multiwavelength Raman and

- polarization lidars during Saharan Mineral Dust Experiment 2008, *J. Geophys. Res.*, 114, D13202, 2009.
217. Thomas B., A. Miffre, G. David, J-P. Cariou and P. Rairoux: Remote sensing of trace gases with optical correlation spectroscopy and Lidar: Theoretical and numerical approach, *Appl. Phys. B*, 108, 689, 2012.
218. Thomas B., G. David, C. Anselmo, J-P. Cariou, A. Miffre and P. Rairoux: Remote sensing of atmospheric gases with optical correlation spectroscopy and lidar: first experimental result on water vapor profile measurements, *Appl. Phys. B*, doi: 10.1007/s00340-013-5468-4, 2013a.
219. Thomas B., G. David, C. Anselmo, E. Coillet, A. Miffre, J. P. Cariou, P. Rairoux, Remote sensing of methane with broadband laser and optical correlation spectroscopy on the Q-branch of the 2v<sub>3</sub> band, *Jour. Mol. Spectrom.*, 2013b.
220. Twomey, S.A.: The influence of pollution on the shortwave albedo of clouds, *J. Atmos. Sci.*, 34, 1149–1152, 1977.
221. Vadim Markel. Introduction to the Maxwell Garnett approximation: tutorial. *Journal of the Optical Society of America A*, Optical Society of America, 33 (7), pp.1244-1256, 2016,
222. Va. keva., M., Ha. meri, K., Puhakka, T., Nilsson, E. D., Hohti, H., & Ma. kela., J. M. . Effects of meteorological processes on aerosol particle size distribution in an urban background. *Journal of Geophysical Research D*, 105, 9807–9821, 2000
223. Van de Hulst H. C.: *Light Scattering by Small Particles*, Wiley, New York, 1957
224. Vernier, J.-P., Pommereau, J.-P., Thomason, L. W., Pelon, J., Garnier, A., Deshler, T., Jumelet, J., and Nielsen, J. K.: Overshooting of clean tropospheric air in the tropical lower stratosphere as seen by the CALIPSO lidar, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 9683–9696, doi:10.5194/acp-11-9683-2011, 2011..
225. Veselovskii I., O. Dubovik, A. Kolgotin, T. Lapyonok, P. Di Girolamo, D. Summa, D. N. Whiteman, M. I. Mishchenko and D. Tanré: Application of randomly oriented spheroids for retrieval of dust particle parameters from multiwavelength lidar measurements, *J. Geophys. Res.*, 115, D21203, 2010.
226. Veselovskii I., O. Dubovik, A. Kolgotin, A. Ansmann, M. Tesche, D. Müller : Vertical profiles of pure dust and mixed smoke-dust plumes inferred from inversion of multiwavelength Raman/polarization lidar data and comparison to AERONET retrievals and in situ observations, *Appl. Opt.*, 52, 3178-3202, 2013.
227. Veselovskii I., O. Dubovik, P. Goloub, T. Podvin : Retrieval of optical and physical properties of African dust from multiwavelength Raman lidar measurements during the SHADOW campaign in Senegal, *ACP*, 16, 7013-7028, 2016.
228. Vester B. P., M. Ebert, E. B. Barnert, J. Schneider, K. Kandler, L. Schütz and S. Weinbruch: Composition and mixing state of the urban background aerosol in the Rhein-Main area (Germany), *Atm. Env.*, 41, 6102-6115, 2007.
229. Vitkin IA, Studinski R, Polarization preservation in diffusive scattering from in-vivo turbid biological media: effects of tissue optical absorption in the exact backscattering direction, *Optics Communic*, 190 37-43, 2001
230. Volten, H., O. Muñoz, E. Rol, J. F. deHaan, W. Vassen, J. W. Hovenier, K. Muinonen, and T. Nousiainen : Scattering matrices of mineral aerosol particles at 441.6 nm and 632.8 nm, *J. Geophys. Res.*, 106(D15), 17375–17401, 2001.
231. Von Glasow R., N. Bobrowski and C. Kern: The effects of volcanic eruptions on atmospheric chemistry, *Chemical Geology* 263, 131-142, 2009.
232. Wang Y., G. Zhuang, Y. Sun and Z. An: Water-soluble part of the aerosol in the dust storm season, evidence of the mixing between mineral and pollution aerosols, *Atm. Env.*, 39, 7020-7029, 2005.
233. Wang W., J. Ma, S. Hatakeyama, X. Liu, Y. Chen, A. Takami, L. Ren, and C. Geng, "Aircraft measurements of vertical ultrafine particles profiles over northern China coastal areas during dust storms in 2006," *Atmos. Environ.* 42(22), 5715–5720, 2008.
234. Wang X., J. Lai, Z. Li, Harshman, T. K. Gustafson and P. Kelley: Polarization studies for backscattering of RBC suspensions based on Mueller matrix decomposition *Opt. Expr.* 20, 20771-20182, 2012.

235. Weber, R.J., McMurry, P.H., Eisele, F.L. & Tanner, J. Measurement of expected nucleation precursor species and 3–500 nm diameter particles at Mauna Loa observatory, Hawaii. *J. Atmos. Sci.* 52, 2242–2257, 1995.
236. Weber, R.J. et al. Measured atmospheric new particle formation rates: implications for nucleation mechanisms. *Chem. Eng. Commun.* 151, 53–64, 1996.
237. Weber, R. J., McMurry, P. H., Mauldin, L., Tanner, D. J., Eisele, F. L., Brechtel, F. J., Kreidenweis, S. M., Kok, G. L., Schillawski, R. D., & Baumgardner, D. : A study of new particle formation and growth involving biogenic and trace gas species measured during ACE1. *Journal of Geophysical Research D*, 103, 16385–16396, 1998.
238. Weber, R. J., Chen, G., Davis, D. D., Mauldin III, R. L., Tanner, D. J., Eisele, F. L., Clarke, A. D., Thornton, D. C., & Bandy, A. R. : Measurements on enhanced H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> and 3–4 nm particles near a frontal cloud during the aerosol characterization experiment (ACE 1). *Journal of Geophysical Research D*, 106, 24107–24117, 2001..
239. Wehner B., H. Siebert, A. Ansmann, F. Ditas, P. Seifert, F. Stratmann, A. Wiedensohler, A. Apituley, R. A. Shaw, H. E. Manninen, and M. Kulmala: Observations of turbulence-induced new particle formation in the residual layer, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 4319–4330, 2010.
240. Weigel, R. and Borrmann, S. and Kazil, J. and Minikin, A. and Stohl, A. and Wilson, J. C. and Reeves, J. M. and Kunkel, D. and de Reus, M. and Frey, W. and Lovejoy, E. R. and Volk, C. M. and Viciani, S. and D'Amato, F. and Schiller, C. and Peter, T. and Schlager, H. and Cairo, F. and Law, K. S. and Shur, G. N. and Belyaev, G. V. and Curtius, J.: In situ observations of new particle formation in the tropical upper troposphere: the role of clouds and the nucleation mechanism. *Atmo. Chem. Phys.*, 11, 18, 9983–10010, 2011
241. Weitkamp C.: Lidar range-resolved optical remote sensing of the atmosphere, Springer, 455, 2005.
242. West RA, Doose LR, Eibl AM, Tomasko G, Mishchenko MI. Laboratory measurement of mineral dust scattering phase function and linear polarization. *J Geophys Res*; 102:16871–81, 1997.
243. Wiegner M., J. Gasteiger, K. Kandler, B. Weinzierl, K. Rasp, M. Esselborn, V. Freudenthaler, B. Heese, C. Toledano, M. Tesche, and D. Althausen: Numerical simulations of optical properties of Saharan dust aerosols with emphasis on lidar applications, *Tellus*, 61B, 180–194, 2009.
244. Wiegner, M., Groß, S., Freudenthaler, V., Schnell, F., and Gasteiger, J.: The May/June 2008 Saharan dust event over Munich: Intensive aerosol parameters from lidar measurements, *J. Geophys. Res.*, 116, D23213, doi:10.1029/2011JD016619, 2011.
245. Wiegner M., J. Gasteiger, S. Groß, F. Schnell, V. Freudenthaler and R. Forkel: Characterization of the Eyjafjallajökull ash-plume: Potential of lidar remote sensing, *Phys. Chem. Earth*, 45–46, 79–86, 2012.
246. Wiersma D.S., P. Bartolini, A. Lagendij and R. Righini: Localization of light in a disordered medium, *Nature*, 390, 671–673, 1997.
247. Williams, J., de Reus, M., Krejci, R., Fischer, H. and Strom J. : Application of the variability-size relationship to atmospheric aerosol studies: estimating aerosol lifetimes and ages *Atmos. Chem. Phys.*, 2, 133–145, 2002
248. Winker, D.M., Pelon, J., Coakley, J.A., Ackerman, S.A., Charlson, R.J., Colarco, P.R., Flamant, P., Fu, Q., Hoff, R.M., Kittaka, C., Kubar, T.L., Le Treut, H., McCormick, M.P., Mégie, G., Poole, L., Powell, K., Trepte, C., Vaughan, M.A., Wielicki, B.A. : The CALIPSO mission: a global 3D view of aerosols and clouds. *Bull. Am. Meteorol. Soc.* 91 (9), 1211–1229, 2010.
249. Womersley, R.S., Sloan, I. H.. How good can polynomial interpolation on the sphere be? *Adv. Comput. Math*, 14, 2001.
250. Woodward, R. I., R. C. T. Howe, G. Hu, F. Torrisi, M. Zhang, T. Hasan, and E. J. R. Kelleher, "Few-layer MoS<sub>2</sub> saturable absorbers for short-pulse laser technology: current status and future perspectives," *Photon. Res.* 3, A30–A42, 2015
251. Worringen A., M. Ebert, T. Trautmann, S. Weinbruch and G. Hela: Optical properties of internally mixed ammonium sulfate and soot particles e a study of individual aerosol particles and ambient aerosol populations. *Appl. Opt.*, 47, 21, 3835–3845, 2008.

252. Yang, P., Feng, Q., Hong, G., Kattawar, G.W., Wiscombe, W.J., Mishchenko, M.I., Dubovik, O., Laszlo, I., Sokolik, I.N. : Modeling of the scattering and radiative properties of non-spherical dust-like aerosols. *J. Aerosol Sci.* 38, 995–1014, 2007.
253. Yu, F. et al. : Spatial distributions of particle number concentrations in the global troposphere : simulations, observations and implications for nucleation mechanisms. *J. Geophys. Res.* 115, D 17205, 2010.
254. Yurkin, M.A., Hoekstra, A.G. .. The discrete-dipole-approximation code ADDA: capabilities and known limitations. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* 112, 2234–2247, 2011
255. Zhang, A. Khalizov, L. Wang, M. Hu, W. Xu : Nucleation and growth of nanoparticles in the atm. *Chem. Rev.*, 112, 1957, 2012.
256. Zhang D. Effect of sea salt on dust settling to the ocean. *Tellus B*;60:641, 2008.
257. Zhang, L. Li, Q.B., Gu, Y., Liou, K. N. and Meland B. : Dust vertical profile impact on global radiative forcing estimation using a coupled chemical-transport–radiative-transfer model, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 7097–7114, 2013
258. Zhu X.: Explicit transformation matrix for a tilted birefringent plate with its optic axis parallel to the plate surface, *Appl. Opt.* 33, 3502-3506, 1994.
259. Zubko, E., Petrov, D., Grynko, Y., Shkuratov, Y., Okamoto, H., Muinonen, K., Nousiainen, T., Kimura, H., Yamamoto, T., Videen, G. .. Validity criteria of the discrete dipole approximation. *Appl. Opt.* 49, 1267–1279, 2010
260. Zubko E, K. Muinonen, O. Munoz, T. Nousiainen, Y. Shkuratov, W. Sun : Light scattering by feldspar particles: Comparison of model agglomerate debris particles with laboratory samples. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* 124:61–78, 2013.