



**HAL**  
open science

# Lidar Raman météorologique dédié à l'étude des cycles couplés des aérosols et de la vapeur d'eau

Alexandre Baron

► **To cite this version:**

Alexandre Baron. Lidar Raman météorologique dédié à l'étude des cycles couplés des aérosols et de la vapeur d'eau. Océan, Atmosphère. Université Paris-Saclay, 2020. Français. NNT : 2020UPASJ004 . tel-03200382

**HAL Id: tel-03200382**

**<https://theses.hal.science/tel-03200382v1>**

Submitted on 16 Apr 2021

**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.

Lidar Raman météorologique dédié à  
l'étude des cycles couplés des aérosols et  
de la vapeur d'eau

*Meteorological Raman Lidar dedicated to the  
study of aerosols and water vapor coupled cycles*

**Thèse de doctorat de l'université Paris-Saclay**

École doctorale n° 129, Science de l'Environnement Île-de-France (SEIF)  
Spécialité de doctorat : Météorologie, océanographie, physique de  
l'environnement

Unité de recherche : Université Paris-Saclay, CNRS, CEA, UVSQ, Laboratoire des  
sciences du climat et de l'environnement, 91191, Gif-sur-Yvette, France

Référent : Université de Versailles – Saint-Quentin-en-Yvelines

**Thèse présentée et soutenue à Paris-Saclay,  
le 27/11/2020, par**

**Alexandre BARON**

**Composition du Jury**

<b>Valérie CIARLETTI</b> Professeure des universités, UVSQ	Présidente
<b>Bertrand CALPINI</b> Professeur titulaire, MétéoSuisse	Rapporteur & Examineur
<b>Alfons SCHWARZENBOECK</b> Professeur des universités, Université Clermont Auvergne	Rapporteur & Examineur
<b>Alain DABAS</b> Ingénieur des Ponts, Eaux et Forêts, Météo-France	Examineur
<b>Alexandros PAPAYANNIS</b> Professeur titulaire, Université polytechnique nationale d'Athènes	Examineur

**Direction de la thèse**

<b>Patrick CHAZETTE</b> Directeur de recherche, CEA	Directeur de thèse
<b>Julien TOTEMS</b> Ingénieur-chercheur, CEA	Co-Encadrant
<b>Cyrille FLAMANT</b> Directeur de recherche, CNRS	Invité, membre du comité de thèse
<b>Jean-Christophe RAUT</b> Maître de conférence, Sorbonne université	Invité, membre du comité de thèse



# Remerciements

Mon travail de thèse s'est déroulé au Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE), unité mixte de recherche sous la tutelle du CEA, du CNRS et de l'Université Versailles Saint-Quentin-en-Yvelines. Je remercie particulièrement le CEA qui m'a fait confiance en finançant mon travail de recherche pendant ces trois ans.

Durant période, Le LSCE fut successivement dirigé par Elsa Cortijo et Philippe Bousquet. Je remercie Elsa pour sa gestion très humaine du laboratoire et Philippe pour la continuité de cette gestion et son investissement pour le suivi des doctorants du labo. Merci également à l'équipe de direction élargie, Didier Roche, François-Marie Bréon et surtout Catherine Huguen, accessible et toujours efficace pour obtenir des signatures.

Merci aux personnes du groupe administratif, sans qui le travail de recherche ne pourrait pas se faire aussi efficacement. En particulier, je souhaite remercier Laurence Bayard qui a su s'armer de patience pour me faire découvrir toutes les démarches nécessaires au remboursement d'une mission.

Je tiens également à exprimer toute ma gratitude aux membres de mon jury qui ont accepté d'évaluer mon travail, m'ont fourni des retours enrichissants et avec qui j'ai apprécié les échanges pendant la soutenance. Merci à tous ceux qui ont fait lisser mes aspérités émotionnelles au cours de cette thèse. Je pense en particulier au groupe des foteux avec qui on allait taper le ballon le mardi soir s'il ne pleuvait pas ... et s'il ne faisait pas trop froid. Je pense surtout au groupe de rugbymen (touch' rugby, pas trop des brutes non plus) avec qui les vendredis midi était agité qu'il pleuve, qu'il vente ou même qu'il neige ! Merci à vous Virgile, Laurent, Gaël, Preden, Jérôme, Pauline, Jean-Claude, Adrian, ...

Merci également à tous les doctorants du labo avec qui j'ai passé de bons moments ou encore avec le groupe des précaires (CDD, doctorants, post-docs) pour nos discussions sur nos avenir plus ou moins bouchés ... avec des perspectives pour la recherche publique assez incertaines. Je tiens à remercier en particulier Omar, Fanny et Anthony : c'est avec vous que je me suis senti le plus proche et ça a toujours été super appréciable de pouvoir compter sur une oreille amicale au labo.

Ces travaux étant en grande partie issus de campagnes de terrain, je tiens à remercier ici toutes les personnes côtoyées avec plaisir à ces occasions. En Ardèche d'abord, avec Cathy et Jean-Luc pour leur accueil au gîte comme un membre de la famille. La famille Toussaint : Franck, Nathalie et leurs fils pour les repas et discussions après de longues journées de vol en ULM. Pilotes que l'on retrouve dans nos

## Remerciements

---

aventures autour du lac d'Annecy aux côtés d'Elsa Dieudonné, Harald Sodemann, Anne Monod, Andrew Seidl, Pascal Doira, Amandine Durand, Sylvain Ravier, Céline Diana et Fabienne Maignan. Fabienne qui a aussi tenu le rôle de tutrice au sein du labo, je t'ai peu sollicitée mais c'est plutôt bon signe. Enfin la dernière campagne mémorable à la Barbade, de très grande envergure, je ne pourrai pas citer tout le monde mais un grand merci pour tous les échanges enrichissants sur tous les plans avec les collègues du LMD, du LAMP, du LATMOS, de Météo-France, de SAFIRE, du LA et surtout merci à toi Sandrine Bony pour cette opportunité unique.

Pendant cette thèse j'ai eu l'opportunité de co-encadrer des stagiaires, Gwendoline et Simona : de très bons moments passés avec vous. Vous aider m'a aussi donné confiance en ce que je faisais, et pour ça merci !

Cyrille Flamant et Jean-Christophe Raut, membres de mon comité de thèse, je vous remercie chaleureusement pour votre soutien et vos appréciations sur mon travail qui m'ont permis de l'améliorer. Merci également pour votre aide décisive lors de ma recherche de post-doctorat. On apprend beaucoup à vos côtés !

Julien, merci pour ton encadrement, tu as tout de suite été très ouvert et on s'est bien entendu très vite. Tu es un scientifique hyper technique avec des connaissances en physique si large que les discussions mêmes complètement hors des sujets de l'équipe étaient toujours hyper pointues et très intéressantes ! Je garderai en mémoire de très bon souvenirs notamment en manip' avec quelques bons fous rires.

Patrick, que dire ? Je te dois beaucoup ! Tu m'as proposé cette thèse après un stage que j'ai adoré. L'approche de la recherche que tu as me plaît énormément, tu fais tout de A à Z (et encore il doit manquer des lettres !). C'est ça qui m'a motivé à accepter la thèse que tu m'as proposée. Une science finalement touche à tout mais toujours très pointue. Au côté de cette excellence scientifique il y a aussi un volet humain très présent et qu'il faut savoir apprécier, parfois avec des anecdotes ... croustillantes ! Nos caractères se sont avérés bien compatibles pour mener ces travaux à bien. Merci encore de les avoir dirigés. Je voudrais également remercier tous mes amis, qui m'ont toujours motivé ... ou parfois moins ... mais qui m'ont permis d'aller au bout de ce travail de longue haleine avec le sourire aux lèvres.

Un grand merci à ma famille pour m'avoir soutenu tout au long de ces grandes études avec tous les sacrifices que ça a impliqué. Je suis fier de vous avoir comme parents et comblé de tous ce que vous m'avez apporté ! Enfin, merci à celle qui partage ma vie. Lucile, tu as accepté de me suivre dans cette aventure en restant dans une région que tu voulais quitter. Tu m'as soutenu durant ces trois années et motivé quand j'en avais besoin. Un immense merci d'être toujours à mes côtés. J'espère continuer à partager à tes côtés le chemin que nous avons déjà commencé à tracer, pourvu qu'on n'en voie pas le bout !

# Résumé

Les cycles couplés des aérosols, de la vapeur d'eau et des nuages sont à l'heure actuelle un domaine de recherche dynamique au cœur d'enjeux climatiques et météorologiques. Une meilleure compréhension des interactions entre ces différents cycles atmosphériques doit permettre de mieux appréhender les processus conduisant à des évènements météorologiques extrêmes et également de diminuer les incertitudes des projections climatiques, en grande partie liées aux interactions aérosols – nuages. Contribuant à ces efforts, les travaux présentés dans cette thèse sont fondés sur l'analyse d'observations expérimentales de terrain autour d'un instrument de télédétection émergent. Il s'agit d'un lidar Raman météorologique transportable capable de mesurer simultanément la température thermodynamique, le contenu en vapeur d'eau et les propriétés optiques des aérosols, dans la colonne atmosphérique. Cet instrument, développé au LSCE et nommé WALI, permet des observations continues dans la basse et moyenne troposphère avec une précision et des résolutions verticale et temporelle en adéquation avec les objectifs de ruptures énoncés par l'OMM. En premier lieu, le bilan de liaison de la chaîne d'acquisition de la température basée sur la spectroscopie Raman rotationnelle, nouvellement implémentée sur le lidar, a été obtenu à l'aide d'une modélisation directe – inverse. Les premières mesures de température par lidar, conduites durant une période très contrastée en température marquée par l'occurrence d'une vague de froid, ont permis une comparaison avec les sorties de modèles de prévisions météorologiques à méso-échelle (AROME/Météo-France) et globale (ERA5/ECMWF) et l'instrument IASI embarqué sur les satellites de la série METOP. Lors d'une configuration météorologique hivernale analogue ayant induit des épisodes de pollution majeurs en Île-de-France, un suivi des propriétés optiques des aérosols a été effectué. Enfin, une campagne de mesure multi-instruments incluant un volet aéroporté a été conduite aux abords du lac d'Annecy, avec une stratégie originale couplant la télédétection et l'observation *in situ*. Elle a permis une analyse préliminaire du cycle de l'eau dans un environnement montagneux complexe, incluant les liens entre la vapeur d'eau atmosphérique, les nuages, les aérosols et le lac. Le lidar Raman météorologique s'avère être un outil idoine pour étudier ces processus.

**Mots clefs :** Lidar Raman, aérosols, température, cycle de l'eau, humidité relative, hygroscopicité

# Abstract

The coupled cycles of aerosols, water vapor and clouds are currently a dynamic field of research at the heart of climate and weather challenges. A better understanding of the interactions between these atmospheric cycles should allow to perceive the processes leading to extreme weather events and to reduce the uncertainties of climate projections, largely related to aerosol-cloud interactions. In line with these efforts, the work presented in this thesis are based on the analysis of experimental field observations, around a new tool for remote sensing. It is a transportable meteorological Raman lidar capable of simultaneous measurements of the thermodynamic temperature, water vapor content and optical properties of aerosols in the atmosphere. This instrument, developed at LSCE and called WALI, allows continuous observations in the lower and middle troposphere with a precision, and vertical and temporal resolutions in line with the breakthrough requirements set by the WMO. Firstly, the link budget of the temperature acquisition channel based on rotational Raman spectroscopy, newly implemented on the lidar, has been obtained using direct - inverse modeling. The first temperature measurements by lidar, carried out during a very contrasted period in terms of temperature marked by the occurrence of a cold spell, allowed a comparison with the outputs of mesoscale (AROME/Météo-France) and global (ERA5/ECMWF) weather prediction models and the IASI instrument onboard the METOP series satellites. During a similar winter meteorological configuration that induced major pollution events in Île-de-France, the optical properties of aerosols were monitored. Finally, a multi-instrument measurement campaign, involving aircrafts, was carried out on the shores of the Annecy lake, with an original strategy coupling remote sensing and *in situ* observations. They allowed preliminary analyses of the water cycle in a complex mountainous environment, including the links between atmospheric water vapor, clouds, aerosols and the lake. A meteorological Raman Lidar turns out to be a suitable tool to study these processes.

**Keywords:** Raman lidar, aerosols, temperature, water cycle, relative humidity, hygroscopicity

# Liste des variables

Variable	1 <sup>ère</sup> apparition	Définition et unité(s)
$\Delta z$	éq.1 - p.39	Résolution spatiale du lidar [m]
$\Delta t_0$	éq.1 - p.39	Durée de l'impulsion laser [s]
$\Delta t_r$	éq.1 - p.39	Durée de la fenêtre d'échantillonnage [s]
$c$	éq.1 - p.39	Vitesse de la lumière dans l'air [ $m.s^{-1}$ ]
$f_e$	éq.2 - p.39	Fréquence d'échantillonnage [ $s^{-1}$ ]
$\theta$	éq.3 - p.40	Angle d'inclinaison de la ligne de visée du lidar [ ]
$z$	éq.3 - p.40	Altitude par rapport au niveau moyen de la mer [m]
$z_0$	éq.3 - p.40	Altitude du lidar [m]
$A$	éq.3 - p.40	Surface utile de l'optique de réception du lidar [ $m^2$ ]
$T_o$	éq.3 - p.40	Transmission des optiques d'émissions [ ]
$T_r$	éq.3 - p.40	Transmission des optiques de réceptions [ ]
$F$	éq.3 - p.40	Facteur géométrique / fonction de recouvrement [ ]
$\tau_j$	éq.3 - p.40	Épaisseur optique du milieu diffusant $j$ [ ]
$\lambda$	éq.3 - p.40	Longueur d'onde [nm]
$\beta_j$	éq.3 - p.40	Coefficient de rétrodiffusion du milieu $j$ [ $km^{-1}.sr^{-1}$ ]
$\alpha_j$	éq.3 - p.40	Coefficient d'extinction du milieu $j$ [ $km^{-1}$ ]
$h_r$	éq.3 - p.40	Réponse impulsionnelle de l'atmosphère [ $s^{-1}$ ]
$P_r$	éq.4 - p.40	Puissance rétrodiffusée par l'atmosphère [W]
$P_e$	éq.4 - p.40	Puissance émise par impulsion laser [W]
$E_e$	éq.5 - p.40	Énergie émise par impulsion laser [J]
$h_c$	éq.6 - p.41	Réponse impulsionnelle en comptage de photon [ $J^{-1}$ ]
$h$	éq.6 - p.41	Constante de Planck $h \sim 6,626 \cdot 10^{-34}$ [J.s]
$\eta$	éq.6 - p.41	Rendement quantique du photodétecteur [ ]
$N_d$	éq.7 - p.41	Nombre de photons détectés [ ]
$h_a$	éq.8 - p.42	Réponse impulsionnelle en mode analogique [A.J <sup>-1</sup> ]
$T_e$	éq.8 - p.42	Période d'échantillonnage en mode analogique [s]
$G_A$	éq.8 - p.42	Gain du préamplificateur [ ]
$G$	éq.8 - p.42	Sensibilité du détecteur [A.W <sup>-1</sup> ]
$e$	éq.9 - p.42	Charge élémentaire de l'électron $e \sim 1.6 \cdot 10^{-19}$ [C]
$G_i$	éq.9 - p.42	Gain intrinsèque du détecteur [ ]
$R_c$	éq.10 - p.42	Résistance de charge [ $\Omega$ ]
$S$	éq.11 - p.42	Signal lidar [V] en mode analogique
$K_S$	éq.11 - p.42	Constante système [ $m^3$ ] en mode analogique, [ $V.m^3$ ] en mode comptage de photons
$F_c$	éq.11 - p.42	Contribution de la lumière diffuse du ciel au signal lidar (fond de ciel) [V] en mode analogique
$P_{FC}$	éq.13 - p.42	Puissance attribuable au fond de ciel [W]
$L_{FC}$	éq.13 - p.42	Luminance spectrale du fond de ciel [ $W.m^{-2}.sr^{-1}.nm^{-1}$ ]
$\varphi$	éq.13 - p.42	Ouverture angulaire du système optique de réception [ ]
$S_2$	éq.15 - p.43	Signal lidar corrigé du fond de ciel et de l'angle solide [ $V.m^2$ ]
$\sigma_G$	éq.20 - p.46	Écart-type du bruit de grenaille (shot noise) [V]



Liste des variables

---

$\zeta$	éq.20 - p.46	Excès de gain du détecteur ( $\sim 1,2$ )
$p$	éq.20 - p.46	Nombre de tirs lidar moyennés pour calculer un profil moyen
$\sigma_O$	éq.22 - p.47	Ecart-type du bruit d'obscurité [V]
$NEP_D$	éq.22 - p.47	Puissance équivalente de bruit du détecteur [W.Hz <sup>-1/2</sup> ]
$\sigma_{NJ}$	éq.23 - p.47	Ecart-type du bruit de Nyquist – Johnson [V]
$k_B$	éq.23 - p.47	Constante de Boltzmann, $k_B = 1,380649 \cdot 10^{-23}$ [J.K <sup>-1</sup> ]
$T$	éq.23 - p.47	Température [K]
$\sigma_A$	éq.24 - p.47	Ecart-type du bruit d'amplification [V]
$NEP_D$	éq.24 - p.47	Puissance équivalente de bruit d'amplification [V.Hz <sup>-1/2</sup> ]
$\sigma_N$	éq.25 - p.47	Ecart-type du bruit de numérisation [V]
$\Delta S$	éq.25 - p.47	Dynamique du signal lidar mesuré [V]
$n_b$	éq.25 - p.47	Nombre de bits du numérisateur [ ]
$SNR$	éq.26 - p.48	Rapport signal à bruit (Signal-to-noise ratio) [ ]
$\gamma$	éq.27 - p.51	Coefficient d'absorption [m <sup>-1</sup> ]
$N_i$	éq.27 - p.51	Concentration en nombre de l'espèce $i$ [m <sup>-3</sup> ]
$\sigma_{abs,i}$	éq.27 - p.51	Section efficace d'absorption de l'espèce $i$ [m <sup>2</sup> ]
$\beta_t$	éq.28 - p.51	Coefficient de diffusion total [m <sup>-1</sup> ]
$\sigma_{diff,i}$	éq.28 - p.51	Section efficace de diffusion de l'espèce $i$ [m <sup>2</sup> ]
$\Omega_{diff}$	éq.29 - p.51	Angle solide de diffusion [sr]
$\beta$	éq.29 - p.51	Coefficient de rétrodiffusion total [m <sup>-1</sup> .sr <sup>-1</sup> ]
$\sigma_R$	éq.30 - p.51	Section efficace de diffusion moléculaire Rayleigh [m <sup>2</sup> ]
$N$	éq.30 - p.51	Concentration moléculaire [m <sup>-3</sup> ]
$m$	éq.30 - p.51	Indice de réfraction de l'air [ ]
$\delta$	éq.30 - p.51	Facteur de dépolarisation, $\delta \sim 0,0279$ [ ]
$\alpha$	éq.33 - p.52	Coefficient d'extinction total [m <sup>-1</sup> ]
$\alpha_m$	éq.34 - p.52	Coefficient d'extinction moléculaire [m <sup>-1</sup> ]
$\beta_m$	éq.34 - p.52	Coefficient de rétrodiffusion moléculaire [m <sup>-1</sup> .sr <sup>-1</sup> ]
$BER_m$	éq.34 - p.52	Backscatter to extinction ratio moléculaire [sr <sup>-1</sup> ]
$K_f$	éq.34 - p.52	Facteur de de correction de King [ ]
$\tau$	éq.36 - p.53	Epaisseur optique totale (molécules et particules) [ ]
$\tilde{a}$	éq.36 - p.53	Exposant ou coefficient d'Angström [ ]
$BER_a$	éq.40 - p.54	Backscatter to extinction ratio des aérosols [sr <sup>-1</sup> ]
$LR$	éq.40 - p.54	Ratio lidar, inverse du $BER_a$ [sr]
$\omega_0$	éq.40 - p.54	Albédo de simple diffusion [ ]
$\beta_{app}$	éq.42 - p.56	Coefficient de rétrodiffusion apparent [m <sup>-1</sup> .sr <sup>-1</sup> ]
$VDR$	éq.44 - p.56	Ratio de dépolarisation volumique [ ]
$\beta_{\perp}$	éq.44 - p.56	Coefficient de rétrodiffusion total de la voie perpendiculaire [m <sup>-1</sup> .sr <sup>-1</sup> ]
$\beta_{//}$	éq.44 - p.56	Coefficient de rétrodiffusion total de la voie parallèle [m <sup>-1</sup> .sr <sup>-1</sup> ]
$T_{\perp}$	éq.44 - p.56	Transmission optiques de la voie perpendiculaire pour une lumière à polarisation parallèle [ ]
$R_k$	éq.44 - p.56	Ratio des constantes instrumentales des voies parallèles et perpendiculaire [ ]
$S_{2,//}$	éq.44 - p.56	Signal $S_2$ de la voie parallèle [V.m <sup>2</sup> ]
$T_{//}$	éq.44 - p.56	Transmission optiques de la voie parallèle pour une lumière à polarisation parallèle [ ]
$S_{2,\perp}$	éq.44 - p.56	Signal $S_2$ de la voie perpendiculaire [V.m <sup>2</sup> ]

---

Liste des variables

---

$E_{vib}$	éq.49 - p.58	Energie associé à un état vibrationnel d'une molécule[J]
$\tilde{\nu}_{vib}$	éq.49 - p.58	Fréquence propre de vibration d'une molécule [ $\text{cm}^{-1}$ ]
$c_0$	éq.49 - p.58	Vitesse de la lumière dans le vide [ $\text{m.s}^{-1}$ ]
$\nu$	éq.49 - p.58	Nombre quantique de vibration [ ]
$\eta_{N_2}$	éq.50 - p.60	Coefficient multiplicatif pour la lumière Raman $N_2$ rétrodiffusée [ ]
$\eta_{H_2O}$	éq.50 - p.60	Coefficient multiplicatif pour la lumière Raman $H_2O$ rétrodiffusée [ ]
$\sigma_{Raman,i}$	éq.52 - p.60	Section efficace de diffusion Raman pour la molécule $i$ [ $\text{m}^2$ ]
$N_{N_2}$	éq.53 - p.61	Concentration en molécule de $N_2$ [ $\text{m}^{-3}$ ]
$N_{air}$	éq.53 - p.61	Concentration en molécule d'air [ $\text{m}^{-3}$ ]
$r_{N_2}$	éq.53 - p.61	Rapport de mélange de diazote [ ]
$M_{air}/M_a$	éq.53 - p.61	Masse molaire de l'air [ $\text{g.mol}^{-1}$ ]
$M_{N_2}$	éq.53 - p.61	Masse molaire du diazote [ $\text{g.mol}^{-1}$ ]
$\tau_{a,N_2}$	éq.54 - p.61	Epaisseur optique des aérosols calculé par Raman $N_2$ [ ]
$\beta_{N_2}$	éq.54 - p.61	Coefficient de rétrodiffusion Raman $N_2$ [ $\text{m}^{-1}.\text{sr}^{-1}$ ]
$r_{H_2O}$	éq.57 - p.62	Rapport de mélange de vapeur d'eau [ ou $\text{g.kg}^{-1}$ ]
$m_{H_2O}$	éq.57 - p.62	Masse de vapeur d'eau de la parcelle d'air considérée [kg]
$m_{air}$	éq.57 - p.62	Masse de l'air sec de la parcelle d'air considérée [kg]
$M_{H_2O}$	éq.57 - p.62	Masse molaire de l'eau [ $\text{g.mol}^{-1}$ ]
$N_{H_2O}$	éq.57 - p.62	Concentration en molécule de vapeur d'eau [ $\text{m}^{-3}$ ]
$E_{rot,v,i}$	éq.60 - p.69	Niveau d'énergie rotationnel pour un nombre de vibration $\nu$ et une molécule $i$ [J]
$B_{\nu,i}$	éq.60 - p.69	Constante de rotation de la molécule $i$ dans un niveau vibrationnel $\nu$ [ $\text{m}^{-1}$ ]
$D_{\nu,i}$	éq.60 - p.69	Constante de distorsion de la molécule $i$ dans un niveau vibrationnel $\nu$ [ $\text{m}^{-1}$ ]
$J$	éq.60 - p.69	Nombre quantique rotation [ ]
$\Delta\nu$	éq.61 - p.69	Différence des nombres quantiques de vibration lors d'une transition entre niveaux d'énergie ro-vibrationnels [ ]
$\nu_f$	éq.61 - p.69	Nombre quantique de vibration du niveau final de la transition [ ]
$\nu_i$	éq.61 - p.69	Nombre quantique de vibration du niveau initial de la transition [ ]
$\Delta J$	éq.62 - p.69	Différence des nombres quantiques de rotation lors d'une transition entre niveaux d'énergie ro-vibrationnels [ ]
$J_h$	éq.62 - p.69	Nombre quantique de rotation du niveau énergétique le plus haut lors d'une transition [ ]
$J_b$	éq.62 - p.69	Nombre quantique de rotation du niveau énergétique le plus bas lors d'une transition [ ]
$\Delta\nu_{St,i}$	éq.63 - p.69	Décalage en fréquence du côté Stokes lors d'une transition de niveau rotationnel de la molécule $i$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]
$\Delta\nu_{Ast,i}$	éq.64 - p.70	Décalage en fréquence du côté anti-Stokes lors d'une transition de niveau rotationnel de la molécule $i$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]
$\sigma_{RR,i}$	éq.65 - p.70	Section efficace de diffusion Raman rotationnel de la molécule $i$ [ $\text{cm}^2$ ]
$g_i$	éq.65 - p.70	Poids statistique lié au spin nucléaire de la molécule $i$ [ ]
$I_i$	éq.65 - p.70	Spin nucléaire de la molécule $i$ [ ]
$\nu_0$	éq.65 - p.70	Nombre d'onde de la lumière incidente [ $\text{cm}^{-1}$ ]
$\gamma_i$	éq.65 - p.70	Anisotropie du tenseur de polarisabilité de Placzek de la molécule $i$ [ $\text{cm}^3$ ]

---

Liste des variables

---

$T_{atm}$	éq.68 - p.71	Transmission optique de l'atmosphère [ ]
$T_{RRi}$	éq.68 - p.71	Transmission du filtre interférentiel de la voie $i$ [ ]
$Q$	éq.69 - p.72	Ratio des deux voies Raman rotationnelle
$a, b, c$	éq.71 - p.75	Coefficients d'étalonnage en température du ratio $Q$
$CWL$	éq.72 - p.78	Longueur d'onde centrale du filtre interférentielle [nm]
$CWL_0$	éq.72 - p.78	Longueur d'onde centrale du filtre interférentielle pour une incidence normale [nm]
$N_{eff}$	éq.72 - p.78	Indice effectif du filtre interférentiel [ ]
$S_{obs}$	éq.74 - p.90	Signal lidar observé [V]
$S_{sim,bruité}$	éq.74 - p.90	Signal lidar simulé et bruité calé sur le signal observé [V]
$S_{sim}$	éq.74 - p.90	Signal simulé non bruité [V]
$B$	éq.74 - p.90	Matrice de bruit blanc Gaussien [ ]
$SNR_Q$	éq.76 - p.92	Rapport signal à bruit pour le ratio $Q$ [ ]
$\Delta T$	éq.77 - p.92	Erreur sur la température $T$ [K]
$\Delta Q$	éq.77 - p.92	Erreur sur le ratio $Q$ [K]
$RMSD$	éq.78 - p.94	Erreur quadratique moyenne non centrée [K] pour la température
$Biais$	éq.79 - p.97	Biais moyen [K] pour la température
$COR$	éq.5 - p.120	Coefficient de corrélation de Pearson [ ]
$RMSE$	éq.6 - p.120	Erreur quadratique moyenne centrée [K] pour la température
$RH$	éq.80 - p.166	Humidité relative [%]
$P_v$	éq.80 - p.166	Pression partielle de vapeur d'eau [Pa]
$P_s$	éq.80 - p.166	Pression de vapeur saturante [Pa]
$P$	éq.81 - p.167	Pression à l'altitude $z$ [Pa]
$P_0$	éq.81 - p.167	Pression à l'altitude de référence $z_0$ [Pa]
$g$	éq.81 - p.167	Accélération de la pesanteur terrestre [m.s <sup>-2</sup> ]
$R$	éq.81 - p.167	Constante des gaz parfaits $R = 8,314$ [J.mol <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> ]
$n_v$	éq.82 - p.167	Nombre de moles de vapeur d'eau [mol]
$n_a$	éq.82 - p.167	Nombre de moles d'air [mol]
$\Delta RH$	éq.86 - p.168	Erreur sur l'humidité relative [%]
$\Delta T$	éq.86 - p.168	Erreur sur la température [K]
$\Delta r_{H_2O}$	éq.86 - p.168	Erreur sur le rapport de mélange de vapeur d'eau [ ]
$\Delta P$	éq.86 - p.168	Erreur sur la pression [Pa]
$f_\xi$	éq.88 - p.176	Facteur d'accroissement de Hänel pour la propriété $\xi$ [ ]
$RH_{ref}$	éq.88 - p.176	Humidité relative de référence [%]
$\gamma$	éq.88 - p.176	Exposant de Hänel, indicateur de l'hygroscopicité des aérosols [ ]
$\sigma_{extinction,a}$	éq.89 - p.176	Section efficace d'extinction des aérosols [m <sup>2</sup> ]
$\alpha_a$	éq.89 - p.176	Coefficient d'extinction des aérosols [m <sup>-1</sup> ]
$N_a$	éq.89 - p.176	Concentration en aérosols [m <sup>3</sup> ]

---

# Sommaire

REMERCIEMENTS .....	1
RESUME.....	3
ABSTRACT .....	4
LISTE DES VARIABLES .....	5
SOMMAIRE.....	9
CHAPITRE 1 : INTRODUCTION GENERALE .....	11
1.1 CONTEXTE ET ENJEUX SCIENTIFIQUES.....	11
1.2 L'EAU DANS LE SYSTEME TERRE.....	13
1.3 LES AEROSOLS ATMOSPHERIQUES .....	16
1.4 LES INTERACTIONS AEROSOLS – VAPEUR D'EAU.....	21
1.5 OBJECTIFS ET ORGANISATION DE LA THESE.....	23
CHAPITRE 2 : LIDAR – THEORIE .....	26
2.1 INTRODUCTION .....	27
2.2 GENERALITES SUR LES LIDARS .....	28
2.3 RAPPELS THEORIQUES .....	38
2.4 LIDAR RAYLEIGH-MIE.....	50
2.5 LIDAR RAMAN VIBRATIONNEL .....	58
2.6 CONCLUSION .....	63
CHAPITRE 3 : MESURE DE TEMPERATURE PAR LIDAR RAMAN ROTATIONNEL - BILAN DE LIAISON.....	65
3.1 INTRODUCTION .....	66
3.1 LIDAR RAMAN ROTATIONNEL.....	67

---

3.2	CARACTERISTIQUES DES VOIES RAMAN ROTATIONNELLES DU WALI.....	76
3.3	BILAN DE LIAISON DU WALI .....	82
3.4	CONCLUSION .....	101
CHAPITRE 4 : MESURE DE TEMPERATURE LORS D'UNE SITUATION METEOROLOGIQUE EXTREME.....		
		103
4.1	INTRODUCTION .....	104
4.2	ARTICLE : LIDAR GROUND-BASED AND IASI SPACEBORNE TEMPERATURE SAMPLING OF THE COLD WAVE OF FEBRUARY 2018 - LINK TO MESOSCALE MODELLING .....	105
4.3	CONCLUSION .....	131
CHAPITRE 5 : PROPRIETES OPTIQUES DES AEROSOLS, LIEN AVEC L'HUMIDITE RELATIVE.....		
		134
5.1	INTRODUCTION .....	135
5.2	SUIVI DES PROPRIETES OPTIQUES DES AEROSOLS.....	136
5.3	EVOLUTION DES PROPRIETES OPTIQUES DES AEROSOLS EN FONCTION DE L'HUMIDITE RELATIVE .....	165
5.4	CONCLUSION .....	179
CHAPITRE 6 : CONCLUSION GENERALE .....		
		181
6.1	SYNTHESE .....	181
6.2	PERSPECTIVES.....	182
BIBLIOGRAPHIE.....		184
LISTE DES FIGURES .....		203
LISTE DES TABLEAUX.....		209
ANNEXE A : LISTE DES PUBLICATIONS .....		210

---

---

# Chapitre 1 : Introduction générale

<b>1.1</b>	<b>CONTEXTE ET ENJEUX SCIENTIFIQUES</b> .....	<b>11</b>
<b>1.2</b>	<b>L’EAU DANS LE SYSTEME TERRE</b> .....	<b>13</b>
1.2.1	LE CYCLE DE L’EAU .....	13
1.2.2	ENJEUX CLIMATIQUE ET METEOROLOGIQUE DE LA VAPEUR D’EAU .....	14
<b>1.3</b>	<b>LES AEROSOLS ATMOSPHERIQUES</b> .....	<b>16</b>
1.3.1	SOURCES ET MECANISMES DE FORMATIONS.....	16
1.3.2	IMPACTS CLIMATIQUES ET METEOROLOGIQUES DES AEROSOLS .....	19
<b>1.4</b>	<b>LES INTERACTIONS AEROSOLS – VAPEUR D’EAU</b> .....	<b>21</b>
<b>1.5</b>	<b>OBJECTIFS ET ORGANISATION DE LA THESE</b> .....	<b>23</b>
1.5.1	OBJECTIFS SCIENTIFIQUES.....	23
1.5.2	PLAN DU MANUSCRIT.....	24

## 1.1 Contexte et enjeux scientifiques

Après l’esquisse des grandes lignes du fonctionnement du climat terrestre, c’est il y a seulement quelques décennies que l’Humanité comprend que les conditions environnementales lui permettant prospérité à la surface de la Terre sont fragiles (Meadows, Meadows, et Goldsmith 1972). Si fragiles que ses activités exponentiellement croissantes depuis l’ère industrielle ont perturbé peu à peu l’équilibre climatique naturel et la biodiversité avec des conséquences qui menacent maintenant la pérennité des écosystèmes et des sociétés y étant adossées. La présence d’une atmosphère contenant de l’eau sous ses trois phases, pourtant si fine au regard des dimensions de la planète, permet d’obtenir une température moyenne de surface d’environ 15°C favorable à l’émergence de la vie. Si l’effet de serre est en ce sens salutaire, une surabondance de gaz à effet de serre (GES) à longue durée de vie (> 10 ans), comme le dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>) ou le méthane (CH<sub>4</sub>), vient déstabiliser l’équilibre radiatif terrestre. Émis en surplus par les activités humaines et avec un temps de résidence dans l’atmosphère de l’ordre de la centaine d’année, le CO<sub>2</sub> est responsable d’un dérèglement climatique certain, entraînant une hausse sensible des températures à la surface de la

Terre de l'ordre de 0,9°C en moyenne depuis l'ère préindustriel (Wild et al. 2013). Néanmoins, d'autres composants de l'atmosphère sont susceptibles d'influencer le climat de manière plus complexe : c'est le cas des aérosols. Directement, ou indirectement en interagissant avec la vapeur d'eau atmosphérique et les nuages, ces particules solides ou liquides en suspension dans l'air sont au cœur de processus de rétroaction climatique qui nécessitent des recherches approfondies. Dans son dernier rapport d'évaluation en 2013, le Groupe d'expert Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat (GIEC), mandaté par l'Organisation des Nations Unis (ONU), met en avant les interactions aérosols – vapeur d'eau – nuages comme la principale source d'incertitude dans l'estimation du forçage radiatif global (IPCC, 2013). Les difficultés sont multiples ; on note notamment, à la différence du mélange homogène du CO<sub>2</sub> à l'échelle du globe, de grandes hétérogénéités des concentrations d'aérosols dans l'atmosphère. Elles sont principalement liées à la diversité des sources et à au faible temps de résidence des particules dans l'atmosphère (quelques jours). A ceci s'ajoute les nombreux processus de vieillissement et les interactions complexes entre les aérosols et certains composés gazeux de l'atmosphère. En particulier, les aérosols interagissent fortement avec le cycle de l'eau atmosphérique (vapeur d'eau, nuages, précipitations) par des mécanismes encore mal compris aussi bien du point de vue climatique, pour contraindre au mieux leur forçage radiatif dans les modèles, que du point de vue météorologique pour notamment comprendre leur impact dans des événements de pluviométrie extrême. En effet, si leur rôle dans la formation des nuages est bien démontré depuis des décennies (e.g. Twomey, 1974), leur effet potentiel dans le déclenchement des pluies reste incertain comme l'a montré une étude récente conduite dans le cadre du programme « Hydrological cycle in the Mediterranean eXperiment » (HyMeX) par Flamant et al. (2015).

Il apparaît nécessaire de continuer à innover scientifiquement et technologiquement pour concevoir des moyens d'observations avec une précision accrue et des résolutions spatiotemporelles offrant la possibilité d'accroître notre compréhension des processus atmosphériques. Ces moyens d'observations permettent, conjointement à la modélisation physique des phénomènes, de perfectionner les prévisions depuis l'échelle de temps météorologique (de l'ordre de l'heure) jusqu'à l'échelle de temps climatique (de l'ordre de 10 ans). L'Organisation Mondiale de la Météorologie (OMM), autre instance onusienne, pilote et oriente à l'échelle internationale les efforts de la communauté des sciences de l'atmosphère en fournissant des critères d'amélioration du suivi de paramètres atmosphériques clés. On retrouve dans ces recommandations des exigences en termes de précision et de résolution verticale et temporelle que doivent satisfaire des innovations de rupture, notamment pour la mesure des profils de température, de rapport de mélange de vapeur d'eau et de propriétés optiques des aérosols. C'est dans ce contexte que s'inscrit le travail de l'équipe

lidar du Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE), en particulier avec ce travail de thèse. Dans cette partie introductive les enjeux liés à la vapeur d'eau, aux aérosols et leurs interactions seront successivement détaillés. Les objectifs scientifiques de cette thèse et l'organisation de ce document seront ensuite présentés.

## 1.2 L'eau dans le système Terre

Intrinsèquement liée à la vie, l'eau est une molécule très singulière ; c'est par exemple un des seuls corps purs à être plus dense à l'état liquide qu'à l'état solide. Sur Terre elle est extrêmement abondante et ses trois états coexistent simultanément.

### 1.2.1 Le cycle de l'eau

Englobée dans le terme hydrosphère, l'eau est présente dans différents endroits du globe classés en réservoirs. On compte cinq réservoirs qui sont par ordre d'abondance en volume d'eau (de Marsily 2017): les océans et les mers (~97 % – état liquide), la cryosphère (calottes glaciaires des pôles et glaciers de montagnes – ~2 % – état solide), les eaux continentales (eaux des nappes souterraines et eaux de surfaces, lacs et rivières – ~1 % – état liquide), l'atmosphère (~0,001 % – état gazeux) et la biosphère (eau contenue dans les cellules du vivant – ~0,00004 % – état liquide). Sans surprise, les océans composant 70 % des paysages de la planète bleue sont de très loin le premier réservoir. L'atmosphère est le seul réservoir à être composé majoritairement d'eau à l'état vapeur, c'est aussi le seul réservoir dans lequel coexiste l'eau sous ses trois états dans un volume aussi réduit qu'un nuage d'orage. La Figure 1 détaille ces grands réservoirs et les flux qui s'opèrent entre eux. Ces flux impressionnants représentent le plus grand déplacement de composés chimiques sur Terre. Les principaux échanges se déroulent entre d'une part l'atmosphère et d'autre part les eaux océaniques (413 000 km<sup>3</sup>/an) et continentales (73 000 km<sup>3</sup>/an), soit sur une année l'équivalent du volume de la mer Noire vaporisé par le rayonnement solaire qui orchestre ce cycle. Ce sont les mécanismes d'évaporation et d'évapotranspiration qui provoquent les flux montants, qui retombent ensuite sous forme de précipitations après condensation de l'eau sur les aérosols lors de la formation de nuages. La cyclicité de ces processus se caractérise par un rythme rapide et résulte en un temps de résidence de l'eau dans l'atmosphère qui se compte en jours (à comparer aux temps de l'ordre de l'année aux milliers d'années pour les continents et océans). On note aussi le transport d'eau sous forme gazeuse depuis l'océan



vers les continents via l'atmosphère ( $40\,000\text{ km}^3/\text{an}$ ) qui permet en particulier l'irrigation des terres et par la suite l'écoulement des fleuves et rivières.

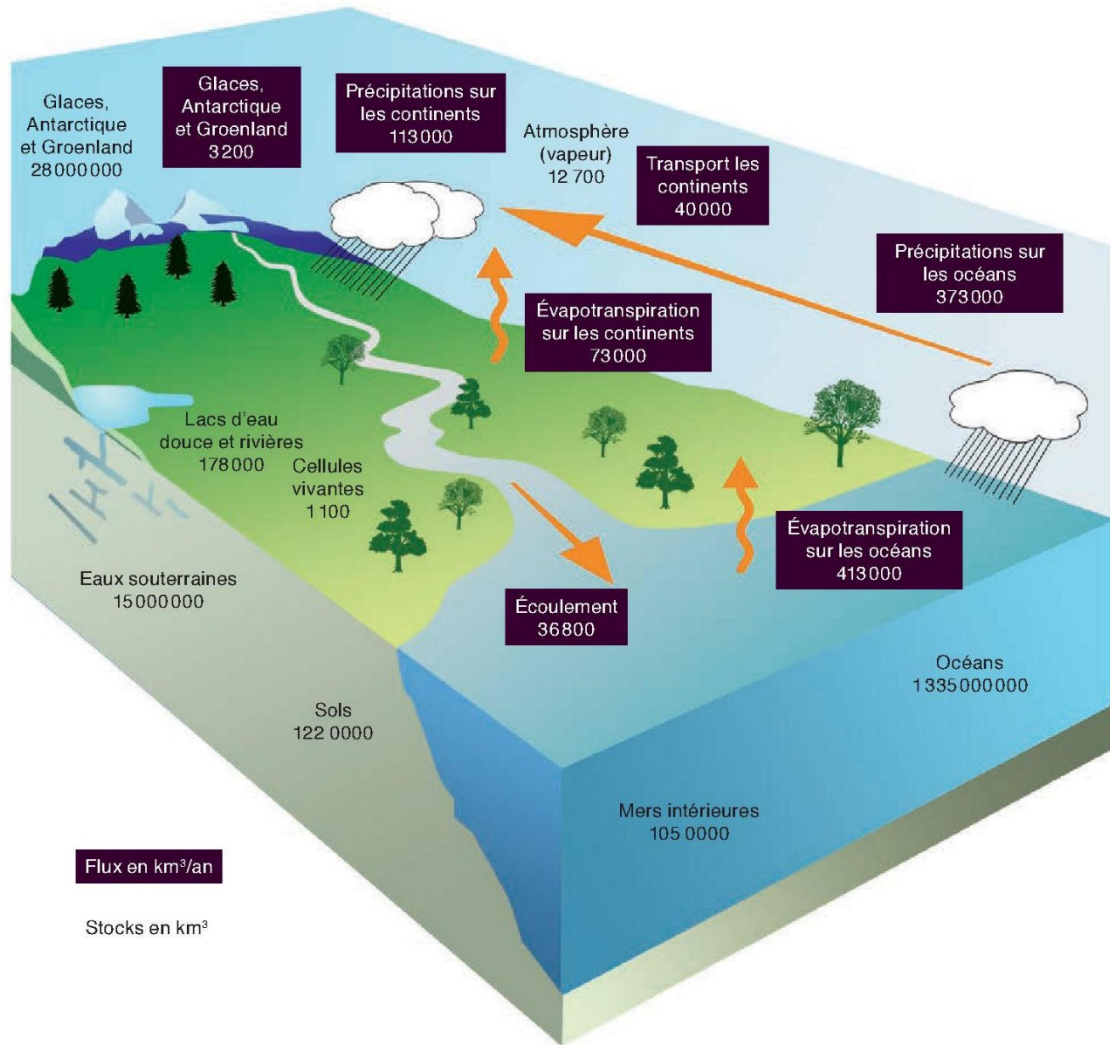


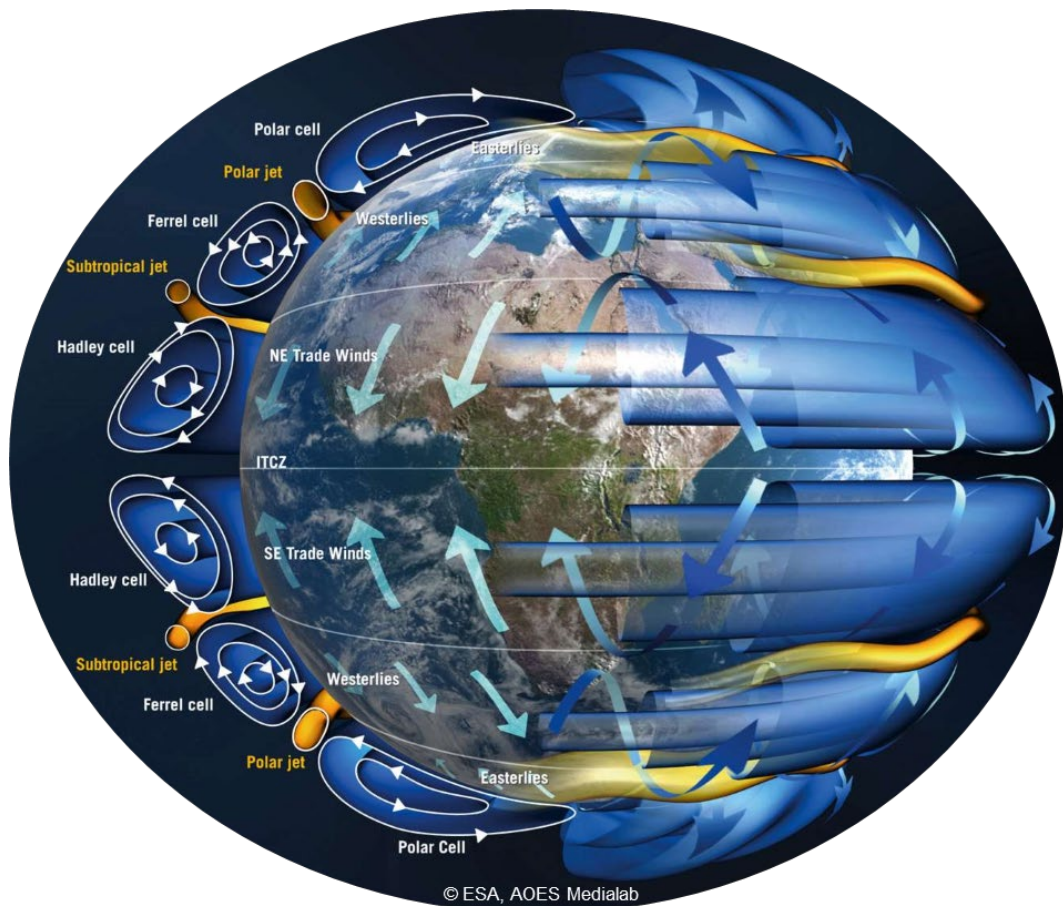
Figure 1 : Schéma du cycle de l'eau (d'après de Marsily, 2017). Les différents réservoirs d'eau dans ses trois états sont détaillés avec leur volume associé en  $\text{km}^3$  (caractères noirs). Les flux entre ces réservoirs sont représentés par des flèches orange et précisés dans les encadrés sombres en  $\text{km}^3/\text{an}$ .

Bien que le réservoir atmosphérique soit négligeable comparativement aux océans, calottes et continents, les flux qui s'opèrent à travers lui font de l'atmosphère le support principal du système climatique terrestre avec l'eau comme vecteur du transport d'énergie.

### 1.2.2 Enjeux climatique et météorologique de la vapeur d'eau

L'eau est donc le fluide caloporteur par excellence quand il s'agit de redistribuer l'énergie solaire principalement déposée au niveau de l'équateur géographique. La circulation générale représentée en Figure 2 est provoquée par cette hétérogénéité du rayonnement solaire à la surface de la Terre. L'eau évaporée en quantité le long de la zone de convergence intertropicale (ZCIT) s'élève en altitude par convection jusqu'au

sommet de la troposphère (environ 18 km pour la tropopause à l'équateur). La formation des nuages convectifs tropicaux relâche la chaleur latente emmagasinée lors de l'évaporation et le flux d'air chaud résultant échange des calories avec son environnement dans son trajet en direction des pôles. Dans la haute troposphère de l'hémisphère Nord (resp. Sud), les masses d'air sont déviées vers le Nord-Est (resp. Sud-Est) sous l'action de la force de Coriolis. Elles finissent par redescendre en suivant les courbes de gradient adiabatique sec à environ 30° de latitude au niveau des zones arides. C'est la cellule de Hadley. D'une manière analogue, la cellule polaire se forme entre 60° et 90° de latitude. Enfin, la cellule de Ferrel s'insère entre ces deux cellules convectives au niveau des moyennes latitudes avec un sens de circulation inversé.



**Figure 2 : Représentation schématisée de la circulation atmosphérique générale (illustration tirée d'AOES Medialab, ESA). On retrouve les trois grandes cellules de la circulation méridienne : Hadley, Ferrel et polaire (cylindres concentriques bleus) entrecoupées par les jets subtropicaux et polaires (cylindres jaunes). Les régimes de vent majoritaires selon les zones climatiques tropicales, tempérées et polaires sont aussi détaillés (flèches bleu clair).**

La présence de vapeur d'eau dans l'atmosphère, bien que 80 % de son volume soit concentré dans les trois premiers kilomètres, entraîne une absorption du rayonnement infrarouge tellurique faisant de la vapeur d'eau le premier contributeur de l'effet de serre naturel. Cela représente 75 W/m<sup>2</sup> (60 %) pour la vapeur d'eau contre 32,5 W/m<sup>2</sup> (26 %) pour le CO<sub>2</sub>, 10 W/m<sup>2</sup> (8 %) pour l'ozone et 7,5 W/m<sup>2</sup> (6%) pour le

méthane et les oxydes nitreux (IPCC, 2001). Une des conséquences du réchauffement climatique dans ce contexte est la perturbation de la chimie de l’ozone au niveau de la haute troposphère et basse stratosphère (UTLS – Upper Troposphere Lower Stratosphere) par l’augmentation de la concentration en vapeur d’eau à ces altitudes (Kirk-Davidoff et al. 1999).

Du point de vue météorologique, le cycle de l’eau atmosphérique est central dans la prévision du temps. En particulier, les mécanismes de convection profonde à l’origine de la formation de puissants systèmes orageux sont localement capables de déverser une quantité de précipitation souvent préjudiciable aux activités humaines (agriculture, transport) et avec des conséquences parfois sinistres (inondations, coulées de boues). Ces phénomènes locaux sont difficilement représentés avec justesse par les modèles et, bien que la nouvelle génération de modèles de prévision du temps ait fait des avancées remarquables (e.g. Brousseau et al., 2016), des moyens d’observations doivent être déployés en amont de ce type de systèmes pour en améliorer notre compréhension. C’est dans ce but que sont menés des projets scientifiques d’envergure comme la composante HyMeX (Drobinski et al., 2014) du programme Chantier Méditerranée. La mobilisation de moyens d’observations et leur couplage à la modélisation ont permis d’approfondir nos connaissances des processus météorologiques directement reliés à la vapeur d’eau (Chazette et al. 2016; Lee et al. 2019) mais aussi de leurs interactions avec les aérosols (Stelitano et al. 2019; Flamant et al. 2015).

### 1.3 Les aérosols atmosphériques

Les aérosols sont par définition toutes les particules, solides ou liquides, en suspension dans un milieu gazeux et présentant une vitesse de chute négligeable. Les gouttelettes d’eau et cristaux de glace qui forment les nuages font exception et ne sont pas considérés comme des aérosols.

#### 1.3.1 Sources et mécanismes de formations

On distingue deux grandes catégories d’aérosols (Figure 3) : ceux émis naturellement par la Terre (les sels marins, les poussières désertiques, les cendres volcaniques ou les suies des feux de forêt) et les aérosols anthropiques émanant des activités humaines, avec en premiers contributeurs les industries, le chauffage résidentiel et le trafic.

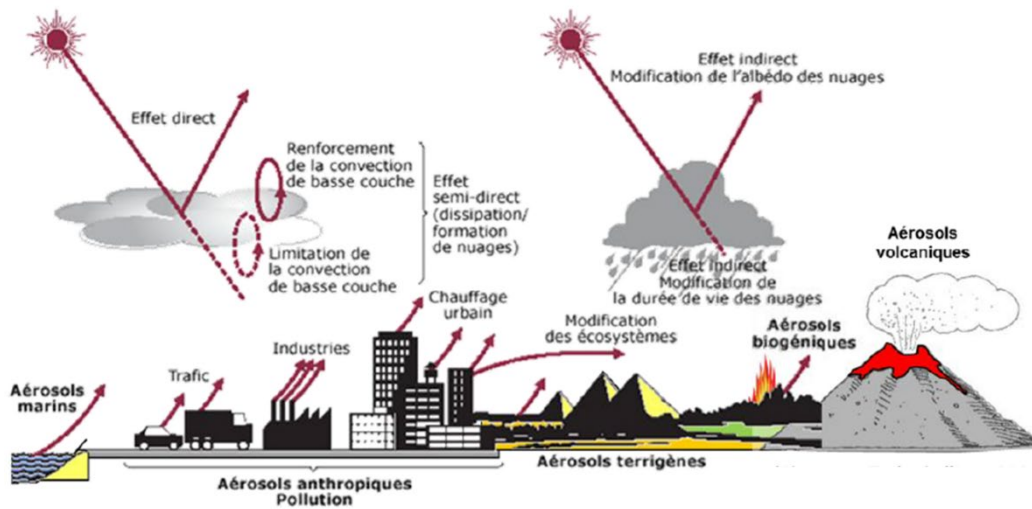


Figure 3 : Croquis représentant les différentes sources d'aérosols naturels (marins, terrigènes, biogéniques et volcaniques) et anthropiques (trafic, chauffage et industries) ainsi que leurs impacts sur le climat (illustration tirée de Chazette, 2004).

Les aérosols naturels sont largement prépondérants (~90 % des émissions en termes de masse) mais la fraction anthropique génère d'une part des perturbations de l'équilibre climatique naturel et d'autre part de sérieux problèmes de qualité de l'air dans les zones urbaines où ils sont majoritairement émis. A l'échelle du globe, quel que soit leur type, les aérosols sont distribués de manière extrêmement hétérogène et bien que des panaches puissent voyager sur de longues distances, portés par les vents de la troposphère libre et de la stratosphère (Philippe Royer et al. 2011), leur temps de résidence dans l'atmosphère de l'ordre de la semaine ne permet pas leur mélange homogène. Ces temps courts au regard de la durée de vie moyenne de GES comme le CO<sub>2</sub> s'expliquent par divers mécanismes d'élimination des aérosols atmosphériques : le dépôt humide (précipitation, nucléation nuageuse, coalescence) ou le dépôt sec (sédimentation, impaction, coagulation et coalescence, diffusion turbulente).

A cela s'ajoute la vaste variété de taille et composition chimique de ces particules. La Figure 4 (Buseck et Adachi 2008) résume cette dynamique de taille qui varie sur quatre ordres de grandeur, de quelques nanomètres à plusieurs dizaines de microns. Cette même figure explicite les différents mécanismes de production des aérosols, qu'ils soient primaires (émis directement dans l'atmosphère) ou secondaires (résultat d'une conversion gaz/particules). On retrouve quatre modes de tailles principaux : le mode de nucléation, le plus fin autour de quelques nanomètres, dont les particules sont issues des processus de combustion par la nucléation homogène de gaz à très haute température ou nucléation hétérogène de gaz à température ambiante (par exemple dans l'atmosphère). De taille moléculaire, ces particules diffusent et condensent ou coagulent sous l'effet du mouvement Brownien pour former le mode d'Aitken autour de la dizaine de nanomètres. A partir de ce mode il peut se former de petites gouttelettes par condensation ou

des particules solides par coagulations successives, plus grosses encore, de l'ordre du dixième de micron, c'est le mode d'accumulation. Le mode grossier, au-dessus d'un micron, est le résultat de phénomènes mécaniques : abrasion, érosion éolienne des sols, éruption volcanique. La distribution massique est pilotée par le mode grossier, la distribution surfacique par le mode d'accumulation et la distribution en nombre par les modes de nucléation et d'Aitken. Selon le domaine d'application, on pourra se limiter à considérer l'une ou l'autre de ces classes ; c'est par exemple le mode d'accumulation, et ses particules de taille comparable aux longueurs d'ondes du visible, qui contribuera un maximum aux interactions directes avec le rayonnement solaire.

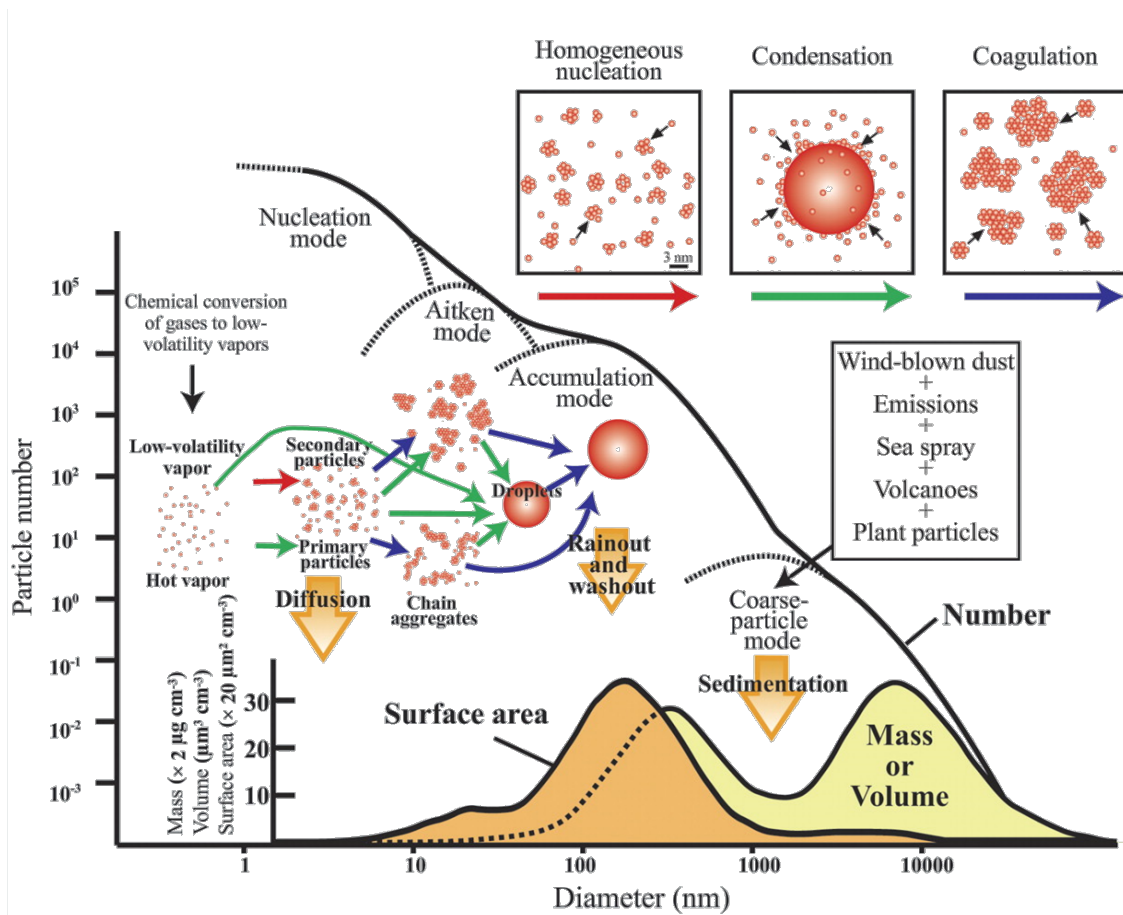


Figure 4 : Représentation des différents mécanismes de formation des aérosols selon leurs tailles. Ces mécanismes sont associés à des tailles typiques incarnées par les modes dans les différentes représentations en nombre, en surface ou en volume de la granulométrie des aérosols (Figure tirée des travaux de Buseck and Adachi, 2008).

La modélisation des aérosols est rendue complexe par la grande variabilité de leurs origines, leur répartition hétérogène, leurs compositions chimiques, tailles et formes multiples, et la diversité des processus physico-chimiques auxquelles ils sont soumis (croissance, vieillissement, transport, dépôt, hygroscopicité). Pour répondre aux enjeux scientifiques et sociétaux majeurs des aérosols que sont leurs impacts climatiques et sanitaires, des observations robustes ont permis d'améliorer la représentation des processus associés aux

aérosols dans les modèles. De grandes campagnes internationales permettent des avancées notables, comme « The Indian Ocean Experiment » (INDOEX, Ramanathan et al., 2001) qui a permis de documenter le nuage de pollution asiatique (souvent appelé « the great Indo-Asian haze ») et notamment ses effets climatiques direct (e.g. Léon et al., 2002) et indirect (e.g. Chylek et al., 2006). Au niveau de l'impact sur la qualité de l'air, les études sont souvent spécifiques à des centres urbains avec par exemple pour la région parisienne le programme MEGAPOLI (« Megacities: Emissions, urban, regional and Global Atmospheric POLLution and climate effects, and Integrated tools for assessment and mitigation », Freney et al., 2014; Von Der Weiden-Reinmüller et al., 2014) qui vise notamment à caractériser les impacts d'épisodes de pollution intense (Skylakou et al. 2014; Bressi et al. 2014). Dans ces opérations d'envergure, le déploiement d'instruments de mesure et en particulier de télédétection (Pelon et al. 2002; Royer et al. 2011) permet d'établir des bases de données de référence pour améliorer la représentation des processus dans les modèles, que ce soit via l'assimilation de données (Wang, Sartelet, Bocquet, Chazette, et al. 2014) ou l'amélioration des paramétrisations.

### 1.3.2 Impacts climatiques et météorologiques des aérosols

Les effets radiatifs des aérosols sont illustrés sur la Figure 5. Ces effets directs, semi-directs et indirects sont à même d'influencer le climat et la météorologie.

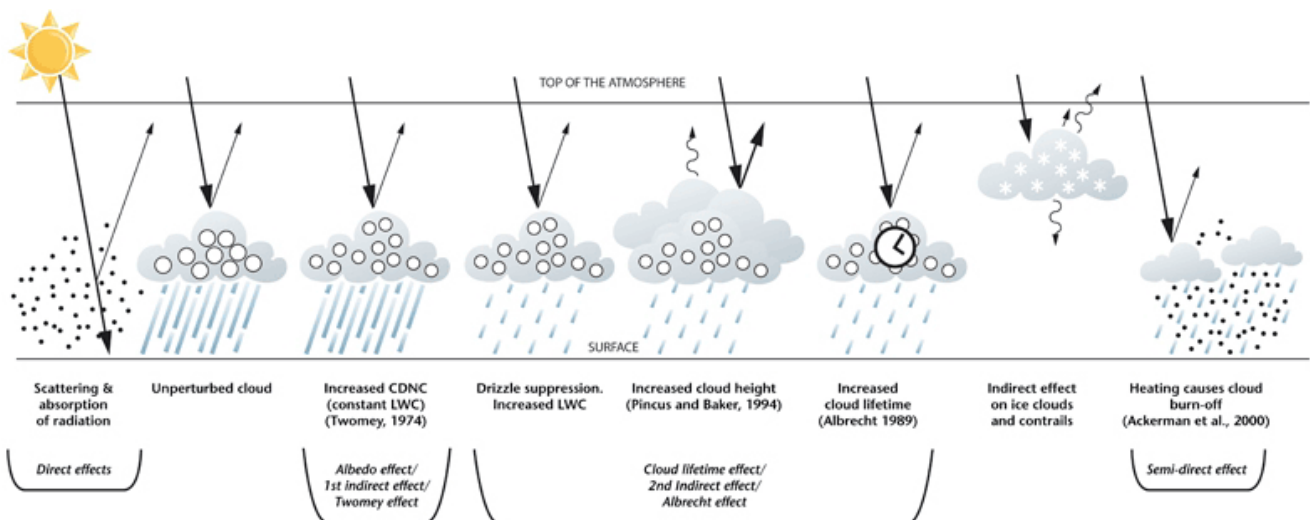


Figure 5 : Résumé illustré des différents effets des aérosols sur le climat (d'après Haywood and Boucher, 2000, © MetOffice). Les aérosols sont représentés par les points noirs et les gouttelettes d'eau par les cercles blancs, le rayonnement par les flèches noires. CNDC est l'acronyme pour la concentration en nombre des gouttelettes nuageuses et LWC signifie contenu en eau liquide.

L'effet direct aussi appelé effet parasol consiste en l'absorption et la diffusion du rayonnement solaire et dans une moindre mesure, le rayonnement tellurique. L'indice complexe de réfraction de l'aérosol (ACRI,

pour « Aerosol Complex Refractive Index ») est le paramètre clef pour comprendre ces interactions aérosol-rayonnement. Ce paramètre est difficile à estimer car intimement lié aux caractéristiques physico-chimiques, qui varient selon les sources et le vieillissement des particules. La partie imaginaire de l'ACRI influence les intensités relatives des processus de diffusion et d'absorption de la lumière exprimées par l'albédo de simple diffusion des aérosols, noté  $\omega_0$ . Ce paramètre vaut 0 pour une particule totalement absorbante et 1 pour une particule purement diffusante. Si l'effet parasol qui réfléchit du rayonnement solaire vers l'espace est majoritairement un effet refroidissant pour la surface (Kiehl et Briegleb 1993), une couche d'aérosols absorbants ( $\omega_0 < 0,9$ , Hansen et al., 1997), comme les carbonnes suies, surplombant une surface terrestre réfléchissante, induit une diminution de l'albédo terrestre et conduit à un réchauffement de la surface (IPCC 2007; Ackerman et al. 2000). La non-homogénéité verticale des couches d'aérosols est donc une information critique quand il s'agit d'évaluer l'impact radiatif des aérosols. L'utilisation de la télédétection active comme la technologie lidar Rayleigh-Mie permet d'apporter cette information de manière résolue dans la colonne atmosphérique.

La présence de couches de particules absorbantes est également à l'origine de l'effet semi-direct des aérosols. Absorbant le rayonnement solaire, ils provoquent un échauffement local de l'atmosphère modifiant son équilibre vertical (Léon et al. 2002). Ce mécanisme peut enrayer la formation d'un nuage ou même conduire à l'évaporation d'un nuage préexistant (Ackerman et al. 2000). L'influence des aérosols se manifeste ici de manière directe vis-à-vis du rayonnement mais de manière indirecte pour l'impact sur le climat et la météorologie via les nuages, d'où le nom d'effet semi-direct.

Au niveau de la microphysique des nuages, les aérosols sont les noyaux de condensation nécessaires à la genèse des hydrométéores. On dénombre plusieurs types d'effet ; le premier dit « effet Twomey » correspond pour un même volume d'eau nuageuse à l'augmentation du nombre de gouttelettes due à la présence d'aérosols hydrosolubles en excès (Twomey 1977). Cet effet est refroidissant, il engendre une surface efficace de diffusion plus grande dans le domaine visible et favorise la réflexion du rayonnement solaire vers l'espace.

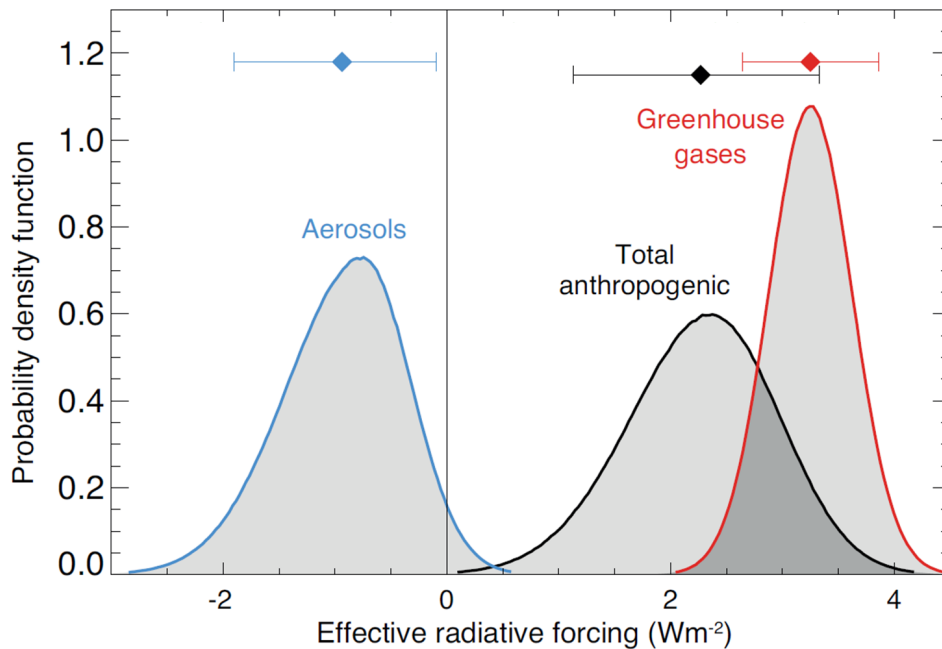
Le deuxième effet indirect aussi appelé « effet Albrecht » s'explique par le déficit de fréquence des précipitations dû au même mécanisme de diminution de taille des gouttelettes. C'est aussi un effet refroidissant pour deux raisons : d'une part, les nuages contiennent plus d'eau liquide ce qui augmente leur albédo, et d'autre part, ils voient leurs durées de vie rallongées (Albrecht 1989).

Des avancées majeures dans la diminution des incertitudes liés aux effets des aérosols sur le dérèglement climatique ont été menées dans les récentes décennies (IPCC, 2013). Pour autant, si les interactions

aérosols-rayonnement sont mieux connues, les interactions aérosols – vapeur d’eau – nuages recèlent encore des énigmes à percer pour mieux contraindre les prévisions climatiques mais aussi météorologiques.

## 1.4 Les interactions aérosols – vapeur d’eau

Sur la Figure 6 sont résumées de façon extrêmement condensée nos connaissances sur le forçage radiatif total, la part due aux GES et celle due aux aérosols (IPCC, 2013). Le forçage radiatif des GES est assez contraint et plutôt bien déterminé avec une incertitude restreinte ( $2,26 - 3,40 \text{ W/m}^2$ ). En revanche, la gaussienne de densité de probabilité du forçage des aérosols est moins piquée et plus large, caractéristique d’une incertitude accrue ( $-1,9 - -0,1 \text{ W/m}^2$ ). Dans cette courbe, c’est l’impact climatique des aérosols au sens large qui est décrit, c’est-à-dire en prenant en compte toutes les interactions connues des aérosols avec le rayonnement, la vapeur d’eau et les nuages. Si l’origine anthropique du dérèglement actuel ne fait pas débat, son amplitude est sujet à des incertitudes pilotées en première approximation par les aérosols et en particulier les interactions aérosols – vapeur d’eau – nuages.

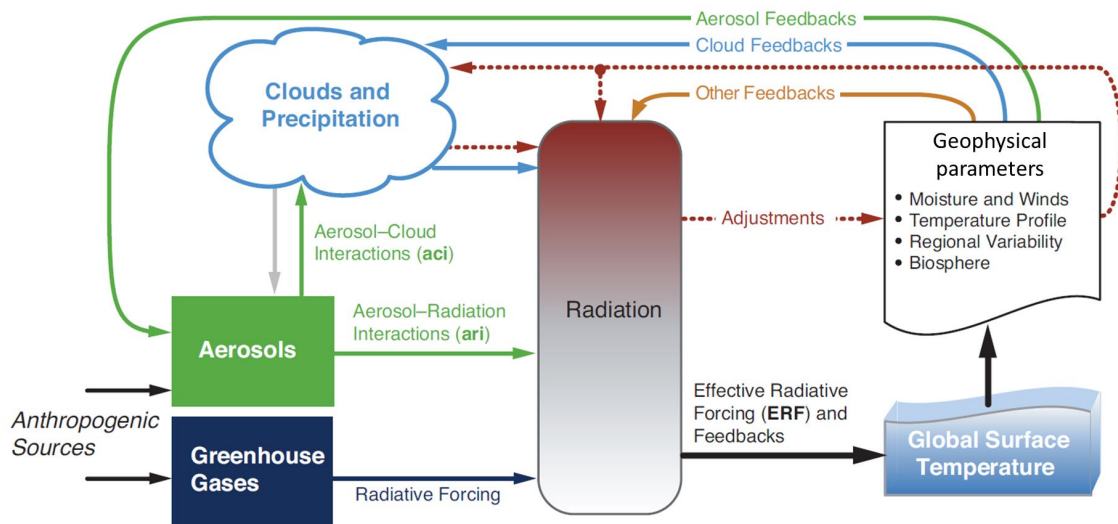


**Figure 6 :** Représentation de la fonction de densité de probabilité du forçage radiatif effectif induit par le surplus anthropique des gaz à effet de serre (rouge), des aérosols (bleu) - en prenant en compte les interactions aérosols – vapeur d’eau – nuages - et le total (noir). Les barres d’erreur de couleurs en haut du graphique représentent l’intervalle de confiance à 95 % des forçages (d’après IPCC, 2013).

Les enjeux liés aux interactions aérosols – vapeur d’eau – nuages sont complexes car dans un climat qui change les rétroactions entre les différentes composantes du système climatique sont légion. La Figure 7 donne un aperçu des liaisons parmi les rétroactions entre les aérosols, le rayonnement, les variables d’états



de l'atmosphère, les nuages et les précipitations. Par exemple, une hausse de la température va modifier les conditions d'humidité relative et, par continuité, le comportement des aérosols (hygroscopicité) ou encore les conditions de formation de nuages.



**Figure 7 : Diagramme schématisant les rétroactions climatiques des aérosols en interaction avec le rayonnement et les nuages. Le dérèglement induit par les GES et les aérosols va entraîner la modification des variables d'état de l'atmosphère, qui va rétroagir en premier lieu sur l'effet des aérosols et des nuages (D'après IPCC, 2013).**

Il est difficile d'isoler ces rétroactions imbriquées les unes dans les autres. Une première étape est de disposer de moyens d'observations capables de retranscrire précisément les variables d'état de l'atmosphère en même temps que les propriétés optiques des aérosols. À haute résolution temporelle et verticale, ce type de mesures permet d'étudier des phénomènes de microphysique des aérosols difficilement observables. C'est pourquoi des systèmes lidar permettant de mesurer simultanément les propriétés optiques des aérosols, la température et le rapport de mélange de vapeur d'eau voient le jour (Navas Guzmán et al. 2019; Lange, Behrendt, et Wulfmeyer 2019). Ces instruments permettent l'accès à la mesure de l'humidité relative, un important facteur de modification du rôle des aérosols dans l'atmosphère (Randriamiarisoa et al. 2006; Raut et Chazette 2008). Une connaissance plus précise de l'hygroscopicité des aérosols, c'est-à-dire leur croissance dans différentes conditions d'humidité, est l'un des enjeux scientifiques majeurs actuels qui permettra une meilleure compréhension des implications des aérosols aussi bien au niveau météorologique que climatique.

## 1.5 Objectifs et organisation de la thèse

### 1.5.1 Objectifs scientifiques

Cette thèse s'inscrit dans la continuité des efforts déjà effectués pour approfondir notre compréhension des processus complexes liés à la physique des aérosols évoluant dans le milieu atmosphérique et en particulier leurs interactions avec le cycle de l'eau. Ce travail s'appuie essentiellement sur une approche expérimentale utilisant les mesures lidar et vise notamment à valoriser les capacités de mesure de l'instrument WALI (Weather and Aerosol Lidar) développé au LSCE pour des applications climatiques et météorologiques. Rentrant dans un cercle restreint de lidars de ce type, WALI est un instrument polyvalent, compact et transportable, qui permet, de par la diversité des paramètres auxquels il donne accès, des études de processus atmosphériques sur le plan météorologique comme sur le plan de la physique des aérosols et des nuages.

Tirer parti des potentialités des mesures du système WALI constitue le socle des trois principaux objectifs de cette thèse avec en premier lieu le suivi d'évènements météorologiques extrêmes. Le deuxième objectif vise à démontrer la fiabilité de cette technologie pour la validation de produits opérationnels des sondeurs spatiaux actuels tel que l'Interféromètre Atmosphérique de Sondage dans l'Infrarouge (IASI), avec en perspective la préparation des futures missions spatiales pour l'observation de l'atmosphère comme la nouvelle génération de sondeur IASI-NG (Crevoisier et al. 2014) ou la mission EARTHCARE (Illingworth et al. 2015). Conjointement, l'objectif est de mettre en évidence la complémentarité de ce type d'instrument avec les observations depuis les plateformes spatiales et les potentialités vis-à-vis des modèles de prévision météorologique, en termes d'évaluation des performances des modèles d'une part, mais également comme éléments clés d'un réseau de lidars de ce type d'autre part. Un tel réseau pourrait, via l'assimilation variationnelle, améliorer les prévisions météorologiques à méso-échelle comme cela a déjà été démontré pour les aérosols (Wang, Sartelet, Bocquet, et Chazette 2014; Wang et al. 2013) et récemment pour la température (Adam et al. 2016). Enfin, le troisième objectif s'articule autour de l'étude des processus liés aux interactions aérosols – vapeur d'eau. En particulier, mes efforts se sont articulés autour de la valorisation de la voie d'acquisition Raman rotationnelle, nouvellement implémentée, et qui permet la mesure en continu de la température atmosphérique à haute résolution temporelle et spatiale le long de la ligne de visée. Conjointement à la mesure de rapport de mélange de vapeur d'eau (Chazette et al. 2014), l'acquisition de la température permet l'obtention de profils verticaux d'humidité relative, paramètre décisif

pour l'étude des cycles couplés des aérosols et de la vapeur d'eau et particulièrement le suivie de l'hygroscopicité des aérosols.

Une première partie de mon travail de thèse s'est axé autour des aérosols avec la participation à une étude sur les aérosols du Sud-Ouest du continent africain et la complexité des transports à l'origine de la présence de différentes couches d'aérosols au niveau des côtes namibiennes (Chazette et al. 2019). Je me suis également approprié l'outil lidar Raman dans une version plus « traditionnelle » pour l'étude des aérosols de pollution hivernale (Baron, Chazette, et Totems 2020) et le lien pouvant s'établir entre la concentration de particules en surface et les propriétés optiques rencontrées dans la couche limite atmosphérique. Cette expérience m'a permis de gagner un recul utile pour travailler sur des développements algorithmiques en vue de la validation de la voie température du système météorologique WALI. Des premières mesures de température ont été valorisées (Baron et al., soumis à QJRMS) pendant un évènement météorologique extrême correspondant à un épisode de vague de froid. En parallèle des travaux au laboratoire, ces trois années de recherche ont été rythmées par différentes campagnes de mesures auxquelles j'ai participé. Ces opérations de terrain ont permis par la mise en œuvre de divers instruments, avec au premier plan l'instrument WALI, l'acquisition de plusieurs jeux de données d'intérêt pour l'étude des cycles couplés des aérosols et de l'eau atmosphérique.

### 1.5.2 Plan du manuscrit

Ce manuscrit est en partie élaboré sur les bases de résultats publiés (Baron, Chazette, et Totems 2020), soumis, ou en préparation pour être proposé à publication, dans des revues scientifiques à comité de lecture.

Le chapitre 2 s'attache à établir le cadre théorique des mesures lidar et décrire les variables d'intérêts accessibles par lidar pour les applications envisagées dans ces travaux. Le principe général du lidar y est présenté ainsi que l'architecture typique des lidars tels qu'ils sont développés au LSCE. Les technologies dites « Rayleigh-Mie » et « Raman vibrationnel » utilisées par le système WALI sont détaillées et leurs équations lidar propres sont explicitées.

Le chapitre 3 s'articule autour de la présentation de la mesure de température par lidar Raman. Le bilan de liaison instrumental de la voie Raman rotationnelle nouvellement implémentée sur le lidar WALI est présenté. Basé sur un modèle direct-inverse comprenant notamment un module de spectroscopie et un module d'étalonnage, le simulateur lidar est confronté dans un premier temps à des cas idéalisés de profils

de température. Dans un second temps, des profils réels sont utilisés et le bilan des incertitudes de mesures et de leurs origines est dressé.

Le chapitre 4 se consacre à la présentation d'un cas d'étude de mesure de température atmosphérique en période d'évènement météorologique extrême. Acquisés durant une période de six jours consécutifs sujette à l'occurrence d'une vague de froid, ces mesures montrent les capacités du lidar Raman température pour le suivi du champ de température dans la basse troposphère. Ces facultés sont complémentaires avec celles de capteurs passifs comme IASI, notamment utilisés pour améliorer la représentativité des modèles météorologiques via l'assimilation. Les aptitudes de WALI sont également mises à profit pour confronter l'habileté des modèles opérationnels de prévision du temps (ERA5 et AROME) à retranscrire les champs de température dans une situation perturbée. Les capacités des modèles en prévision et en analyse sont étudiées par comparaison à la mesure lidar.

Le chapitre 5 porte sur les aérosols et leurs interactions avec la vapeur d'eau. Une première partie est dédiée à la physique de l'aérosol et en particulier les caractéristiques optiques des aérosols de pollution urbaine en situation hivernale, là où ils ont été très peu documentés dans la colonne atmosphérique (couche limite planétaire et basse troposphère libre). La deuxième section tire parti de données acquises lors d'une campagne de terrain conduite en juin 2019, au Sud du lac d'Annecy, dans le cadre du projet « Water Vapor and Isotope Lidar » (WAVIL), financé par l'agence nationale de la recherche (ANR). Des données d'humidité relative mesurées par lidar sont présentées ainsi que des résultats sur le lien entre les propriétés optiques des aérosols et les conditions d'humidité relative du milieu dans lequel ces particules évoluent.

Finalement, des conclusions sont tirées de ces activités de recherche, et les principales perspectives scientifiques ouvertes par cette thèse sont présentées.

# Chapitre 2 : Lidar – Théorie

<b>2.1</b>	<b>INTRODUCTION .....</b>	<b>27</b>
<b>2.2</b>	<b>GENERALITES SUR LES LIDARS .....</b>	<b>28</b>
2.2.1	DIVERSITE DES LIDARS ATMOSPHERIQUES ET DE LEURS APPLICATIONS .....	29
2.2.1.1	<i>Quelques grandes classes de lidars .....</i>	<i>29</i>
2.2.1.2	<i>Choix de l'émission .....</i>	<i>31</i>
2.2.1.3	<i>Géométrie d'observation .....</i>	<i>33</i>
2.2.2	INSTRUMENTS UTILISES AU-COURS DE LA THESE .....	33
2.2.2.1	<i>LAASURS .....</i>	<i>34</i>
2.2.2.2	<i>WALI .....</i>	<i>36</i>
<b>2.3</b>	<b>RAPPELS THEORIQUES .....</b>	<b>38</b>
2.3.1	EQUATION LIDAR .....	38
2.3.1.1	<i>Résolution spatiale .....</i>	<i>38</i>
2.3.1.2	<i>Puissance rétrodiffusée par l'atmosphère .....</i>	<i>39</i>
2.3.1.3	<i>Acquisition en comptage de photons .....</i>	<i>41</i>
2.3.1.4	<i>Acquisition analogique .....</i>	<i>41</i>
2.3.1.5	<i>Equation lidar brute .....</i>	<i>42</i>
2.3.1.6	<i>Contribution du fond de ciel .....</i>	<i>43</i>
2.3.1.7	<i>Equation lidar corrigée .....</i>	<i>43</i>
2.3.1	FONCTION DE RECOUVREMENT .....	44
2.3.2	SOURCES D'INCERTITUDES .....	46
2.3.2.1	<i>Ecarts-types .....</i>	<i>46</i>
2.3.2.1	<i>Rapport signal à bruit .....</i>	<i>47</i>
2.3.2.2	<i>Biais .....</i>	<i>48</i>
<b>2.4</b>	<b>LIDAR RAYLEIGH-MIE .....</b>	<b>50</b>
2.4.1	PRINCIPE DE MESURE .....	50
2.4.1.1	<i>Mécanismes de diffusion élastique .....</i>	<i>50</i>

---

2.4.1.2	<i>Paramètres optiques de l'atmosphère</i> .....	51
2.4.2	EQUATION DU LIDAR RAYLEIGH-MIE.....	54
2.4.3	ANALYSE DU SIGNAL.....	54
2.4.3.1	<i>Paramètres obtenus directement</i> .....	56
2.4.3.2	<i>Méthode d'inversion de Klett</i> .....	57
<b>2.5</b>	<b>LIDAR RAMAN VIBRATIONNEL</b> .....	<b>58</b>
2.5.1	PRINCIPE DE MESURE .....	58
2.5.2	EQUATION LIDAR RAMAN VIBRATIONNEL.....	59
2.5.3	APPORT DE LA MESURE LIDAR RAMAN N <sub>2</sub> .....	61
2.5.4	LIDAR RAMAN H <sub>2</sub> O.....	62
<b>2.6</b>	<b>CONCLUSION</b> .....	<b>63</b>

## 2.1 Introduction

L'amélioration de notre compréhension des processus météorologiques et climatiques nécessite le recours à des moyens d'observations innovants capables d'échantillonner l'atmosphère à haute résolution spatiale et à haute cadence temporelle. La technologie lidar tient une place de premier rang dans ce contexte. Le LIDAR, acronyme de « LIght Detection And Ranging », est un instrument de télédétection active dont le principe repose sur l'interaction entre des ondes lumineuses et le milieu échantillonné. Tout comme le RADAR (« RAdio Detection And Ranging »), le lidar s'appuie sur l'émission d'un rayonnement électromagnétique souvent polarisé qui peut aller de l'ultraviolet à l'infrarouge thermique. Les systèmes lidars sont utilisés pour une grande variété d'applications comme la topographie, la télédétection militaire, la navigation autonome et l'observation de la Terre (atmosphère, couverture glaciaire ou forestière). A l'inverse de la mesure in situ, la télédétection active lidar est une mesure non invasive, i.e. elle ne perturbe pas les propriétés fondamentales du milieu sondé et permet un profilage instantané et répété dans le temps. C'est ce qui en fait un instrument privilégié pour les études atmosphériques qui sont les applications discutées dans ce travail de thèse. Si l'idée d'utiliser la diffusion lumineuse dans l'atmosphère pour en extraire ses propriétés est antérieure à l'invention du laser (Synge 1930), l'avènement du laser à rubis (Maiman 1960) a permis une rapide accélération de l'utilisation des lidars pour l'étude du milieu

atmosphérique (Fiocco et Smullin, 1963 ; Goyer et Watson, 1963). Très vite, des démonstrations théoriques et pratiques permettent d’entrevoir la multiplicité des apports de ces instruments pour l’étude de l’atmosphère (Hinkley, 1976 ; Measures, 1984).

Dans ce chapitre, les grandes classes de lidars atmosphériques sont présentées, les paramètres atmosphériques et de géométrie d’observation sont également détaillés. Les caractéristiques des lidars utilisés dans ce travail de thèse sont ensuite présentées. L’équation lidar et les incertitudes associées sont établies dans un cadre générique avant de détailler les spécificités des techniques Rayleigh-Mie, Raman vibrationnel utilisées par le lidar météorologique WALI au cœur de ce travail de thèse.

## 2.2 Généralités sur les lidars

Séquentiellement, la mesure par lidar se décompose en quatre étapes : l’émission, l’interaction rayonnement-matière, la réception et l’acquisition du signal. Un faisceau laser, pulsé si l’on souhaite une résolution en distance et généralement monochromatique, est émis dans le milieu atmosphérique où il interagit par diffusion et absorption avec ses constituants (nuages, aérosols et molécules). Après l’interaction des photons avec les diffuseurs, une fraction de la lumière émise est rétrodiffusée vers un système de réception optique (en réflexion, télescope, ou en réfraction, systèmes de lentilles de type lunette astronomique). Après filtrage spatial et spectral des émissions parasites de l’environnement, les photons sont alors collectés sur un photodétecteur sensible (photomultiplicateur ou une photodiode à avalanche) pour être convertis en champ électrique à son tour numérisé, traité et enregistré grâce à une chaîne d’acquisition numérique. Ce processus est schématisé dans la Figure 8. La distance du lidar à la cible diffusante est donnée par le temps écoulé entre l’émission de l’impulsion et sa réception. La résolution spatiale du lidar selon la ligne de visée est déterminée par la durée de l’impulsion laser et la fréquence d’échantillonnage du convertisseur analogique/numérique (CAN).

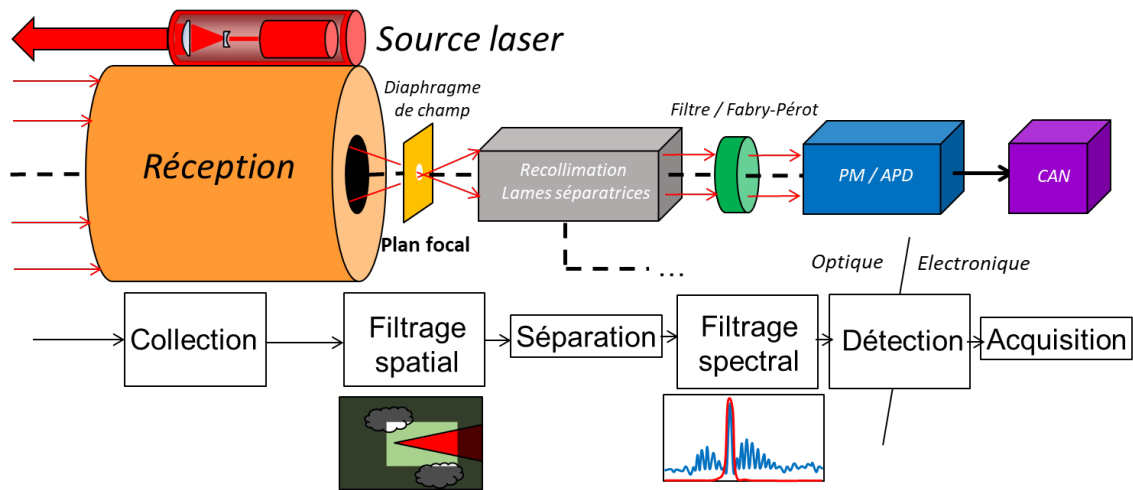


Figure 8 : Schéma de la chaîne fonctionnelle d'un lidar pour l'observation de l'atmosphère. L'émission est constituée d'une source laser dont le faisceau est souvent étendu et collimaté pour satisfaire les normes de sécurité oculaire. La lumière rétrodiffusée est reçue par le système de réception, focalisée et filtrée spatialement au foyer optique à l'aide d'un diaphragme. Le signal lumineux est ensuite recollimaté et séparé selon sa longueur d'onde ou sa polarisation. Un filtrage spectral fin (filtre interférentiel / Fabry-Pérot) est postérieurement opéré avant la focalisation sur un photomultiplicateur (PM) ou une photodiode à avalanche (APD). Le signal est alors transformé en courant ou en tension par la chaîne d'acquisition numérique (CAN). Schéma adapté du travail de J. Totems.

Si le principe général de la mesure lidar reste le même pour la grande majorité des systèmes, le choix des éléments constitutifs (puissance et longueur d'onde de la source d'émission, optiques de réception, filtrage, acquisition, ...) est très spécifique à chaque application.

## 2.2.1 Diversité des lidars atmosphériques et de leurs applications

### 2.2.1.1 Quelques grandes classes de lidars

Les possibilités des lidars pour l'observations de l'atmosphère sont nombreuses : il est possible de restituer aussi bien des variables d'état comme la pression, la température, l'humidité, que le flux de quantité de mouvement (vent), les propriétés optiques des aérosols et des nuages ou encore les concentrations de certaines molécules gazeuses d'intérêt comme l'ozone, le dioxyde de carbone ou le méthane. Cette mesure par télédétection active présente également l'avantage de donner accès aux informations structurales (altitude, épaisseur) des couches diffusantes sur toute une colonne d'air.

On peut différencier plusieurs familles de lidars atmosphériques par les différents processus d'interaction rayonnement-matière sur lesquels leurs mesures sont fondées. En voici une liste non exhaustive :

- Le lidar à rétrodiffusion élastique (dit lidar Rayleigh-Mie, Fiocco et Grams, 1964) tire profit des interactions du rayonnement laser avec les molécules atmosphériques (diffusion de Rayleigh) et les



aérosols (diffusion de Mie). Ces processus sont dits élastiques car l'énergie du diffuseur est conservée et le photon émis lors de la diffusion est de même longueur d'onde que le photon incident. La structuration de l'atmosphère et la présence de couche d'aérosols sont détectables directement via l'utilisation de ce système. Bien souvent, le calcul quantitatif des propriétés optiques des aérosols nécessite quant à lui la mesure de l'épaisseur optique de l'atmosphère pour pouvoir inverser l'équation lidar (section 2.4).

- Le lidar à haute résolution spectrale (HSRL pour « High Spectral Resolution Lidar ») fonctionne sur le même principe que le lidar Rayleigh-Mie, à ceci près qu'un interféromètre (généralement un Fizeau) est ajouté au système de réception (Fiocco et al. 1971). Il parvient à séparer spectralement la diffusion de Mie (spectralement fine) de la diffusion Rayleigh (élargie via l'effet Doppler par la forte vitesse quadratique moyenne des molécules,  $\sim 300 \text{ m.s}^{-1}$ ). L'inversion de l'équation lidar est alors plus directe (Sroga et al. 1983). Par ailleurs, le déplacement spectral global du lobe Rayleigh par l'effet Doppler permet de remonter à la vitesse moyenne de la masse d'air (vitesses des particules diffusantes  $\sim 1\text{-}50 \text{ m.s}^{-1}$ ) et d'accéder à la vitesse du vent (Mariscal et al. 2018).
- Le lidar à absorption différentielle (DIAL pour « Differential-Absorption Lidar », Schotland, 1966) se base sur l'émission de deux raies laser proches en longueur d'onde. Une longueur d'onde est placée sur un pic d'absorption de la molécule à mesurer et l'autre en dehors des bandes d'absorption de la molécule, en limitant les perturbations liées aux autres composés de l'atmosphère. La concentration est ensuite déterminée via le rapport des canaux en connaissant la section efficace d'absorption pour les deux longueurs d'onde. Cette technique permet la mesure de la concentration de certains gaz comme l'ozone (Mégie et al. 1977), la vapeur d'eau (Browell, Wilkerson, et McIlrath 1979), le dioxyde de soufre (Egeback, Fredriksson, et Hertz 1984) ou le méthane (S. W. Lee et al. 1999). Si le profil de densité de la molécule cible est connu (comme l'oxygène ou l'azote), cette technique permet aussi d'accéder au profil de température atmosphérique (Megie 1980).
- Le lidar à rétrodiffusion Raman (Leonard 1967) repose sur la diffusion inélastique Raman (Raman et Krishnan 1928) qui implique un changement du niveau d'énergie de la molécule ayant interagit avec un photon incident. Le photon rétrodiffusé n'a alors pas la même longueur d'onde que le photon incident et le décalage correspond à la différence d'énergie entre les niveaux rotationnels – vibrationnels (ro-vibrationnels) initiaux et finaux de la molécule. Les sections efficaces de rétrodiffusion Raman sont très faibles ce qui implique que cette technique est utilisée principalement pour des espèces présentes à des concentrations relativement élevées (diazote, dioxygène, vapeur

d'eau). Il existe différents types de lidars Raman utilisés entre autres pour la mesure du profil de température (Strauch, Derr, et Cupp 1971), du rapport de mélange en vapeur d'eau (Totems, Chazette, et Raut 2019; P. Chazette et al. 2014) et des propriétés optiques des aérosols (Philippe Royer et al. 2011).

- Le lidar Doppler cohérent hétérodyne, dit lidar vent (Huffaker 1974) utilise le décalage Doppler induit par le vent sur la diffusion de Mie des particules pour déterminer sa vitesse. La détection, spécifique, est dite cohérente hétérodyne car employant l'interférence entre l'onde reçue et un oscillateur local, i.e. une fraction de l'onde émise décalée d'une fréquence fixe (hétérodynage). Le décalage spectral de l'onde rétrodiffusée est ainsi mesuré très précisément, donnant la valeur algébrique de la vitesse du vent projetée sur l'axe de visée du lidar. Pour obtenir une mesure du vent en trois dimensions, la ligne de visée du lidar doit prendre rapidement plusieurs orientations différentes (au minimum trois). La dispersion de la vitesse relevée à haute résolution renseigne sur la turbulence atmosphérique.

### 2.2.1.2 Choix de l'émission

Les grandes familles de lidars présentées s'appuient sur une multitude de propriétés de l'atmosphère, de ses composants et de la physique des interactions rayonnement-matière. Le choix de la longueur d'onde d'émission et de la puissance du laser d'émission sont alors cruciaux. Pour sonder l'atmosphère de manière optimale, il est nécessaire de prendre en compte sa transmission optique et les perturbations de l'environnement lumineux. Sur la Figure 9, la transmission atmosphérique totale est représentée en bleu et traduit les capacités d'absorption des différents constituants de l'atmosphère. En particulier, la diffusion Rayleigh est responsable de la chute de transmission du visible à l'UV, l'ozone et l'oxygène limitent la transmission dans l'UV lointain, et la vapeur d'eau possède de nombreuses raies d'absorption notamment dans le rouge et proche infrarouge. Ceci délimite des fenêtres de transmission atmosphériques. D'autre part, l'éclairement solaire à la surface terrestre représentée en jaune est la principale source de rayonnement parasite pour le lidar. Cette courbe correspond au spectre du corps noir calculé pour la température de surface du soleil après avoir traversé l'atmosphère à la transmission très hétérogène en longueur d'onde. En bleu est tracé l'éclairement spectral du ciel bleu, souvent amalgamé sous le nom de fond ciel en observation lidar. On constate que l'éclairement spectral du fond de ciel est maximal à la longueur d'onde de travail de 532 nm, et demeure limité sous 380 nm, et au-delà de 1  $\mu\text{m}$ . Ce paramètre est particulièrement important pour la mesure de la diffusion Raman, extrêmement ténue.

De multiples sources laser impulsionnelles émettant dans les fenêtres de transmission atmosphériques permettent d'atteindre des puissances reçues suffisantes pour les mesures lidar. Sur la Figure 9, seules celles des lidars atmosphériques les plus répandus sont placées. Dans l'infrarouge, les lasers fibrés dopés à l'erbium et à l'ytterbium permettent une émission très pure spectralement de jusqu'à quelques milli-joules à plusieurs kHz de répétition aux alentours de 1550 nm, très employée pour la mesure du vent par lidar cohérent hétérodyne. Par ailleurs, le laser Nd:YAG (grenat d'yttrium-aluminium dopé au néodyme), pompé optiquement par diode ou lampe flash, atteignant à 1064 nm de fortes puissances et des rendements électro-optique élevés, est l'un des lasers les plus courants. Il fournit typiquement plusieurs centaines de mJ avec des taux de répétition entre 10 et 100 Hz. Le doublement et le triplement de sa fréquence par effets non-linéaires permet d'adresser le milieu du visible à 532 nm et l'ultraviolet à 355 nm. Ces longueurs d'ondes courtes favorisent particulièrement l'interaction avec les molécules par les diffusions Rayleigh et Raman, évoluant en  $\lambda^{-4}$ , mais en contrepartie sont plus rapidement éteintes au cours de leur propagation. Plusieurs lidars aérosols combinent les harmoniques du Nd:YAG afin de caractériser les dépendances spectrales de leur propriétés optiques, facilitant leur classification et l'extraction de leur granulométrie. Enfin, les longueurs d'ondes utilisées par les lidars à absorption différentielle (DIAL), par exemple pour la mesure de l'ozone et de la vapeur d'eau, ne sont pas représentées ici au vu de leur multiplicité. Elles se placent typiquement aux flancs des bandes d'absorption observées sur le panneau supérieur de la Figure 2.

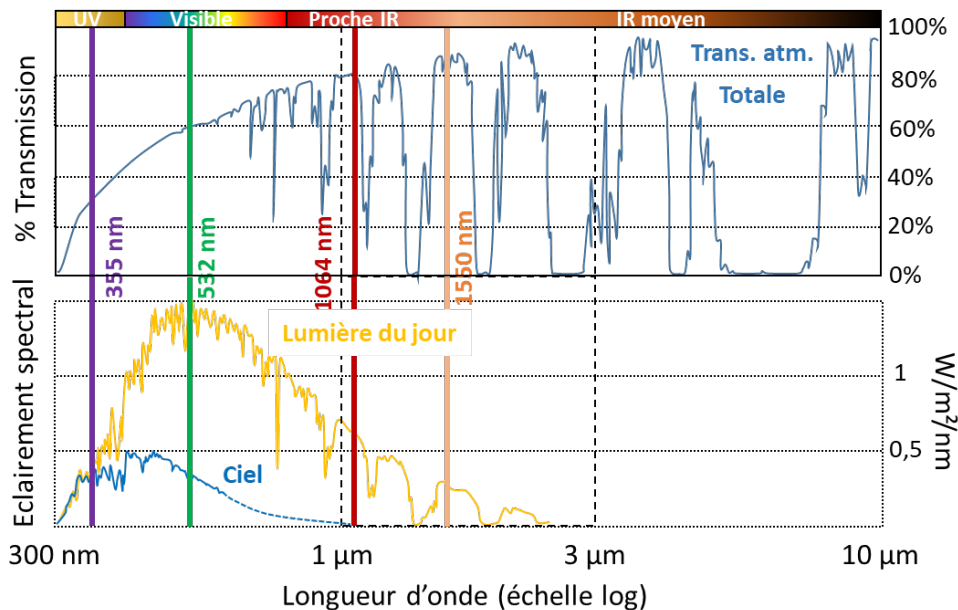
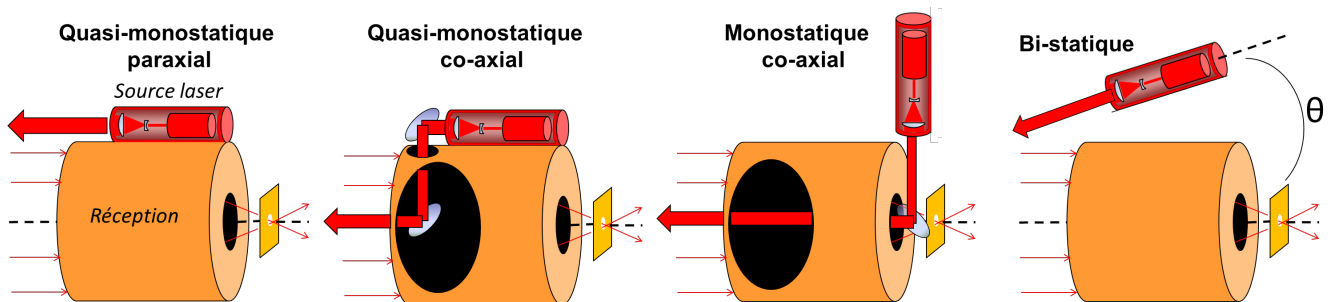


Figure 9 : Transmission moyenne de l'atmosphère (en haut) et spectre d'éclairement solaire moyen à la surface de la Terre (en bas) en fonction de la longueur d'onde. Les longueurs d'onde du laser Nd:YAG : 1064 nm, 532 nm (fréquence doublée) et 355 nm (fréquence triplée) sont représentées en couleur.

### 2.2.1.3 Géométrie d'observation

La disposition de l'émission et de la réception est fortement conditionnée par l'application du système puisqu'elle fixe les distances minimales (recouvrement) et maximales (portée) de mesure, s'orientant typiquement vers des mesures troposphériques ou stratosphériques.

Les différentes configurations de lidars se distinguent par le partage et la colinéarité de leur axe optique (co-axial ou paraxial) et le passage ou non par une même optique pour l'émission et la réception (monostatique, quasi-monostatique ou bi-statique). Elles sont schématisées en Figure 10.



**Figure 10** : Configurations de lidars distinguées par l'agencement de l'émission et de la réception. Le cylindre orange représente le système optique de réception. L'émission est symbolisée par la source laser en rouge. L'axe optique est matérialisé en trait pointillé noir. Schéma adapté du travail de J. Totems.

Les deux enjeux du choix de la configuration sont l'isolement entre l'émission puissante et la réception très sensible, d'une part, et le recouvrement entre le faisceau émis et le cône de réception du lidar, d'autre part. Ainsi, les lidars monostatiques offrent un alignement émission-réception automatique sur toute la ligne de visée, mais sont rarement implémentés car la réflexion du laser sur les optiques communes perturbe fortement la détection. À l'opposé, les systèmes quasi-monostatiques paraxiaux voire bistatiques sont automatiquement isolés, mais leur alignement nécessite un réglage précis, et le recouvrement entre l'émission et la réception ne peut être garanti que dans une zone réduite. Ceci fixe une distance minimale de mesure, et limite parfois même la portée.

### 2.2.2 Instruments utilisés au-cours de la thèse

Parmi la diversité des systèmes présentés, ce travail de thèse porte sur l'utilisation et la valorisation en sciences de l'atmosphère de lidars Rayleigh-Mie et Raman développés au LSCE. Ces instruments sont originellement des systèmes quasi-monostatiques paraxiaux utilisant la fréquence d'émission triplée du Nd:YAG à 355 nm et un système optique de réception réfractif (système de lentilles comme une lunette astronomique). Cette configuration, qui a fait l'objet d'un brevet du CEA et du CNRS, offre une compacité au système lui permettant d'être aisément transportable et mobilisé facilement sur différents types de

terrain en campagne de mesures, une grande stabilité aux vibrations adaptée aux opérations aéroportées ou sur route, et enfin une distance minimale de mesure réduite assurée par la courte focale du système.

### 2.2.2.1 LAASURS

Le « Lidar for Automatic Atmospheric Surveys Using Raman Scattering » (LAASURS) est un lidar Rayleigh-Mie-Raman-N<sub>2</sub> autonome doté d'un confinement mobile entièrement étanche et climatisée (Royer et al. 2011). Ce système a souvent été utilisé pour des mesures continues durant des périodes prolongées comme pendant ChArMEx (« The Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment ») sur la côte d'Azur (Chazette, Totems, et Shang 2019), le détroit de Gibraltar (Chazette 2020), ou pour des études d'évènement de pollution dans des environnements urbains (Chazette et Royer, 2017 ; Baron et al., 2020). La Figure 11 présente ce lidar en conditions de mesure sur le toit du nouveau bâtiment du LSCE au centre CEA de Saclay (Orme des Merisiers). Sur le schéma optique, on notera l'expansion du faisceau laser pour satisfaire les conditions de sécurité oculaire, et les deux voies optiques de réception. Sur la voie de droite le filtrage spectral sélectionne le signal issu des processus de diffusion élastique. Une séparation est effectuée sur la polarisation du signal rétrodiffusé de telle façon que l'on obtient deux signaux : l'un avec une polarisation parallèle à la polarisation linéaire du laser, l'autre avec une polarisation perpendiculaire à celle de l'émission. Sur la gauche du laser, la voie de réception dite Raman-N<sub>2</sub> sélectionne les photons issus de la diffusion Raman vibrationnelle des molécules de diazote, qui en concentration connue constituent un étalon de réflectivité sur la colonne d'air. Cette mesure rend le système complètement autonome pour inverser les propriétés optiques des aérosols (Royer et al., 2011, voir également section 2.5.3).

Les caractéristiques techniques de ce lidar sont présentées dans le Tableau 1. Le laser Nd:YAG de la gamme *Ultra* fabriqué par Quantel/Lumibird™ émet des impulsions laser dans l'UV à 354,7 nm, d'une durée de 6 à 7 nanosecondes à une fréquence de 20 Hz et 30 mJ d'énergie. La fréquence d'échantillonnage de 200 MHz via une carte analogique/numérique de chez National Instrument permet d'obtenir une résolution initiale le long de la ligne de visée du lidar de 0,75 m.

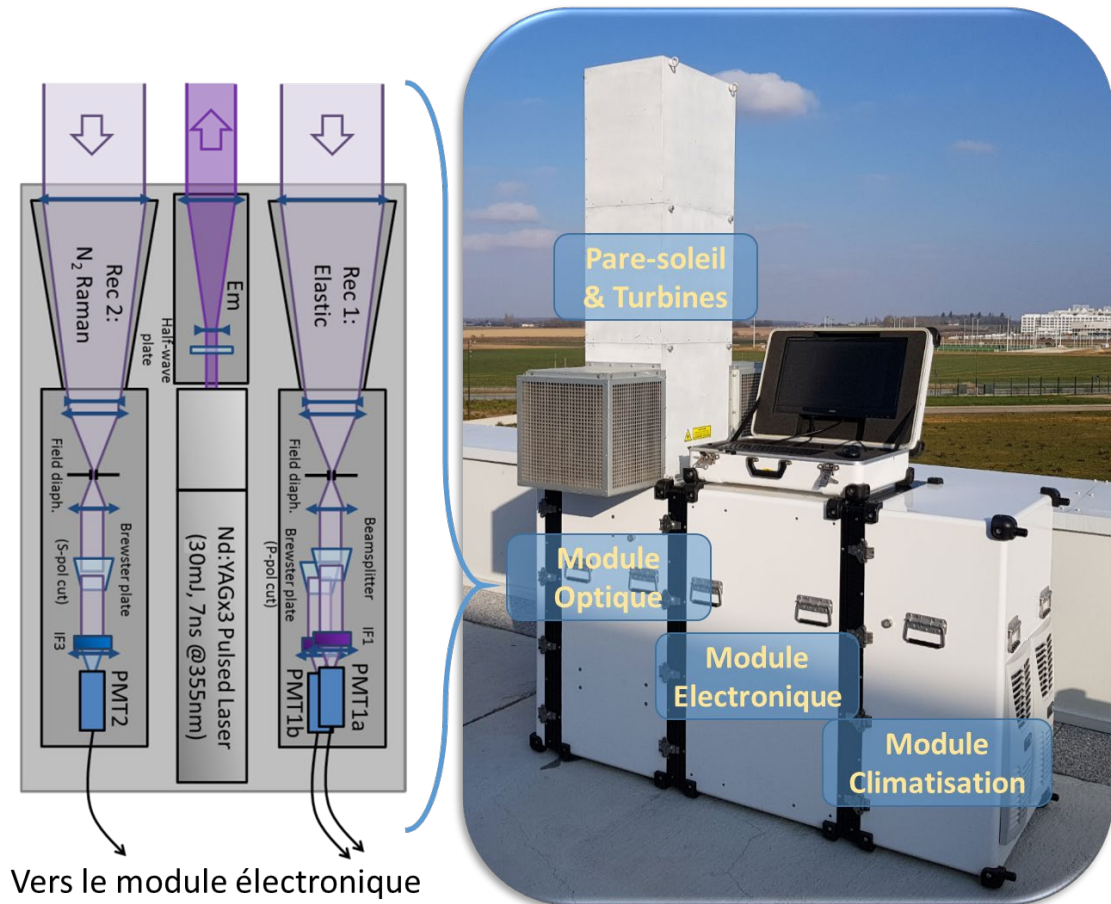


Figure 11 : LAASURS en fonctionnement sur le toit du bâtiment du LSCE pendant le printemps 2019 dans le cadre de la calibration/validation de la mission ADM-Aeolus. Le schéma du module optique du lidar est représenté sur la gauche (d’après un schéma de J. Totems).

Tableau 1 : Principales caractéristiques techniques du LAASURS

Longueur d’onde d’émission	354,7 nm
Energie par impulsion laser	30 mJ
Durée de l’impulsion	6-7 ns
Fréquence de tir	20 Hz
Diamètre de la lentille d’émission	Ø 50 mm
Diamètre des lentilles de réception	Ø 150 mm
Champ de vue	2 x 0,67 mrad
Distance de recouvrement	150 m à 200 m
Filtrage de la voie élastique	354,7±0,1 nm
Filtrage de la voie Raman N <sub>2</sub>	387,6±0,1 nm
Détecteurs	Photomultiplicateurs
Modes d’acquisition	Analogique et comptage de photons
Fréquence d’acquisition	200 MHz
Résolution spatiale maximale	0,75 m

Ce lidar a pour vocation la mesure des propriétés des aérosols ; dans sa configuration actuelle ce système ne permet pas la mesure de la vapeur d’eau ou de la température atmosphérique.

### 2.2.2.2 WALI

Le « Weather and Aerosol Lidar » (WALI) tire son nom de sa capacité à mesurer les propriétés optiques des aérosols ainsi que le rapport de mélange de vapeur d'eau et la température atmosphérique. Ces deux derniers paramètres qui donnent accès à l'humidité relative sont des paramètres clés en météorologie.

Dans une version antérieure (Chazette, Marnas, et Totems 2014), avant l'implémentation de la voie d'acquisition de la température, ce lidar a été déployé dans plusieurs campagnes de terrain comme HyMeX (Chazette et al., 2014a ; Totems et Chazette, 2016) ou PARCS (Pollution in the ARctic System, Chazette et al. (2018) et Totems et al., 2019), essentiellement pour la mesure des aérosols et de la vapeur d'eau avec à chaque fois un fort aspect météorologique.

Issu d'une première déclinaison dont l'architecture était voisine de celle du LAASURS, ce lidar est maintenant composé d'une part d'un télescope fibré et d'autre part d'une voie élastique à lentilles (Figure 12). Le télescope mutualise la réception de toutes les voies Raman ( $N_2$ ,  $H_2O$ , température), la séparation en longueurs d'onde et le filtrage étant déportés via la fibre optique vers le « polychromateur » pour finalement acquérir quatre signaux distincts (un pour  $N_2$ , un pour  $H_2O$ , deux pour la température). Cette mutualisation et le mélange des modes dans la fibre optique favorise une homogénéisation des facteurs géométriques des voies Raman (section 2.3.1) qui peut s'avérer critique pour le traitement postérieur, notamment pour la mesure de température dans la basse troposphère. Concernant la voie élastique pour la mesure des aérosols, on retrouve la même configuration que pour le LAASURS avec les deux détections à polarisations croisées. La source laser est plus puissante, capable d'émettre 120 mJ dans l'UV à 354,7 nm. Pour la mesure de température, la longueur d'onde d'émission doit être extrêmement stable, ce qui est permis par l'injection dans la cavité laser d'un faisceau laser monomode longitudinal c.-à-d. très fin spectralement. Jouant le rôle d'oscillateur maître, il pilote la fréquence au prix d'une diminution d'environ 15% de l'énergie initiale du laser triplé. Les caractéristiques techniques précises du système WALI sont résumées dans le Tableau 2.

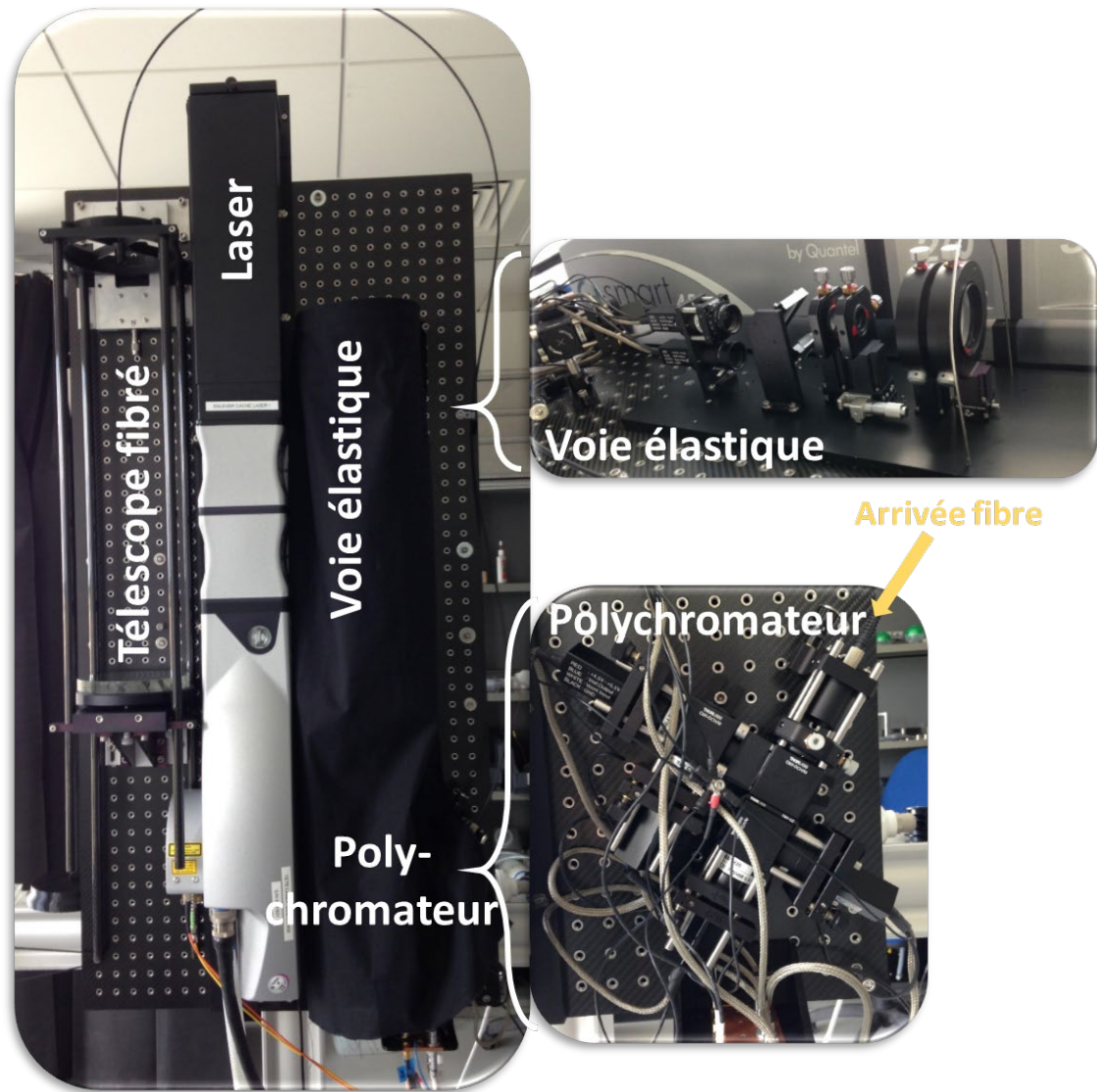


Figure 12 : Le lidar WALI en fonctionnement sous la trappe dédiée au LSCE. La voie élastique et le polychromateur sont couverts d'un voile noir pour limiter la lumière ambiante diffuse.

Tableau 2 : Principales caractéristiques techniques du WALI

Longueur d'onde d'émission	354,725 nm stabilisé par injection
Energie par impulsion laser	~100 mJ
Durée de l'impulsion	6 ns
Fréquence de tir	20 Hz
Diamètre de la lentille d'émission	Ø 75 mm
Diamètre de la lentille de réception (élastique)	Ø 150 mm
Diamètre du télescope (Raman)	Ø 150 mm
Champ de vue	3,3 x 0,7 mrad & Ø 1,6 mrad
Distance de recouvrement	150 m à 200 m
Filtrage de la voie élastique	354,78±0,12 nm
Filtrage de la voie Raman N <sub>2</sub>	387,76±0,13 nm
Filtrage de la voie Raman H <sub>2</sub> O	407,59±0,17 nm
Filtrage de la voie Raman Température	353,22±0,27 nm & 354,09±0,12 nm
Détecteurs	Photomultiplicateur



---

<b>Modes d'acquisition</b>	Analogique et comptage de photons
<b>Fréquence d'acquisition</b>	200 MHz
<b>Résolution native le long de la ligne de visée</b>	0,75 m

---

Les capacités de cet instrument, qui seront présentées de manière exhaustives dans le chapitre 4, le font rentrer dans un cercle de lidars peu nombreux si l'on se réfère aux systèmes publiés dans la littérature scientifique. Les études de processus permises par de tels instruments sont émergentes et ces travaux de thèse s'inscrivent dans ce contexte par la valorisation scientifique du système WALI.

## 2.3 Rappels théoriques

Dans cette section est présentée l'équation lidar qui est une base commune aux systèmes Rayleigh-Mie et Raman. L'importance de la fonction de recouvrement entre l'émission et les voies de réception est ensuite discutée. Cette section se termine par la description des différentes sources d'incertitudes liées à la mesure par lidar Rayleigh-Mie-Raman.

### 2.3.1 Equation lidar

On se place ici dans le cas très usuel d'un lidar utilisant un laser pulsé comme source d'émission. Le même type de développement présenté ici peut être trouvé dans plusieurs chapitre d'ouvrage de référence et notamment Measures (1984) et Chazette et al. (2016).

#### 2.3.1.1 Résolution spatiale

La résolution spatiale d'un lidar est définie par les différents temps caractéristiques d'émission et d'échantillonnage. En considérant la vitesse d'une impulsion laser comme la vitesse de la lumière dans l'air (notée  $c$ ) l'équation lidar peut s'exprimer en fonction du temps ou de la distance de manière biunivoque.

La Figure 13 illustre le lien entre les instants  $t_0$  d'émission et  $t_r$  de réception, et l'altitude de l'interaction impulsion laser – milieu diffusant. Un photon collecté par le système de réception du lidar au temps  $t_r$  a parcouru depuis son instant d'émission  $t_0$  la distance  $c \cdot (t_r - t_0)$ . Dans le cas d'une visée zénith, l'altitude est donc  $z = \frac{c \cdot (t_r - t_0)}{2}$ .

Ces instants  $t_0$  et  $t_r$  sont les instants moyen d'émission d'une impulsion d'une durée  $\Delta t_0$  et d'une fenêtre d'échantillonnage de durée  $\Delta t_r$ . Du point de vue spatial, la résolution verticale comporte les deux contributions :

$$\Delta z = \underbrace{\frac{\Delta z_0}{2}}_{\frac{c \Delta t_0}{2}} + \underbrace{\frac{\Delta z_r}{2}}_{\frac{c \Delta t_r}{2}} \quad (1)$$

La durée d'une impulsion  $\Delta t_0$  est typiquement inférieure à la dizaine de nanosecondes pour les lasers Nd:YAG considérés. Si la fréquence d'échantillonnage native peut atteindre  $f_e = 200$  MHz pour les systèmes développés au LSCE (la fenêtre d'acquisition  $\Delta t_r$  dure alors 5 ns), en pratique cette fréquence est réduite d'un facteur vingt à 10 MHz par un filtre passe – bas. On a alors  $\Delta t_r \sim 100$  ns  $\gg \Delta t_0$  et la résolution verticale peut s'approximer :

$$\Delta z = \frac{c \Delta t_r}{2} = \frac{c}{2 \cdot f_e} \quad (2)$$

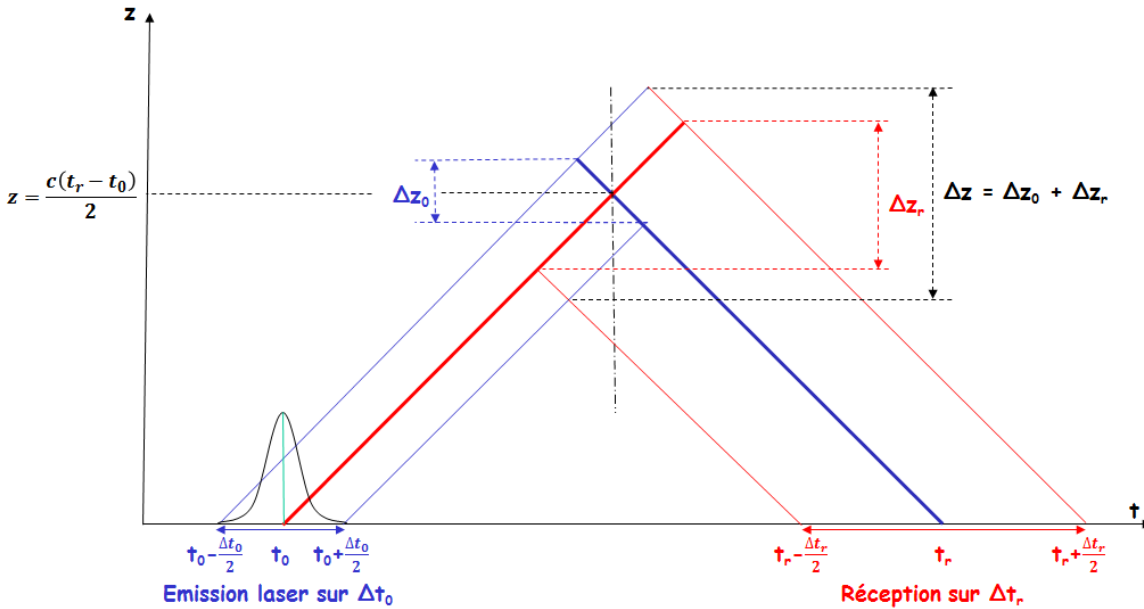


Figure 13 : Illustration temps – distance de la résolution spatiale ( $\Delta z$ ) d'un système en visée verticale. L'impulsion laser à une largeur temporelle  $\Delta t_0$  et la fenêtre d'échantillonnage une largeur  $\Delta t_r$ . Figure tirée de Chazette et al. (2016).

La résolution horizontale de la mesure lidar dans un cas où le lidar est mobile est dépendante de la vitesse du porteur (ballon, ULM, avion, plateforme spatiale) et de la résolution temporelle (pas de temps entre deux profils). Dans le cas d'un système fixe au sol à visée zénith la résolution horizontale n'est pas défini, on peut toutefois considérer que la vitesse des masses d'air échantillonnées le long de la colonne atmosphérique définit en fonction de la résolution temporelle du système une certaine résolution horizontale.

### 2.3.1.2 Puissance rétrodiffusée par l'atmosphère

La démonstration de l'équation lidar ne sera pas détaillée ici, elle est disponible dans des ouvrages de référence comme Measures (1984). Il est retenu ici que l'atmosphère peut être assimilée à un filtre dont les

$j$  différents composants sont caractérisés par leur coefficients de rétrodiffusion  $\beta_j$  et d'extinction optique  $\alpha_j$ . La réponse impulsionnelle associée à ce filtre  $h_r$  (en  $s^{-1}$ ) s'exprime de la manière suivante :

$$h_r(\lambda, t) = \frac{c}{2} \cdot \frac{\cos(\theta)^2 \cdot A \cdot T_o(\lambda) \cdot T_r(\lambda) \cdot F(z(t))}{(z(t) - z_0)^2} \cdot \sum_j \beta_j(\lambda, z(t)) \cdot \exp \left[ -\frac{2}{\cos(\theta)} \cdot \sum_j \tau_j(\lambda, z_0, z(t)) \right] \quad (3)$$

Dans cette équation,  $c$  représente la vitesse de la lumière dans l'air ( $m \cdot s^{-1}$ ),  $\theta$  représente l'angle d'inclinaison de la ligne de visée par rapport à un axe vertical,  $A$  est la surface utile de l'optique de réception ( $m^2$ ),  $T_o$  et  $T_r$  sont les transmissions optiques des modules d'émission et de réception qui dépendent de la longueur d'onde.  $F$  est le facteur géométrique, encore appelé fonction de recouvrement. Il est décrit plus amplement en section 2.3.1. L'altitude moyenne  $z$  est définie par rapport au niveau moyen des mers, la distance séparant le lidar de la couche sondée est  $z - z_0$  avec  $z_0$  l'altitude du lidar.  $\tau_j$  est l'épaisseur optique du milieu diffusant  $j$  tel que  $\tau_j(\lambda, z_0, z(t)) = \int_{z_0}^{z(t)} \alpha_j(\lambda, z(t')) \cdot dz(t')$ .

Le terme somme des coefficients de rétrodiffusion dans  $h$  traduit la capacité des diffuseurs à contribuer à la réponse impulsionnelle de l'atmosphère. Le terme exponentiel traduit une atténuation par les couches atmosphériques traversées. Le terme  $A/(z(t) - z_0)^2$  est la correction de l'angle solide qui doit être apportée à la luminance rétrodiffusée. Ce terme module l'amplitude du signal lidar le long de la ligne de visée, typiquement cinq ordres de grandeurs entre les premières dizaines de mètres et la dizaine de kilomètres, nécessitant une acquisition sensible à une grande plage dynamique.

La puissance rétrodiffusée  $P_r$  par l'atmosphère après l'émission d'un rayonnement peut s'écrire comme le produit de convolution de la puissance émise et la réponse impulsionnelle de l'atmosphère :

$$P_r(\lambda, z(t)) = P_e(\lambda, t) * h_r(\lambda, t) \quad (4)$$

Si l'on assimile la forme d'une impulsion laser de l'ordre de la nanoseconde à une distribution de Dirac  $\delta$  (hypothèse valide tant que cette durée est petite par rapport à la fenêtre temporelle d'acquisition). La puissance émise ( $P_e$ ) à  $t_0$  par l'émission peut alors s'écrire  $E_e(\lambda) \cdot \delta(t - t_0)$  et on obtient alors :

$$P_r(\lambda, t) = \frac{c}{2} \cdot \frac{\cos(\theta)^2 \cdot A \cdot T_o(\lambda) \cdot T_r(\lambda) \cdot F(z(t))}{(z(t) - z_0)^2} \cdot E_e(\lambda, t_0) \cdot \sum_j \beta_j(\lambda, z(t)) \cdot \exp \left[ -\frac{2}{\cos(\theta)} \cdot \sum_j \tau_j(\lambda, z_0, z(t)) \right] \quad (5)$$

En pratique, les deux modes d'acquisition utilisés sont le mode de comptage de photons (photoélectron par seconde) et le mode analogique (généralement homogène à une tension).

### 2.3.1.3 Acquisition en comptage de photons

Ce mode de détection permet de compter le nombre de photons incidents qui sont détectés par le photodétecteur en s'affranchissant des bruits électroniques. Les photons atteignant la cathode du photodétecteur génèrent des photoélectrons par effet photoélectrique et créent des impulsions électriques enregistrées par un compteur d'impulsions pendant la durée  $\Delta t_r$  ( $\Delta z_r/c$ ) d'ouverture de la porte temporelle d'acquisition centrée sur  $t_r$ .

Ce processus peut s'écrire sous la forme d'un filtre de réponse impulsionnelle  $h_c$  (exprimée en  $J^{-1}$ ) définie par :

$$h_c(\lambda, t) = \begin{cases} \frac{\lambda \cdot \eta(\lambda)}{h \cdot c} & \text{si } |z(t)| \leq z_r + \frac{\Delta z_r}{2} \\ 0 & \text{si } |z(t)| > z_r + \frac{\Delta z_r}{2} \end{cases} \quad (6)$$

où  $\eta$  est le rendement quantique du photo-détecteur et  $h$  est la constante de Planck ( $h \sim 6,626 \cdot 10^{-34}$  J.s).

Le nombre de photons détectés  $N_d$  durant une durée  $\Delta t_r$  s'exprime donc à partir des produits de convolution successifs de la puissance laser émise par les réponses impulsionnelles du milieu diffusant et du récepteur :

$$N_d(\lambda, z(t)) = P_e(\lambda, t) \otimes h_r(\lambda, t) \otimes h_c(\lambda, t) \quad (7)$$

Un phénomène de saturation est observé lorsque plusieurs photons arrivant quasi-simultanément peuvent ne produire qu'une seule impulsion. Si l'opération de désaturation est possible, elle est limitée à quelques centaines de photons reçus par seconde. Si, comme bien souvent lors de mesures diurnes, le flux de photons est trop important, le mode de détection analogique est privilégié.

### 2.3.1.4 Acquisition analogique

En détection analogique, c'est le courant moyen en sortie du détecteur qui est échantillonné avec une période d'échantillonnage  $T_e$ . Cette période d'échantillonnage, analogue à la porte de comptage  $\Delta t_r$ , pilote la résolution verticale du lidar. D'après le théorème d'échantillonnage de Shannon, il est possible de reconstituer l'évolution temporelle réelle du courant si la fréquence maximale du spectre de puissance de ce dernier ne dépasse pas  $\frac{1}{2 \cdot T_e}$ .

Comme pour le mode de comptage de photons, on peut décrire le système électronique d'acquisition en mode analogique sous la forme d'une réponse impulsionnelle  $h_a$  (exprimée en  $A.W^{-1}$ ). Cette réponse peut s'écrire au premier ordre (Chazette 1990) :

$$h_a(\lambda, t) = \begin{cases} \frac{G(\lambda) \cdot G_A}{T_e} \cdot \exp\left(-\frac{t}{T_e}\right) & \text{si } t \geq 0 \\ 0 & \text{si } t < 0 \end{cases} \quad (8)$$

$G_A$  est le gain du préamplificateur (sans unité). Le détecteur est associé à une sensibilité  $G$ , généralement exprimée en  $A.W^{-1}$ , qui est proportionnelle au rendement quantique  $\eta$  :

$$G(\lambda) = \frac{e \cdot \lambda \cdot \eta(\lambda) \cdot G_i(\lambda)}{h \cdot c} \quad (9)$$

avec  $e$  la charge élémentaire de l'électron ( $e \sim 1.6 \cdot 10^{-19}$  C) et  $G_i$  le gain intrinsèque du détecteur qui caractérise son amplification interne.

Le produit de convolution de la puissance laser émise avec les réponses impulsionnelles du milieu diffusant et du système d'échantillonnage donne alors un courant détecté  $I_d$  (exprimé en A) discrétisé temporellement sur  $n$  période d'échantillonnage  $T_e$  :

$$I_d(\lambda, z(nT_r)) = P_e(\lambda, nT_r) \otimes h_r(\lambda, nT_e) \otimes h_a(\lambda, nT_e) \quad (10)$$

Ce courant débite dans une résistance de charge  $R_c$  (en  $\Omega$ ) et la tension  $U_d = R_c \cdot I_d$  est enregistrée.

### 2.3.1.5 Equation lidar brute

En reprenant les hypothèses d'une durée de l'impulsion laser courte vis-à-vis de la porte d'intégration  $\Delta t_r$  en mode comptage ou  $T_r$  en mode analogique, le signal lidar  $S$  peut se mettre sous la forme :

$$S(\lambda, z) = K_s(\lambda) \cdot \frac{F(z)}{(z - z_0)^2} \cdot \sum_j \beta_j(\lambda, z) \cdot \exp\left[-\frac{2}{\cos(\theta)} \cdot \sum_j \tau_j(\lambda, z_0, z)\right] + F_c(\lambda) \quad (11)$$

Le terme  $F_c$  caractérise la contribution de la lumière diffuse qui n'est pas initialement émise pour le laser, on parle de fond de ciel (même dimension que  $S$ ). La constante système  $K_s$  s'exprime pour les modes de comptage ( $m^3$ ) ou analogique ( $V.m^3$ ) par :

$$K_s(\lambda) = \begin{cases} \Delta z \cdot \cos(\theta) \cdot \frac{E_e(\lambda, t_0) \cdot \lambda \cdot \eta(\lambda)}{h \cdot c} \cdot A \cdot T_o(\lambda) \cdot T_r(\lambda) & \text{en comptage de photons} \\ \frac{c}{2} \cdot \cos(\theta)^2 \cdot E_e(\lambda, t_0) \cdot G(\lambda) \cdot G_A \cdot A \cdot T_o(\lambda) \cdot T_r(\lambda) \cdot R_c & \text{en analogique} \end{cases} \quad (12)$$

### 2.3.1.6 Contribution du fond de ciel

Le fond de ciel est la principale source de bruit lors de mesures diurnes. La puissance reçue attribuable à cette lumière diffuse est proportionnelle à la luminance spectrale du fond de ciel  $L_{FC}$  (en  $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{sr}^{-1}\cdot\text{nm}^{-1}$ ) et s'exprime :

$$P_{FC}(\lambda) \approx A \cdot \pi \cdot \left(\frac{\varphi}{2}\right)^2 \cdot \Delta\lambda \cdot L_{FC}(\lambda) \quad (13)$$

Cette expression est valide pour une ouverture angulaire de réception ( $\varphi$ ) petite. Une bande passante du filtre interférentiel  $\Delta\lambda$  (nm) étroite permet de réduire l'influence du fond de ciel sur la mesure. L'optique de réception principale caractérisée par le couple surface du collecteur  $A$  et son champ de vue  $\pi \cdot \left(\frac{\varphi}{2}\right)^2$  doit être dimensionné de façon à minimiser le fond de ciel.

On peut exprimer le terme  $F_c$  en fonction de la luminance du ciel :

$$F_c(\lambda) = \begin{cases} \frac{2 \cdot \eta(\lambda) \cdot T_o(\lambda) \cdot T_r(\lambda) \cdot A \cdot \pi \cdot \left(\frac{\varphi}{2}\right)^2 \cdot \lambda \cdot \Delta\lambda \cdot \Delta z}{\cos \theta \cdot h \cdot c^2} \cdot L_{FC}(\lambda) & \text{Comptage de photons} \\ G(\lambda) \cdot G_A \cdot A \cdot \pi \cdot \left(\frac{\varphi}{2}\right)^2 \cdot \Delta\lambda \cdot T_o(\lambda) \cdot T_r(\lambda) \cdot R_c \cdot L_{FC}(\lambda) & \text{Analogique} \end{cases} \quad (14)$$

La valeur du fond de ciel est généralement calculée en enregistrant le signal lidar alors qu'aucune impulsion laser n'est émise. Cette valeur est enregistrée avant chaque profil lidar et vaut la même valeur pour toutes les altitudes sondées.

### 2.3.1.7 Equation lidar corrigée

En pratique, l'analyse du signal lidar est effectuée à partir du signal brut corrigé du fond de ciel et de l'angle solide (dénominateur  $(z - z_0)^2$ ). Le signal ainsi exprimé (homogène à des  $\text{V}\cdot\text{m}^2$ ) est appelé  $S_2$  :

$$S_2(\lambda, z) = [S(\lambda, z) - F_c(\lambda)] \cdot (z - z_0)^2 \quad (15)$$

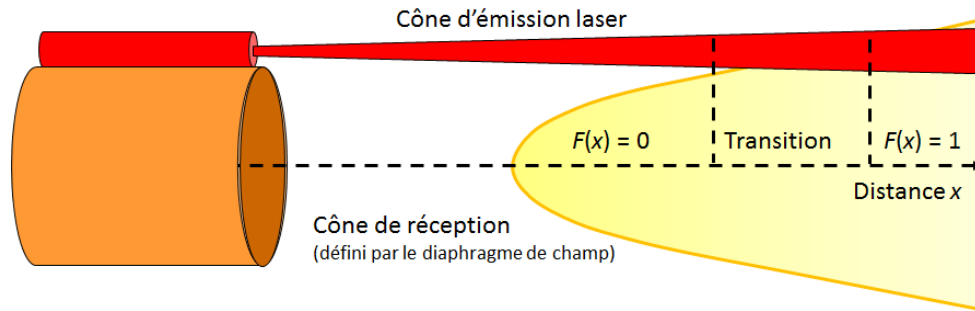
Soit :

$$S_2(\lambda, z) = K_s(\lambda) \cdot F(z) \cdot \sum_j \beta_j(\lambda, z) \cdot \exp \left[ -\frac{2}{\cos(\theta)} \cdot \sum_j \tau_j(\lambda, z_0, z) \right] \quad (16)$$

Dans cette équation, l'information sur les caractéristiques des diffuseurs atmosphériques est contenue dans les deux derniers termes. La constante  $K_s$  peut être calculée expérimentalement pour chaque système mais elle peut être amenée à varier, notamment en cas d'évolution de l'énergie émise par le laser. Le facteur géométrique  $F$  doit quant à lui être caractérisé pour accéder aux couches les plus proches de l'émetteur.

### 2.3.1 Fonction de recouvrement

La fonction de recouvrement aussi appelé facteur géométrique dépend de la géométrie du lidar et est fonction de la distance  $z$ . Ce terme caractérise le recouvrement partiel du faisceau laser d'émission et du cône de réception dans les premières centaines de mètres le long de la ligne de visée du lidar (Figure 14). Compris entre 0 et 1,  $F(z)$  est une fonction monotone croissante pour une géométrie paraxiale ou co-axiale. Elle augmente rapidement pour devenir un facteur unité au-delà d'une certaine distance (typiquement de l'ordre de 150 m pour les systèmes à court recouvrement dédiés à l'observation des basses couches de la troposphère et plusieurs kilomètres pour des systèmes à longue portée pour l'observation de la stratosphère). Si ce facteur peut être modélisé en connaissant précisément la divergence du faisceau laser, le champ de vue de la réception et la distance entre les axes optiques d'émission et de réception (Measures 1984), son évaluation expérimentale est souvent nécessaire (Chazette 2003). Des différences importantes entre ces deux approches sont souvent observées, principalement liées à une mauvaise connaissance des caractéristiques optiques des éléments du lidar et à des défauts d'alignement. C'est en effet l'une des principales sources d'incertitudes dans les premières couches échantillonnées par lidar.



**Figure 14 :** Schéma du recouvrement entre le cône d'émission et le cône de réception d'un lidar quasi-monostatique paraxial. On observe une zone de non recouvrement, une zone de recouvrement partiel et une distance à partir de laquelle le recouvrement est total (Illustration de J.Totems). N.B :  $x$  est ici analogue à la distance  $z - z_0$  des équations précédentes.

Pour calculer la fonction de recouvrement, il est nécessaire d'utiliser des tirs horizontaux dans l'atmosphère avec l'hypothèse que le milieu diffusant est homogène le long de la ligne de visée (vrai loin des sources de particules et en atmosphère mélangée, idéalement en début de soirée). Dans ce cas, l'équation lidar corrigée s'écrit à une distance horizontale  $x$  du laser :

$$S_2(\lambda, x) = K(\lambda) \cdot F(x) \cdot \underbrace{\sum_j \beta_j(\lambda, x)}_{\beta_t(\lambda, x)} \cdot \exp \left[ -2 \cdot \underbrace{\sum_j \tau_j(\lambda, x)}_{\int_0^x \alpha_t(\lambda, x') \cdot dx'} \right] \quad (17)$$

où  $\beta_t$  et  $\alpha_t$  sont les coefficients de rétrodiffusion et d'extinction totaux du milieu dans lequel le faisceau laser se propage, supposés constants le long de la ligne de visée horizontale. En prenant le logarithme de l'expression précédente on obtient l'équation :

$$\ln(S_2(\lambda, x)) = \ln(F(x)) \underbrace{-2 \cdot \alpha_t(\lambda) \cdot x + C}_{\text{Droite } y} \quad (18)$$

En se plaçant suffisamment loin de l'émission  $F(x) = 1$  (par exemple entre 800 m et 1500 m pour les systèmes utilisés dans ces travaux), l'équation précédente devient celle d'une droite de pente  $-2 \cdot \alpha_t(\lambda)$ . Une droite  $y$  peut donc être ajustée par régression sur un intervalle où il est certain que  $F$  a atteint l'unité et que l'hypothèse d'homogénéité de l'atmosphère est vérifiée. L'expression du facteur géométrique du lidar est alors donnée par :

$$F(x) = \exp[\ln(S_2(\lambda, x)) - y] \quad (19)$$

La Figure 15a représente ce calcul avec le logarithme du signal corrigé (bleu) et la droite de régression  $y$  (rouge). Le facteur de recouvrement ainsi calculé, Figure 15b, est tracé avec un écart type correspondant à la variabilité induite par l'utilisation de plusieurs profils lidar consécutifs pour réduire le bruit de la mesure.

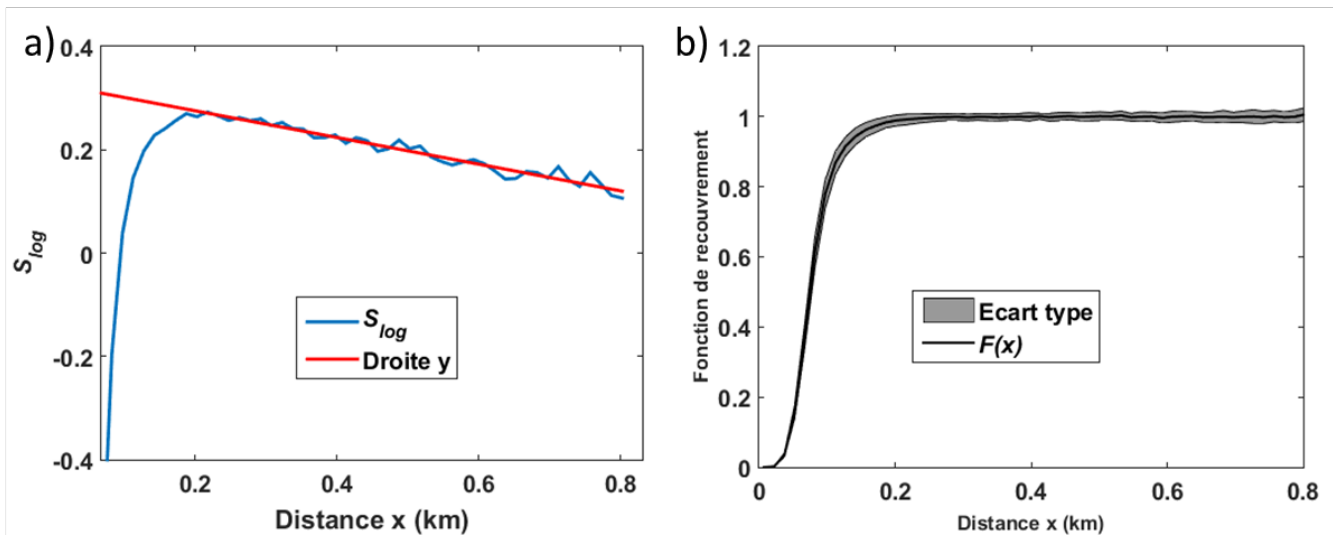


Figure 15 : Calcul du facteur géométrique a) et représentation de celui-ci b).  $S_{log}$  est le logarithme du signal corrigé,  $y$  est la droite de régression sur un intervalle où il est certain que le facteur de recouvrement a atteint l'unité.

Pour pouvoir repousser les limites de détection dans les basses couches atmosphériques, il convient après avoir évalué précisément le facteur géométrique de corriger le signal  $S_2$  en le multipliant par  $\frac{1}{F}$ . En pratique la correction du facteur géométrique lorsque ces valeurs sont inférieures à  $\sim 0,8$  n'est pas prise en compte car sujette à trop d'incertitudes.



## 2.3.2 Sources d'incertitudes

Comme pour toutes mesures, les mesures lidar sont affectées par différentes sources d'incertitudes qu'il convient d'identifier et d'en évaluer les contributions relatives. On distingue les incertitudes issues du fonctionnement de l'instrument lui-même (bruit électronique par exemple) et celles issues de l'environnement échantillonné (le fond de ciel de l'atmosphère par exemple). Il convient également d'identifier ce qui induit une erreur sous forme d'écart-type du signal (erreur statistique) et ce qui est à l'origine d'un biais de la mesure.

### 2.3.2.1 Ecart-types

On dénombre cinq principales contributions à l'erreur statistique. Le bruit de grenaille (aussi nommé bruit de Schottky, bruit quantique ou « shot noise » en anglais), le bruit d'obscurité, le bruit de Nyquist-Johnson, le bruit d'amplification et le bruit de numérisation. Si tous ces bruits affectent le signal enregistré en mode analogique, seuls les bruits de grenaille et de numérisation affectent significativement la mesure en comptage de photons. Les détails de l'expression des bruits présentés ci-après peuvent être trouvés dans les références Measures (1984) et Chazette (1990).

**Bruit de grenaille.** Cette source de bruit est liée à l'efficacité variable de l'arrachement d'un photoélectron à la photocathode par un photon rétrodiffusé. Les électrons créés par effet photoélectrique ne débitent alors pas un courant continu, mais une tension fluctuante d'écart-type  $\sigma_G$  (en V) en mode de détection analogique :

$$\sigma_G(\lambda, z) = \sqrt{\frac{G_A \cdot h \cdot \frac{c^2}{\lambda} G(\lambda) \cdot \zeta \cdot R_c \cdot S(\lambda, z)}{2 \cdot p \cdot \frac{\Delta z}{\cos(\theta)} \cdot \eta}} \quad (20)$$

Le facteur  $\zeta$  représente l'excès de gain du détecteur (sans dimension, de l'ordre de 1,2). Le nombre  $p$  représente le nombre de tirs lidar moyennés pour obtenir un profil moyen.

En mode comptage de photons, le bruit de grenaille est donné directement par la statistique de Poisson :

$$\sigma_G(\lambda, z) = \sqrt{S(\lambda, z)} \quad (21)$$

**Bruit d'obscurité.** Ce bruit est présent bien que le détecteur ne soit pas « éclairé ». Deux processus influencent le courant d'obscurité : i) le courant résiduel provoqué par l'apparition aléatoire de paires électron/trou due à la température ambiante et ii) la présence de défauts en surface du photodétecteur ou

---

dans le cas d'un photomultiplicateur d'un courant de fuite continu « parasite » de la photocathode (dénommé « current leakage ») ; ce courant, d'autant plus important que la surface du photodétecteur/photocathode est grande. L'écart type  $\sigma_o$  (en V) dû à ces deux courants d'obscurité du capteur est relié à la puissance équivalente de bruit du détecteur (« noise equivalent power »  $NEP_D$ , exprimée en  $W.Hz^{-1/2}$ ) et s'exprime par :

$$\sigma_o(\lambda) = R_c \cdot NEP_D \cdot G_A \cdot G(\lambda) \cdot \sqrt{\frac{c}{4 \cdot p \cdot \frac{\Delta z}{\cos(\theta)}}} \quad (22)$$

**Bruit de Nyquist – Johnson.** Ce bruit aussi appelé bruit thermique ou bruit de résistance est lié à l'agitation thermique des porteurs des charges (électrons) dans la résistance de charge en équilibre thermique à la température  $T$  (en Kelvin). Son écart type  $\sigma_{NJ}$  (en V) augmente avec  $T$  et s'écrit :

$$\sigma_{NJ}(T) = G_A \cdot \sqrt{\frac{R_c \cdot c \cdot k_B \cdot T}{p \cdot \frac{\Delta z}{\cos(\theta)}}} \quad (23)$$

avec  $k_B$  la constante de Boltzmann valant  $1,38 \cdot 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$ .

**Bruit d'amplification.** Le bruit d'amplification peut être caractérisé par une puissance équivalente de bruit ( $NEP_A$  exprimée en  $V.Hz^{-1/2}$ ) comme pour le détecteur. Son écart type  $\sigma_A$  (en V) s'écrit alors :

$$\sigma_A = NEP_A \cdot \sqrt{\frac{c}{4 \cdot p \cdot \frac{\Delta z}{\cos(\theta)}}} \quad (24)$$

**Bruit de numérisation.** Ce bruit aussi appelé bruit de quantification est associé au convertisseur analogique-numérique au moment de la numérisation du signal lidar. Il affecte aussi bien la détection analogique que la détection par comptage de photons. Son écart type  $\sigma_N$  est donné par la relation :

$$\sigma_N = \frac{1}{2\sqrt{3}} \cdot \frac{\Delta S}{2^{n_b} - 1} \quad (25)$$

où  $\Delta S$  est la dynamique du signal mesuré et  $n_b$  est le nombre de bits du numériseur.

### 2.3.2.1 Rapport signal à bruit

Dans le signal lidar, l'information utile est extractible si et seulement si l'amplitude moyenne de la totalité du bruit peut être considérée petite devant l'amplitude du signal géophysique en tant que tel. Un indicateur

permet de quantifier cette disponibilité de l'information, c'est le rapport signal à bruit (RSB, nommé en anglais SNR pour « Signal to noise ratio »). Ce ratio est le rapport du signal utile sur la composante totale de bruit. Les bruits explicités précédemment étant supposés indépendants les uns des autres, le SNR est donné par la relation :

$$SNR = \frac{S(\lambda, z) - F_c(\lambda)}{\sqrt{[\sigma_G(\lambda, z)]^2 + [\sigma_O(\lambda)]^2 + [\sigma_{NJ}(T)]^2 + [\sigma_A]^2 + [\sigma_N(\lambda, z)]^2}} \quad (26)$$

En explicitant les différents bruits dans l'équation, on montre que le rapport signal à bruit est directement proportionnel à la racine du nombre de profil moyennés  $p$  et à la racine de la résolution verticale  $\Delta z$ . On comprend logiquement qu'au prix d'une dégradation de la résolution spatiale et/ou temporelle, l'information utile contenue dans le signal lidar sera plus aisément extractible.

Pour des mesures diurnes le bruit de grenaille est souvent dominant. En utilisant des photomultiplicateurs au  $NEP_D$  faible et une numérisation sur au moins 10 bits, les autres contributions sont négligeables. Un calcul d'ordre de grandeur montre que pour des mesures diurnes le  $SNR \propto \sqrt{pE_e}$  et pour des mesures nocturnes  $SNR \propto \sqrt{pE_e}$ . Du point de vue du dimensionnement de l'émission, cela implique que pour avoir un SNR optimal en toutes conditions, il faut privilégier un laser à plus haute énergie d'émission par impulsion plutôt qu'un laser à plus haute cadence de tir, pour un système à puissance moyenne constante.

Dès que le signal utile à mesurer devient faible, le mode comptage de photon devient plus performant. Dans ce mode de détection, très utilisé pour les mesures nocturnes, les bruits électroniques sont en théorie éliminés par seuillage. Le rapport signal à bruit s'exprime comme la racine du signal du fait de la prépondérance du bruit de grenaille :

$$SNR_{Comptage} = \frac{S(\lambda, z) - F_c(\lambda)}{\sigma_G(\lambda, z)} = \frac{S(\lambda, z) - F_c(\lambda)}{\sqrt{S(\lambda, z)}} \underset{F_c \rightarrow 0 \text{ de nuit}}{\equiv} \sqrt{S(\lambda, z)}$$

### 2.3.2.2 Biais

Les biais sont des termes additifs ou multiplicatifs qui interviennent dans les équations lidar. Difficiles à déceler, ils peuvent être instrumentaux ou environnementaux. Les principaux biais rencontrés sont listés ci-après :

- Au niveau du traitement optique, la caractérisation des filtres interférentiels s'avère cruciale pour connaître précisément leurs longueurs d'ondes centrales, leurs largeurs et leurs transmissions, notamment pour certaines longueurs d'ondes critiques. Par exemple, la largeur des filtres a une

importance pour la mesure de la polarisation et des rétrodiffusions Raman. Pour la mesure de la température (Cf. Chapitre 3), une transmission extrêmement faible ( $< 10^{-4}$ ) au niveau de la longueur d'onde de rémission est nécessaire pour éviter une contamination du signal Raman par du signal élastique, ce qui biaiserait la mesure.

- Lors de l'acquisition, il est nécessaire d'éviter au maximum tous les parasites électromagnétiques susceptibles de perturber la mesure. Si la ligne de base du signal n'est pas constante, des artefacts peuvent émerger.
- En post-traitement, la caractérisation du facteur géométrique est critique pour les mesures dans les premières couches sondées par lidar. Calculé dans des conditions spécifiques (Cf. section 2.3.1), ce facteur corrige le signal lidar pour obtenir de l'information au plus proche de l'émission. Si la détermination du facteur géométrique n'est pas convenable, la correction induira un biais multiplicatif dans la zone influencée par le recouvrement partiel de l'émission et de la réception.
- Le fond de ciel est un frein majeur pour les mesures diurnes. Si l'utilisation des filtres interférentiels et l'utilisation du domaine UV permettent de réduire son influence, il est toujours nécessaire de le mesurer précisément. Cette précision est cruciale car une mauvaise évaluation du fond de ciel entraînera un biais additif lors de son retranchement au signal. En pratique, avant chaque séquence de tir du laser, le signal est enregistré, il correspond alors à la contribution du fond de ciel. Il est également possible d'obtenir une bonne estimation du fond de ciel au niveau du signal pris à très grande distance (distance selon la puissance de l'émission). Une comparaison des valeurs de fond de ciel calculées via ces deux techniques permet la mise en évidence de déformations de la ligne de base du signal.
- Les équations présentées précédemment ne tiennent pas compte de la diffusion multiple. Elle est considérée négligeable pour les mesures discutées dans ce travail. Pourtant, dans un milieu diffusif dense composé de diffuseurs de tailles très supérieures à la longueur d'émission (typiquement un nuage), la diffusion multiple doit être prise en considération.

Dans le chapitre 3, les principales sources de biais pour la mesure de température par lidar Raman rotationnel sont discutées plus en détails.

## 2.4 Lidar Rayleigh-Mie

Le lidar Rayleigh-Mie est le premier lidar dédié à l'observation de l'atmosphère (Fiocco et Smullin 1963). Basé sur la diffusion élastique, ce système a pour but premier d'identifier les couches de diffuseurs présents dans l'atmosphère.

### 2.4.1 Principe de mesure

#### 2.4.1.1 Mécanismes de diffusion élastique

Un phénomène de diffusion élastique est caractérisé par une interaction au cours de laquelle l'énergie cinétique est conservée, seule la direction de propagation est susceptible d'être modifiée. Dans le cas de la diffusion de Rayleigh, l'interaction se produit entre un photon incident et une molécule (de taille inférieure à la longueur d'onde de la lumière incidente,  $\lambda$ ). Après interaction, le photon repart avec la même énergie, soit la même longueur d'onde, et sa direction probable est donnée par la fonction de phase de diffusion schématisée en Figure 16. La fonction de phase de la diffusion Rayleigh dépend de l'angle de diffusion  $\theta$  par rapport à la direction d'incidence du photon selon  $p(\theta) = \frac{3}{4} \cdot [1 + \cos^2(\theta)]$ . Cette fonction de phase est symétrique, les probabilités d'une rétrodiffusion (diffusion à  $\theta=180^\circ$ ) ou d'une diffusion dans le sens de l'incidence ( $\theta = 0^\circ$ ) sont égales. Ce n'est plus le cas lorsque les particules sont de tailles équivalentes ou supérieures à la longueur d'onde du photon incident. On passe alors dans le domaine de la diffusion de Mie qui donne une probabilité de diffusion vers « l'avant » plus grande qu'une rétrodiffusion. Le déséquilibre est d'autant plus marqué que les particules sont très grandes comparativement à  $\lambda$ . Pour des objets plus imposants encore, c'est le domaine de l'optique géométrique qu'il faut utiliser.

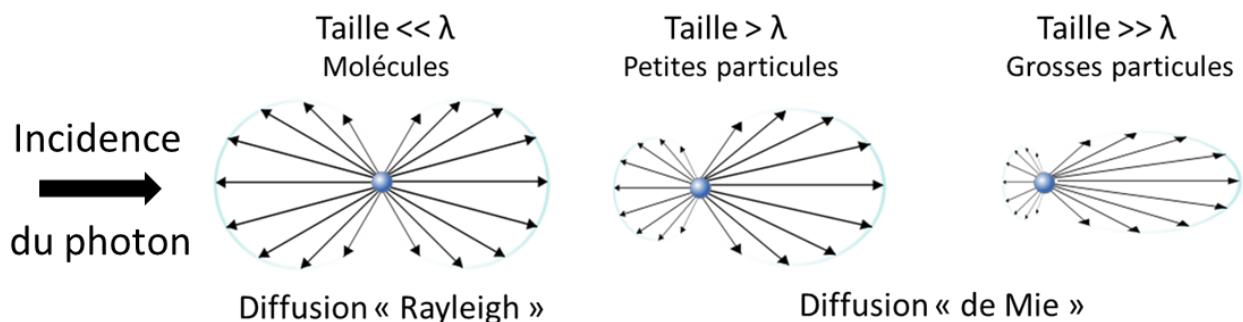


Figure 16 : Illustration des fonctions de phase de la diffusion Rayleigh et de la diffusion de Mie selon la taille des diffuseurs (échelles non respectées).

Du point de vue du lidar, les photons rétrodiffusés dans le champ de vue du système de réception sont collectés et contribuent à  $\beta$  (Eq. 16). Les autres sont pris en compte dans  $\alpha$  qui caractérise l'extinction de l'atmosphère.

### 2.4.1.2 Paramètres optiques de l'atmosphère

Les diffuseurs impliqués dans le fonctionnement d'un lidar Rayleigh-Mie sont les molécules, les aérosols et les nuages. Dans ce qui suit, on se place en atmosphère non nuageuse et une distinction est faite dans les variables présentées selon la contribution des molécules (indice m) et des aérosols (indice a).

**Absorption.** La capacité d'une particule à absorber un rayonnement dépend essentiellement de sa composition chimique. Pour les molécules, l'absorption du rayonnement est intimement liée à leurs caractéristiques énergétiques. Un photon peut être absorbé lorsque son énergie correspond à une transition entre deux niveaux d'énergie d'une molécule. D'autre part, une molécule peut être dissociée par des photons dépassant l'énergie d'ionisation de la molécule. Au-delà de cette énergie il y a alors un continuum énergétique d'absorption. Dans l'atmosphère, l'absorption moléculaire se traduit par des zones transparentes, appelées fenêtres atmosphériques, ainsi que des zones opaques présentées dans la Figure 9. À 355 nm, les molécules de la troposphère n'absorbent que très peu le rayonnement : c'est la fenêtre atmosphérique du domaine proche UV - visible ( $\approx 340$  à  $700$  nm). Seule la diffusion moléculaire est donc à considérer.

Pour les particules, on exprime le coefficient d'absorption en fonction de la concentration en nombre des particules  $N_i$  de type  $i$  et de la section efficace d'absorption ( $\sigma_{abs,i}$ ):

$$\gamma(\lambda, z) = \sum_i N_i(z) \cdot \sigma_{abs,i}(\lambda) \quad (27)$$

**Diffusion.** La diffusion est un processus physique fondamental qui intervient à toutes les longueurs d'ondes dans des proportions variables. Elle contribue à l'atténuation globale du rayonnement électromagnétique à travers le milieu traversé, donc à l'extinction.

On exprime le coefficient de diffusion total en fonction de la densité des diffuseurs  $N_i$  de type  $i$  et de leurs sections efficaces de diffusion respectives:

$$\beta_t(\lambda, z) = \sum_i N_i(z) \cdot \sigma_{diff,i}(\lambda) \quad (28)$$

Pour une direction donnée, il faut considérer la section efficace différentielle dépendant de l'angle solide de diffusion  $\Omega_{diff}$ . Pour le cas particulier d'une diffusion à  $180^\circ$  de la direction d'incidence on désignera dans la suite  $\beta$  le coefficient de rétrodiffusion, soit :

$$\beta(\lambda, \pi, z) = \sum_i N_i(z) \cdot \left( \frac{\partial \sigma_{diff,i}(\lambda, \theta)}{\partial \Omega_{diff}} \right)_{\theta=\pi} \quad (29)$$

Pour les molécules en lumière naturelle, la section efficace de diffusion Rayleigh totale est proportionnelle à  $\lambda^{-4}$  et est donnée par :

$$\sigma_R(\lambda) = \frac{8\pi^3}{3} \cdot \frac{(m(\lambda)^2 - 1)^2}{N^2 \cdot \lambda^4} \cdot \frac{6 + 3\delta}{6 - 7\delta} \quad (30)$$

$N$  est le nombre de molécules par unité de volume (intrinsèquement lié à la pression atmosphérique),  $\lambda$  la longueur d'onde,  $m$  l'indice de réfraction de l'air, et  $\delta$  le facteur de dépolarisation ( $\delta \sim 0,0279$ ) qui caractérise l'anisotropie de la molécule.

Pour des longueurs d'onde dans le domaine UV, la section efficace Rayleigh n'est pas exactement proportionnelle à  $\lambda^{-4}$  et peut être approché empiriquement par (Nicolet 1984) :

$$\sigma_R(\lambda) = 3,9 \cdot 10^{-28} \cdot \lambda^{-(3,916+0,074 \cdot \lambda + \frac{0,05}{\lambda})} \quad (31)$$

La section efficace de rétrodiffusion est donnée par :

$$\left( \frac{\partial \sigma_R(\lambda, \theta)}{\partial \Omega} \right)_{\theta=\pi} = 4,678 \cdot 10^{-29} \cdot \lambda^{-(3,916+0,074 \cdot \lambda + \frac{0,05}{\lambda})} \quad (32)$$

Pour obtenir une section efficace en  $\text{cm}^2$ ,  $\lambda$  doit être exprimé en micromètre. A 355 nm, cela donne une section efficace de rétrodiffusion moléculaire de  $3,21 \cdot 10^{-27} \text{ cm}^2 \cdot \text{sr}^{-1}$ .

**Extinction.** Le coefficient d'extinction de l'atmosphère est la somme de l'absorption et de la diffusion de ses constituants.

$$\alpha(\lambda, z) = \gamma(\lambda, z) + \beta(\lambda, z) \quad (33)$$

On note  $\alpha(z)$  et  $\beta(z)$  les coefficients d'extinction et de rétrodiffusion exprimés en  $\text{km}^{-1}$  et en  $\text{km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$ .

Pour les molécules,  $\alpha_m$  et  $\beta_m$  sont reliés par la fonction de phase moléculaire  $\varphi_m$  :

$$\alpha_m(\lambda, z) = \frac{1}{K_f} \cdot \frac{8\pi}{3} \cdot \beta_m(\lambda, \theta, z) \quad (34)$$

$\underbrace{\hspace{1.5cm}}_{1/BER_m}$

Avec  $K_f$  le facteur de correction de King (King 1923) qui prend en compte l'anisotropie des molécules atmosphériques. En considérant ce facteur de correction égal à 1 ( $\sim 1,052$  Bates, 1984), le coefficient de rétrodiffusion moléculaire calculé pour une onde incidente à 355 nm est suretimé de 1,5 % (Hinkley 1976).

**Épaisseur optique.** L'épaisseur optique est une grandeur sans dimension qui caractérise l'opacité de l'atmosphère à un rayonnement. Elle est calculée dans une colonne d'air comprise entre les altitudes  $z_0$  et  $z$ . C'est mathématiquement l'intégrale de l'extinction sur l'altitude  $z$  :

$$\tau_i(\lambda, z) = \int_{z_0}^z \alpha_i(\lambda, z') dz' \quad (35)$$

où « i » peut être « m » ou « a ». Les valeurs typiques de  $\tau_a$  à 355 nm varient de 0 en atmosphère dite Rayleigh à 0.1 en atmosphère peu chargée et peuvent dépasser l'unité pour une atmosphère très chargée en aérosols. On note l'épaisseur optique des aérosols *AOD* ou *AOT* pour « aerosol optical depth » ou « aerosol optical thickness ».

**Exposant d'Angström.** L'exposant d'Angström (Ångström 1964) traduit la dépendance spectrale du coefficient d'extinction et de l'épaisseur optique. Ce coefficient noté  $\hat{a}$  est sans dimension et se définit entre deux longueurs d'onde comme :

$$\frac{\tau(\lambda_1)}{\tau(\lambda_0)} = \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_0}\right)^{-\hat{a}} \quad \text{ou} \quad \frac{\alpha(\lambda_1)}{\alpha(\lambda_0)} = \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_0}\right)^{-\hat{a}} \quad (36)$$

Ce qui donne :

$$\hat{a} = -\frac{\ln\left(\frac{\tau(\lambda_1)}{\tau(\lambda_0)}\right)}{\ln\left(\frac{\lambda_1}{\lambda_0}\right)} \quad \text{ou} \quad \hat{a} = -\frac{\ln\left(\frac{\alpha(\lambda_1)}{\alpha(\lambda_0)}\right)}{\ln\left(\frac{\lambda_1}{\lambda_0}\right)} \quad (37)$$

Le coefficient d'Angström est un bon indicateur de la taille moyenne de l'aérosol. Pour une « grande » particule comme une gouttelette d'eau ou cristal de glace dans un nuage,  $\hat{a}$  tend vers 0 traduisant une indépendance de la longueur d'onde pour la diffusion (les nuages sont vus blancs). Pour des poussières désertiques  $\hat{a} \sim 0,1$  (peut même être parfois négatif),  $\hat{a} \sim 0,7$  pour les aérosols marins,  $\hat{a} \sim 1,3$  à  $1,7$  pour les particules de pollution (les fumées de particules fines sont perçues bleutées) et  $\sim 4$  pour les molécules (Cattrall et al. 2005).

Finalement, pour une longueur d'onde donnée, on a donc:

$$\alpha(\lambda, z) = \alpha_m(\lambda, z) + \alpha_a(\lambda, z) \quad (38)$$

$$\beta(\lambda, z) = \beta_m(\lambda, z) + \beta_a(\lambda, z) \quad (39)$$

La partie moléculaire peut aisément être calculée via la loi des gaz parfaits en connaissant le profil vertical de pression et la section efficace de diffusion moléculaire (Eq. 32 et 34). Le profil vertical de pression peut



être tiré d'un modèle, comme celui de l'US standard, des sorties des modèles de prévisions météorologiques ou encore de mesure *in situ* comme les radiosondages.

**Ratio lidar.** Pour la mesure lidar, on définit le « backscatter to extinction ratio » (BER), paramètre utilisé pour la résolution de l'équation lidar. On trouve très usuellement l'inverse du BER dans la littérature scientifique, appelé ratio lidar (« Lidar ratio », LR). Il caractérise la part de rétrodiffusion par rapport à l'extinction :

$$BER_a(\lambda, z) = \frac{\beta_a(\lambda, z)}{\alpha_a(\lambda, z)} \quad (40)$$

Ce coefficient est un levier pour retrouver les propriétés réelles des aérosols lors de l'inversion de l'équation lidar, il varie typiquement de 0,01 à 0,04 (Chazette et Royer 2017; Dieudonné et al. 2015; Chazette, Totems, Ancellet, et al. 2016) soit des LR  $\sim 25 - 100$ . Le BER est relié à l'albédo de simple diffusion  $\omega_0$ ,  $\omega_0 = \frac{\beta_a(z)}{\gamma_a(z) + \beta_a(z)}$  par l'indicatrice de diffusion à  $180^\circ$ ,  $BER = \omega_0 \cdot p(\pi)$ .

De manière analogue pour les molécules  $BER_m$  est constant et vaut  $BER_m = \frac{\beta_m(z)}{\alpha_m(z)} \stackrel{\text{d'après Eq.34}}{=} \frac{3}{8\pi}$ .

### 2.4.2 Equation du lidar Rayleigh-Mie

Dans ce cadre, l'équation présentée en section 2.3.1.7 peut se réécrire en ciel non nuageux :

$$S_2(\lambda, z) = K_s(\lambda) \cdot F(z) \cdot (\beta_m(\lambda, z) + \beta_a(\lambda, z)) \cdot \exp \left\{ -\frac{2}{\cos(\theta)} \cdot \int_{z_0}^z [\alpha_m(\lambda, z') + \alpha_a(\lambda, z')] dz' \right\} \quad (41)$$

Dans cette équation, en plus de la constante système, les deux seules inconnues géophysiques sont alors les contributions aérosols des coefficients d'extinction et de rétrodiffusion.

### 2.4.3 Analyse du signal

Pour analyser le signal lidar, il convient de rechercher le long du profil une zone de référence où les caractéristiques de l'atmosphère sont supposées connues. Cette zone est souvent nommée « zone Rayleigh » car supposée « vide » de particules. Une telle zone de référence se retrouve généralement en altitude, dans

la troposphère libre ; sur la Figure 17 cette zone se trouve au-dessus de ~5-6 km d'altitude.

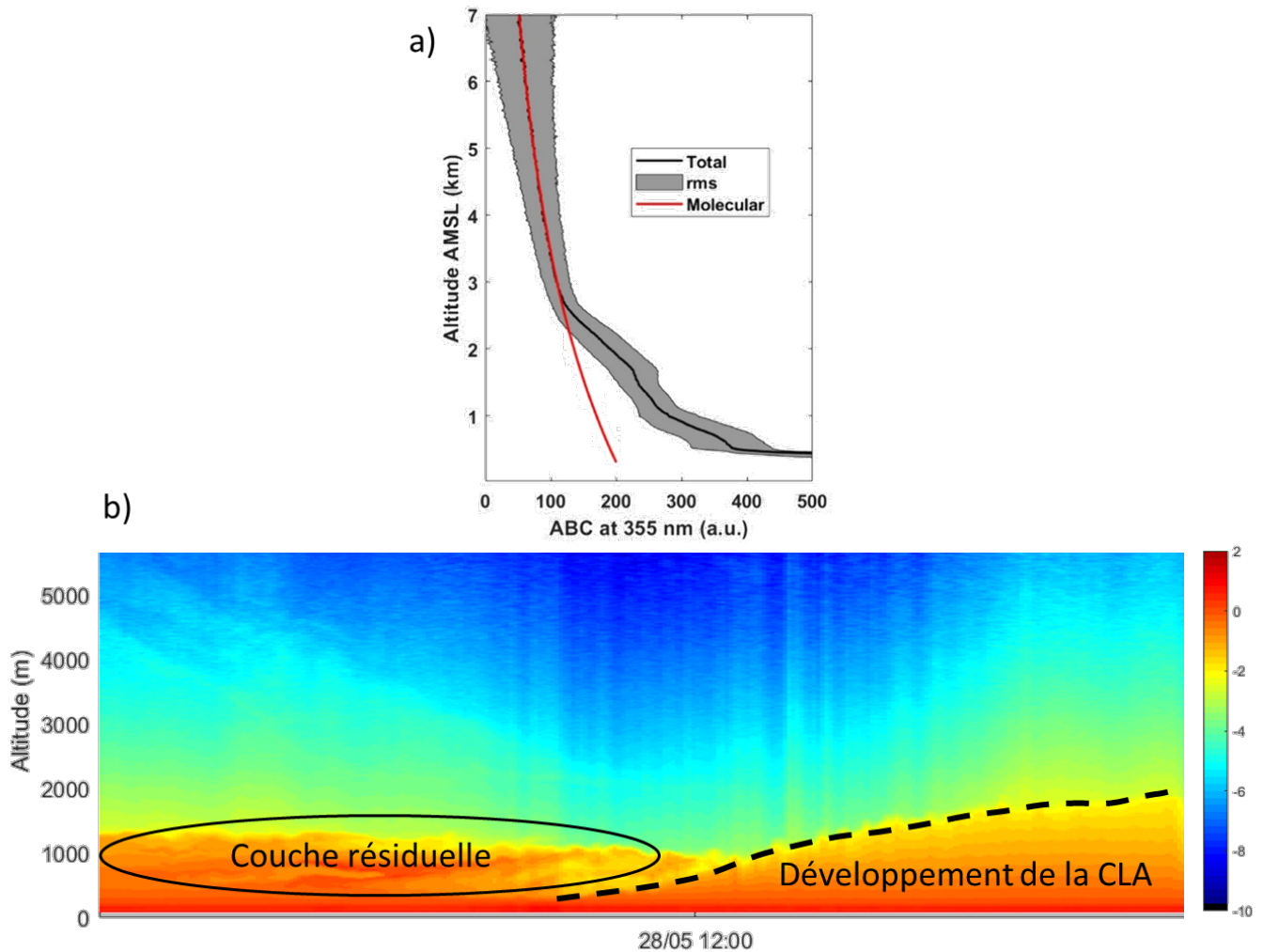


Figure 17 : Exemple de profil lidar corrigé, noté ici ABC a). La courbe noire représente le signal total, la rouge, ce que serait le signal si l'atmosphère était composée exclusivement de molécules (dit signal Rayleigh). Sur le profil deux couches sont identifiables : une première proche du sol correspondant à la couche limite atmosphérique (CLA) et une deuxième la surplombant (transport d'aérosols). La figure (a) est tirée de l'article Chazette et al. (2019a). L'accumulation de profils corrigés sur une journée (le 28 mai 2020 ici) est également présentée en 2D (b). On y voit en couleur le signal  $S_2$  corrigé (exprimé en dB) dessiner la structuration de l'atmosphère et notamment le développement de la CLA.

Sur le signal  $S_2$ , il est déjà possible d'identifier différentes structures de l'atmosphère qui sont plus ou moins marquées. En général, la couche limite atmosphérique (CLA) est assez bien délimitée, il est souvent possible de voir son développement et l'érosion de la couche résiduelle nocturne lorsque le signal lidar est représenté en 2D sur un cycle diurne complet Figure 17b. Les nuages et les couches de diffuseurs assez épaisses sont également directement visibles sur le signal non-inversé.

### 2.4.3.1 Paramètres obtenus directement

**Beta apparent.** Il est possible d'affiner un peu la représentation du  $S_2$  pour obtenir un paramètre mieux adapté pour la description des couches d'aérosols : le beta apparent ( $\beta_{app}$ ). Ce paramètre est défini comme le signal  $S_2$ , normalisé par le signal  $S_2$  pris dans une zone de référence (Rayleigh) et corrigé de la transmission moléculaire. Cela donne pour un lidar en visée zénith :

$$\beta_{app}(\lambda, z) = \frac{S_2(\lambda, z)}{S_2(\lambda, z_{ref})} \cdot \beta_m(\lambda, z_{ref}) \cdot \frac{\exp\left(2 \cdot \int_{z_0}^z \alpha_m(\lambda, z') dz'\right)}{\exp\left(2 \cdot \int_{z_0}^{z_{ref}} \alpha_m(\lambda, z') dz'\right)} \quad (42)$$

Soit :

$$\beta_{app}(\lambda, z) = \beta(\lambda, z) \cdot \exp\left(-2 \cdot \int_{z_{ref}}^z \alpha_a(\lambda, z') dz'\right) \quad (43)$$

Avec le  $\beta_{app}$  il est possible de mettre facilement en évidence la présence de couches d'aérosols. Cependant, il ne permet pas d'obtenir des informations quant à la nature de ces aérosols ni de quantifier leurs propriétés optiques.

**Rapport de dépolarisation.** Si le système lidar a été conçu pour pouvoir discriminer les signaux à la polarisation parallèle et perpendiculaire à la polarisation d'émission (avec des lames de Brewster par exemple), alors il est possible de calculer directement le rapport de dépolarisation linéaire volumique (VDR pour « Volume Depolarization Ratio »). Ce rapport s'exprime (Chazette et al. 2012):

$$VDR(\lambda, z) = \frac{\beta_{\perp}(\lambda, z)}{\beta_{//}(\lambda, z)} \approx \frac{T_{\perp}^{//} \cdot S_{2,\perp}(\lambda, z)}{R_k \cdot S_{2,//}(\lambda, z)} - (1 - T_{//}^{//}) \cdot (1 - T_{\perp}^{//}) \quad (44)$$

Avec de manière générale  $S_2 = S_{2,\perp} + S_{2,//}$ , la somme des composantes de polarisation perpendiculaire ( $\perp$ ) et parallèle ( $//$ ) du signal rétrodiffusé.  $T_{\perp}^{//}$  et  $T_{//}^{//}$  représentent les transmissions optiques pour la polarisation parallèle des lames de séparation, respectivement pour les voies  $\perp$  et  $//$ . Elles sont de l'ordre 0,9 pour les lames utilisées au LSCE. Le terme  $(1 - T_{//}^{//}) \cdot (1 - T_{\perp}^{//})$  jauge l'imperfection de la séparation des polarisations par le lidar. Le ratio des constantes instrumentales  $R_k = \frac{K_{s,\perp}}{K_{s,//}}$ , aussi nommé rapport des gains, peut s'écrire pour les deux voies aux polarisations croisées dans la zone de référence Rayleigh :

$$R_k \approx \frac{S_{2,\perp}(\lambda, z_{ref}) \cdot T_1^{\parallel}}{S_{2,//}(\lambda, z_{ref}) \cdot \left[ (1 - T_0^{\parallel}) \cdot (1 - T_1^{\parallel}) + \frac{\beta_{m,\perp}(\lambda, z_{ref})}{\beta_{m,//}(\lambda, z_{ref})} \right]} \quad (45)$$

Pour les molécules, et avec un filtre interférentiel fin de 0,5 nm d'épaisseur à 355 nm, le  $VDR_m$  est connu et vaut 0,3945 % (Hinkley 1976). Dans ces équations (44) et (45), les transmissions  $T_{\parallel}^{\perp}$  et  $T_{\perp}^{\perp}$  de l'ordre de  $10^{-3}$  sont négligées.

Le VDR renseigne qualitativement sur le pouvoir dépolarisant des particules en suspension dans l'air. Exprimé en %, ce paramètre est faible pour les particules sphériques peu dépolarisantes, de l'ordre du %, et augmente significativement pour les particules les plus dépolarisantes (particules minérales, cristaux) de l'ordre de plusieurs dizaines de %.

### 2.4.3.2 Méthode d'inversion de Klett

Pour obtenir de manière quantitative les différentes propriétés optiques des aérosols et notamment leurs coefficients d'extinction et de rétrodiffusion, l'équation lidar doit être inversée. On parle d'inversion lidar car c'est un exercice de problème inverse mal posé (plusieurs inconnues pour une équation). Il existe plusieurs techniques d'inversion mais la plus répandue est celle développée par Klett (Klett 1981; Klett 1985). En partant de l'équation du  $S_2$  corrigé du facteur géométrique et en prenant la dérivée par rapport à  $z$  du logarithme on obtient (pour une visée zénith) :

$$\frac{\partial[\ln(S_2)]}{\partial z} = \frac{1}{\beta(\lambda, z)} \cdot \frac{\partial\beta(\lambda, z)}{\partial z} - \frac{2}{BER_a(\lambda, z)} \cdot \beta(\lambda, z) - 2\alpha_m(\lambda, z) \cdot \left(1 - \frac{BER_m}{BER_a(\lambda, z)}\right) \quad (46)$$

Cette équation prend la forme d'une équation différentielle de Bernoulli d'ordre 1 dont la solution est donnée par Klett (1981, 1985) :

$$\beta(\lambda, z) = \frac{S_2(\lambda, z) \cdot Q_k(\lambda, z)}{\frac{S_2(\lambda, z_{ref})}{\beta(\lambda, z_{ref})} + 2 \cdot \int_z^{z_{ref}} \frac{S_2(\lambda, z') \cdot Q_k(\lambda, z')}{BER_a(\lambda, z')} dz'} \quad (47)$$

Avec :

$$Q_k(\lambda, z) = \exp \left\{ 2 \cdot \int_z^{z_{ref}} \left[ \frac{BER_m(\lambda, z')}{BER_a(\lambda, z')} - 1 \right] \cdot \alpha_m(\lambda, z') dz' \right\} \quad (48)$$

Cette équation solution de  $\beta$  est sous-déterminée car elle nécessite la connaissance du  $BER_a$ . Seul, un lidar Rayleigh-Mie ne permet donc pas de conclure sur une valeur quantitative du coefficient de rétrodiffusion. Toutefois, une astucieuse utilisation de la mesure d'un photomètre solaire donnant accès à la valeur intégrée de l'épaisseur optique de l'atmosphère permet sous l'hypothèse d'un  $BER_a$  constant le long de la colonne atmosphérique, une approche itérative sur le  $BER_a$  pour résoudre le problème. Un  $BER_a$  est choisi et évolue itérativement jusqu'à ce que la valeur fournie par le lidar en épaisseur optique corresponde à celle donnée par le photomètre avec une différence inférieure à  $10^{-4}$  (Chazette 2003).

Cette méthode nécessite donc une synergie instrumentale qui peut être mise en place à l’occasion de campagnes de mesures.

## 2.5 Lidar Raman vibrationnel

Si le lidar Rayleigh-Mie est le premier type de lidar pour l’observation de l’atmosphère, les techniques utilisant la diffusion Raman comme support de mesure ont rapidement suivi (Leonard, 1967 ; Cooney, 1968 ; Melfi et al., 1969). Un résumé substantiel de la technique Raman pour la télédétection lidar est présenté dans l’ouvrage Weitkamp (2005) et plus particulièrement par Wandinger (2006).

### 2.5.1 Principe de mesure

La diffusion Raman est un processus diffusif dans lequel il y a échange d’énergie entre l’onde incidente et le diffuseur (Raman et Krishnan 1928). Le photon diffusé n’a pas la même énergie que le photon incident, on parle alors de diffusion inélastique. Pour notre propos, le diffuseur est une molécule atmosphérique ( $N_2$ ,  $O_2$ ,  $H_2O$ ,  $CH_4$ ,  $CO_2$ , ...). Dans le cas de la diffusion Raman vibrationnelle, c’est l’état de vibration de la molécule qui va évoluer au cours de l’interaction rayonnement-matière.

Dans le formalisme associé à la spectroscopie quantique, les niveaux d’énergie associés aux différents états de vibration d’une molécule diatomique homonucléaire (typiquement  $N_2$ ,  $O_2$ ,  $H_2$ ) sont assez bien approximés par la formule suivante (Long 2002) :

$$E_{vib}(v) = hc_0\tilde{\nu}_{vib}\left(v + \frac{1}{2}\right) \quad (49)$$

Avec  $v$  le nombre quantique de vibration qui peut prendre des valeurs entières (0, 1, 2, ...),  $h$  la constante de Planck ( $h = 6,62607015 \cdot 10^{-34}$  J.s),  $c_0$  la vitesse de la lumière dans le vide ( $c_0 = 299792458$  m.s<sup>-1</sup>) et  $\tilde{\nu}_{vib}$  la fréquence propre de la molécule considérée ( $\tilde{\nu}_{vib}$  vaut 2330,7 cm<sup>-1</sup> pour la molécule de  $N_2$  et 3651,7 cm<sup>-1</sup> pour la molécule de  $H_2O$ ).

Lors de l’incidence d’un photon, la molécule peut absorber un quantum d’énergie correspondant à l’énergie nécessaire pour accéder à un niveau excité (par exemple pour une transition  $E_{vib,v=0} \xrightarrow{\Delta v=+1} E_{vib,v=1}$ ). Le photon diffusé se retrouve alors moins énergétique, sa longueur d’onde est donc augmentée (on parle de « redshift »). Dans le cas contraire, la molécule excitée retourne sur un niveau énergétiquement plus faible (en général le niveau fondamental) et transmet de l’énergie au photon diffusé qui gagne en fréquence et perd en longueur d’onde (« blueshift »). Pour les molécules de  $N_2$  et  $H_2O$  qui sont l’objet de cette section, les systèmes lidars se basent sur la transition du niveau fondamental de vibration  $v = 0$ , vers le niveau

$\nu = 1$ . Cela donne une longueur d'onde après diffusion de 386,6 nm pour le diazote et 407,5 nm pour la vapeur d'eau avec un photon incident à 354,7 nm. Sur la Figure 18 les différents spectres de diffusion associés aux mécanismes élastiques et inélastiques sont représentés avec des intensités en échelle logarithmique en fonction de la longueur d'onde et pour une onde incidente à 355 nm.

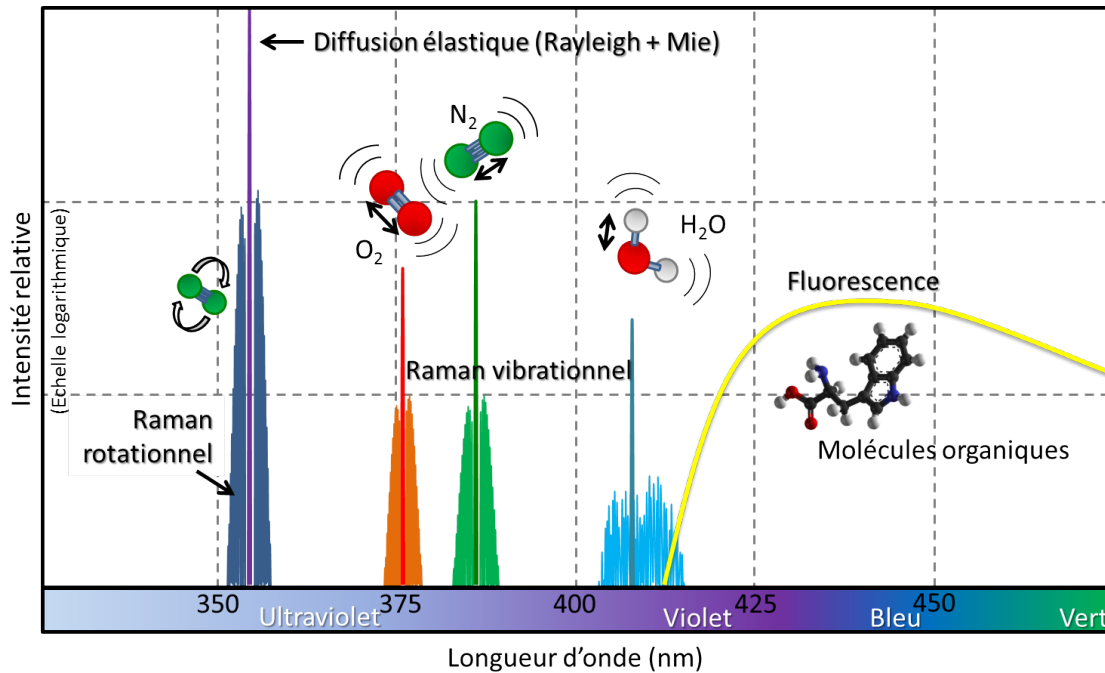


Figure 18 : Intensité relative (échelle logarithmique) des spectres de diffusion Rayleigh, Mie, Raman vibrationnelle et Raman rotationnelle pour les molécules de  $N_2$ ,  $O_2$  et  $H_2O$  avec une onde lumineuse incidente à 355 nm. Le pic d'intensité prépondérante en violet, à 355 nm, représente les diffusions élastiques Rayleigh (pour les molécules) et Mie (pour les particules). Ce pic est appelé raie de Cabannes (Cabannes 1944). L'enveloppe de pics bleus autour de cette raie principale est le spectre rotationnel des molécules de  $N_2$  et  $O_2$  dans leur état fondamental de vibration ( $\nu=0$ ). Les raies rouge verte et bleue et leurs enveloppes associées sont les pics de diffusion Raman vibrationnelle ( $\nu=1$ ) et les spectres ro-vibrationnels associés, respectivement pour les molécules de  $O_2$ ,  $N_2$  et  $H_2O$ . (Illustration réalisée par J. Totems)

En termes d'ordre de grandeur les sections efficaces Raman sont plusieurs ordres de grandeurs inférieurs à la section efficace de rétrodiffusion élastique. C'est respectivement  $\sim 1500$  fois inférieur pour  $N_2$  et  $\sim 550$  fois pour  $H_2O$ . Il faut également prendre en compte que pour des mesures de jour, le niveau de bruit engendré par la luminance du ciel est plus grand aux longueurs d'ondes Raman qu'à 355 nm.

### 2.5.2 Equation lidar Raman vibrationnel

L'équation lidar corrigée pour un lidar Raman vibrationnel s'écrit un peu différemment que celle du lidar Rayleigh-Mie. En effet, d'une part seul le coefficient de rétrodiffusion Raman des molécules est à prendre en compte dans le  $\beta_i$ , d'autre part, la longueur d'onde du trajet « aller » jusqu'au diffuseur est différente

de celle du trajet « retour ». Ceci implique d'avoir recours au coefficient d'Angström. On définit alors les coefficients  $\eta_{N_2}$  et  $\eta_{H_2O}$  pour les diffusions Raman sur le diazote et la vapeur d'eau par :

$$\eta_{N_2} = \left(\frac{\lambda_{N_2}}{\lambda_l}\right)^{-\dot{a}} \text{ et } \eta_{H_2O} = \left(\frac{\lambda_{H_2O}}{\lambda_l}\right)^{-\dot{a}} \quad (50)$$

Avec  $\lambda_l$  la longueur d'onde émise par le laser ( $\lambda_l = 354,7 \text{ nm}$ ),  $\lambda_{N_2}$  celle rétrodiffusée après diffusion Raman avec une molécule de diazote ( $\lambda_{N_2} = 386,6 \text{ nm}$ ) et  $\lambda_{H_2O}$  avec une molécule de vapeur d'eau ( $\lambda_{H_2O} = 407,5 \text{ nm}$ ).

L'équation lidar corrigée (S<sub>2</sub>) pour un lidar utilisant la diffusion Raman d'une molécule  $i$  s'écrit donc :

$$S_2(\lambda_i, z(t)) = K_s(\lambda_i) \cdot F(z(t)) \cdot \beta_i(\lambda_i, z(t)) \cdot \exp \left\{ -\frac{1}{\cos(\theta)} \cdot \int_{z_0}^z [\alpha_m(\lambda_i, z') + \alpha_m(\lambda_l, z') + \alpha_a(\lambda_l, z') \cdot (1 + \eta_i)] dz' \right\} \quad (51)$$

Dans cette équation, le coefficient de rétrodiffusion  $\beta_i$  est directement proportionnel au profil vertical de concentration de la molécule  $i$  ( $N_i$ ) par :

$$\beta_i(\lambda_l, z(t)) = N_i(z) \cdot \left( \frac{\partial \sigma_{Raman,i}(\lambda_l, \theta)}{\partial \Omega_{diff}} \right)_{\theta=\pi} \quad (52)$$

Avec  $\left( \frac{\partial \sigma_{Raman,i}(\lambda_l, \theta)}{\partial \Omega_{diff}} \right)_{\theta=\pi}$  la section efficace différentielle de rétrodiffusion Raman caractéristique de chaque molécule pour la longueur d'onde incidente ( $\lambda_l$ ).

Cette section efficace peut être calculée pour une longueur d'onde incidente et une largeur de filtre interférentiel donnée pour la réception. Pour la molécule de N<sub>2</sub>, elle est de  $2,16 \cdot 10^{-30} \text{ cm}^2 \cdot \text{sr}^{-1}$  avec un filtre interférentiel de 0,2 nm de large et de  $2,22 \cdot 10^{-30} \text{ cm}^2 \cdot \text{sr}^{-1}$  avec un filtre de 0,3 nm de large. Pour la molécule de H<sub>2</sub>O, elle varie peu avec la température atmosphérique (7 % entre 200 K et 300 K, Royer 2011) et est de  $\sim 5,62\text{-}6,09 \cdot 10^{-30} \text{ cm}^2 \cdot \text{sr}^{-1}$  avec un filtre interférentiel de 0,3 nm de large centré sur 407,45 nm. Plus la largeur du filtre est grande, plus la section efficace de diffusion Raman est grande, en effet, plus de raies du spectre ro-vibrationnel (enveloppes de la Figure 18) participent à la section efficace de rétrodiffusion. En revanche, un filtre large est synonyme d'une plus grande exposition à la luminance du fond de ciel, un compromis est donc à trouver pour optimiser le SNR et la portée du système, en particulier pour la mesure de la vapeur d'eau.

Le profil vertical de concentration en vapeur d'eau est l'inconnue qui est recherchée dans l'utilisation couplée des canaux Raman H<sub>2</sub>O et N<sub>2</sub>. Pour le canal N<sub>2</sub>, qui sert de référence, son profil de densité atmosphérique est donné par :

$$N_{N_2}(z) = r_{N_2} \cdot \frac{M_{air}}{M_{N_2}} \cdot N_{air}(z) \quad (53)$$

Avec  $N_{air}$  le profil de densité atmosphérique,  $M_{air} \sim 28,9 \text{ g.mol}^{-1}$  et  $M_{N_2} \sim 28,0 \text{ g.mol}^{-1}$  les masses molaires de l'air et du diazote et  $r_{N_2} \sim 78,1 \%$  le rapport de mélange en masse de  $N_2$ .

### 2.5.3 Apport de la mesure lidar Raman $N_2$

Dans l'équation du lidar Raman- $N_2$ , si l'on considère un exposant d'Angström constant dans la colonne atmosphérique, la seule inconnue restante est l'extinction des aérosols. L'hypothèse d'un Angström constant à 1 (au lieu de 1,5 pour de la pollution de basse couche et 0 pour des particules désertiques transportées en altitude, par exemple) induit une erreur inférieure à 5 % sur le calcul de l'épaisseur optique des aérosols dérivée de la mesure Raman- $N_2$  (Royer et al. 2011).

En normalisant le signal Raman- $N_2$  à l'altitude  $z$  avec le signal pris pour une altitude de référence  $z_{ref}$ , on obtient l'épaisseur optique cumulée entre ces deux altitudes telle que :

$$\tau_{a,N_2}(\lambda_l, z_{ref}, z) = \frac{1}{(1 + \eta_{N_2})} \cdot \left\{ \ln \left[ \frac{S_2(\lambda_{N_2}, z_{ref})}{S_2(\lambda_{N_2}, z)} \cdot \frac{\beta_{N_2}(z)}{\beta_{N_2}(z_{ref})} \right] - \tau_m(\lambda_l, z_{ref}, z) - \tau_m(\lambda_{N_2}, z_{ref}, z) \right\} \quad (54)$$

Cette épaisseur optique dite « Raman » peut être utilisée comme contrainte pour l'inversion de l'équation lidar Rayleigh-Mie. En repartant de l'équation du coefficient de rétrodiffusion apparent (Eq. 43) et en réinjectant l'épaisseur optique Raman pour la même altitude de référence on peut obtenir directement le coefficient de rétrodiffusion des aérosols :

$$\beta_{app}(\lambda_l, z) = (\beta_a(\lambda_l, z) + \beta_m(\lambda_l, z)) \cdot \exp \left( -2 \cdot \underbrace{\int_{z_{ref}}^z \alpha_a(\lambda_l, z') dz'}_{\tau_{a,N_2}(\lambda_l, z_{ref}, z)} \right) \quad (55)$$

Puis :

$$\beta_a(\lambda_l, z) = \beta_{app}(\lambda_l, z) \cdot \exp \left( 2 \cdot \tau_{a,N_2}(\lambda_l, z_{ref}, z) \right) - \beta_m(\lambda_l, z) \quad (56)$$

Pour obtenir le profil d'extinction des aérosols, il est possible de dériver l'équation (54) par rapport à  $z$ . Cette technique est toutefois sujette à l'amplification du bruit du signal lidar. Pour limiter ces effets et obtenir un profil de  $\alpha_a(\lambda_l, z)$  peu bruité, il est possible de mettre en place des techniques de régularisation comme celle de Tikhonov (Royer et al. 2011). Il est également possible de se servir de cette contrainte de l'épaisseur optique Raman pour la méthode itérative d'inversion de Klett.



Des méthodes plus avancées comme celle développée dans le travail de Shang et al. (2018) permettent de s'affranchir du besoin d'une zone de référence Rayleigh et d'obtenir à la fois les profils d'extinction, de rétrodiffusion et de lidar ratio.

L'ajout d'une voie d'acquisition utilisant de la diffusion Raman-N<sub>2</sub> pour un lidar déjà équipé d'une voie d'acquisition élastique permet de pouvoir s'affranchir de l'utilisation d'un instrument externe pour contraindre l'équation lidar. Une voie Raman-N<sub>2</sub> sert aussi de référence pour la mesure du rapport de mélange de la vapeur d'eau.

### 2.5.4 Lidar Raman H<sub>2</sub>O

La mesure de vapeur d'eau par la technique lidar Raman a été pensée très tôt après l'avènement des systèmes lidars utilisant les lasers à rubis (Melfi et al., 1969 ; Cooney, 1970). Le principe de mesure utilise la diffusion Raman des molécules d'eau (Raman-H<sub>2</sub>O) dont on cherche à mesurer le profil de concentration. La mesure Raman-N<sub>2</sub> est utilisé pour calculer la transmission atmosphérique et lever une inconnue dans l'équation associée au canal H<sub>2</sub>O. On peut alors remonter à la concentration de vapeur d'eau atmosphérique. Le rapport de mélange de vapeur d'eau  $r_{H_2O}$  est défini comme le ratio de la masse de vapeur d'eau ( $m_{ve}$ ) contenue dans un volume d'air sur la masse totale de l'air sec de ce même volume ( $m_{air}$ ). Il peut également s'exprimer en fonction de l'altitude par rapport au profil de masse du diazote. Il est dans ce cas calculé à partir du rapport de mélange de N<sub>2</sub> ( $r_{N_2} \sim 0,781$ ) dans l'air, des masses molaires de N<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>O ( $M_{N_2} \sim 28$  g.mol<sup>-1</sup> et  $M_{H_2O} \sim 18$  g.mol<sup>-1</sup>) et des profils de concentration  $N_{N_2}(z)$  et  $N_{H_2O}(z)$ . On a ainsi :

$$r_{H_2O}(z) = \frac{m_{H_2O}(z)}{m_{air}(z)} = r_{N_2} \cdot \frac{M_{H_2O}}{M_{N_2}} \cdot \frac{N_{H_2O}(z)}{N_{N_2}(z)} \quad (57)$$

Ce profil de rapport de mélange peut être entièrement déterminé en utilisant le système d'équations lidar Raman pour N<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>O :

$$\left\{ \begin{array}{l} S_2(\lambda_{N_2}, z) = K_s(\lambda_{N_2}) \cdot F_{N_2}(z) \cdot N_{N_2}(z) \cdot \left( \frac{\partial \sigma_{Raman, N_2}(\lambda_l, \theta)}{\partial \Omega_{diff}} \right)_{\theta=\pi} \\ \quad \cdot \exp\{-(1 + \eta_{N_2}) \cdot \tau_a(\lambda_l, z_0, z) - \tau_m(\lambda_{N_2}, z_0, z) - \tau_m(\lambda_l, z_0, z)\} \\ \\ S_2(\lambda_{H_2O}, z) = K_s(\lambda_{H_2O}) \cdot F_{H_2O}(z) \cdot N_{H_2O}(z) \cdot \left( \frac{\partial \sigma_{Raman, H_2O}(\lambda_l, \theta)}{\partial \Omega_{diff}} \right)_{\theta=\pi} \\ \quad \cdot \exp\{-(1 + \eta_{H_2O}) \cdot \tau_a(\lambda_l, z_0, z) - \tau_m(\lambda_{H_2O}, z_0, z) - \tau_m(\lambda_l, z_0, z)\} \end{array} \right. \quad (58)$$

En faisant le ratio de ces deux équations et en isolant le rapport des concentrations  $\frac{N_{H_2O}(z)}{N_{N_2}(z)}$  on obtient directement le rapport de mélange  $r_{H_2O}$  :

$$r_{H_2O}(z) = r_{N_2} \cdot \frac{M_{H_2O}}{M_{N_2}} \cdot \frac{S_2(\lambda_{H_2O}, z)}{S_2(\lambda_{N_2}, z)} \cdot \frac{\overbrace{K_S(\lambda_{N_2})}^{R_K}}{K_S(\lambda_{H_2O})} \cdot \frac{\xi(z)}{F_{H_2O}(z)} \cdot \frac{\left( \frac{\partial \sigma_{Raman, N_2}(\lambda_l, \theta)}{\partial \Omega_{diff}} \right)_{\theta=\pi}}{\left( \frac{\partial \sigma_{Raman, H_2O}(\lambda_l, \theta)}{\partial \Omega_{diff}} \right)_{\theta=\pi}} \quad (59)$$

$$\cdot \exp \left\{ \left( \eta_{H_2O} - \eta_{N_2} \right) \cdot \frac{\tau_a(\lambda_l, z_0, z)}{\tau_{a, N_2} \text{ Eq.54}} - \tau_m(\lambda_{N_2}, z_0, z) + \tau_m(\lambda_{H_2O}, z_0, z) \right\}$$

Dans cette équation intervient l'épaisseur optique des aérosols fournie par l'inversion directe du canal Raman-N<sub>2</sub> (Eq. 54). Il est possible de s'affranchir du rapport des constantes instrumentales  $R_K$  en normalisant le signal dans une zone de référence où il est possible de mesurer  $r_{H_2O}$ . En pratique, ce rapport des constantes systèmes est lié au rapport des gains des voies d'acquisition du lidar. Il est calibré en utilisant une mesure de rapport de mélange *in situ* co-localisée avec le lidar (radiosondage, drone avec sonde, ULM avec sonde) et peut être considéré stable si le système est opéré dans un endroit climatisé.

$\xi(z)$ , le ratio des fonctions de recouvrement qui tend vers 1 à quelques centaines de mètres du lidar, est critique pour la détermination du rapport de mélange de vapeur d'eau dans les premières couches de l'atmosphère et peut induire des biais sur la mesure. Pour pouvoir obtenir de l'information au plus proche du système il faudra donc caractériser précisément les facteurs géométriques des deux voies Raman-N<sub>2</sub> et Raman-H<sub>2</sub>O. L'implémentation d'un télescope commun à toutes les voies Raman sur le système WALI permet d'obtenir des facteurs de recouvrement très similaires d'une voie à l'autre et ainsi de diminuer le risque de biais lié à ce facteur  $\xi(z)$ .

Cette technique offre la possibilité de mesurer le contenu absolu d'eau sous forme gazeuse dans l'atmosphère. Pour connaître l'humidité relative dans l'air, il est nécessaire de mesurer également la température thermodynamique de l'atmosphère ( $T$ ). Pour cela, les systèmes lidars Raman peuvent s'appuyer sur la spectroscopie Raman rotationnelle des molécules majoritaires de l'atmosphère (Cf. Chapitre 3).

## 2.6 Conclusion

Dans le domaine de la physique atmosphérique, il existe une variété de systèmes lidars qui s'appuient sur différentes interactions laser-matière pour permettre la mesure de paramètres géophysiques variés comme le vent, la température, le rapport de mélange de vapeur d'eau et les propriétés optiques des aérosols. Ces systèmes utilisent des sources d'émissions et des géométries d'architectures adaptées au mieux à chaque contrainte d'application et aux environnements d'utilisation. Au LSCE, après des développements de lidar purement Rayleigh-Mie, la technique Raman a été implémentée dans plusieurs systèmes comme le

LAASURS (lidar Raman-N<sub>2</sub>) utilisé principalement dans des études de physique de l'aérosol atmosphérique. Le plus abouti du parc instrumental de l'équipe lidar du LSCE est le système WALI : un lidar qui combine les mesures des aérosols avec les voies élastiques à polarisation croisée et la voie Raman-N<sub>2</sub>, la mesure du rapport de mélange de vapeur d'eau avec l'utilisation des deux voies Raman vibrationnelles (Raman-N<sub>2</sub> et Raman-H<sub>2</sub>O) et la mesure de la température thermodynamique de l'atmosphère avec les voies Raman rotationnelles RR<sub>1</sub> et RR<sub>2</sub>. Pour analyser les signaux enregistrés par de tels systèmes, il est nécessaire d'appréhender correctement la théorie du signal lidar, et ce, de manière générale en considérant les erreurs inhérentes à tous les types de mesures lidar accessibles. Les techniques instrumentales utilisées par le WALI sont plus approfondies. En premier lieu, les méthodes Rayleigh-Mie qui donnent accès à la structuration atmosphérique et avec l'aide de l'épaisseur optique de l'atmosphère aux paramètres optiques des couches diffusantes. Les techniques Raman vibrationnelles permettent quant à elles, via l'utilisation de la rétrodiffusion Raman-N<sub>2</sub> comme étalon, l'obtention de l'épaisseur optique nécessaire à l'inversion de l'équation lidar Rayleigh-Mie. L'association des deux voies Raman-N<sub>2</sub> et Raman-H<sub>2</sub>O permet aussi d'accéder la mesure du rapport de mélange de vapeur d'eau.

Pour aller plus loin et avoir la capacité de mesurer la température et l'humidité relative en continu et de manière résolue dans le milieu atmosphérique, la méthode Raman rotationnelle a été implémentée sur le WALI en 2017. Cette technique s'appuie sur la diffusion Raman rotationnelle des molécules prépondérantes de l'atmosphère (N<sub>2</sub> et O<sub>2</sub>) pour extraire la température thermodynamique du milieu sondé. Le chapitre 3 s'attache à présenter cette technique, ses atouts et son formalisme. Une modélisation directe – inverse est effectuée afin de quantifier précisément les erreurs associées à la mesure de température par le lidar WALI, à en connaître les sources et réduire leurs conséquences.

# Chapitre 3 : Mesure de température par lidar

## Raman rotationnel - bilan de liaison

<b>3.1</b>	<b>INTRODUCTION</b> .....	<b>66</b>
<b>3.1</b>	<b>LIDAR RAMAN ROTATIONNEL</b> .....	<b>67</b>
3.1.1	PRINCIPE DE MESURE .....	67
3.1.2	EQUATION DU LIDAR RAMAN ROTATIONNEL PUR.....	71
3.1.3	ANALYSE DU SIGNAL.....	72
3.1.4	ÉTALONNAGE .....	73
<b>3.2</b>	<b>CARACTERISTIQUES DES VOIES RAMAN ROTATIONNELLES DU WALI</b> .....	<b>76</b>
3.2.1	AGENCEMENT DES VOIES RAMAN ROTATIONNELLES .....	76
3.2.2	CARACTERISTIQUES DES FILTRES INTERFERENTIELS.....	77
3.2.3	CHOIX DU POSITIONNEMENT DES FILTRES .....	78
3.2.4	SENSIBILITE AU CHAMP DE VUE .....	80
<b>3.3</b>	<b>BILAN DE LIAISON DU WALI</b> .....	<b>82</b>
3.3.1	MODELE DIRECT – INVERSE .....	82
3.3.1.1	<i>Modèle direct</i> .....	82
3.3.1.2	<i>Modèle inverse</i> .....	84
3.3.2	ESTIMATION DES BIAIS.....	85
3.3.2.1	<i>Cohérence du modèle inverse et fuites élastiques</i> .....	85
3.3.2.2	<i>Impact d'un profil étalon biaisé</i> .....	86
3.3.2.3	<i>Impact du facteur géométrique</i> .....	88
3.3.3	ERREUR ALEATOIRE .....	89
3.3.3.1	<i>Ajustement sur des profils réels</i> .....	90
3.3.3.2	<i>Rapport signal à bruit</i> .....	92
3.3.3.3	<i>Erreur sur la température en fonction de l'altitude</i> .....	93
3.3.3.4	<i>Impact de la plage d'étalonnage</i> .....	96

---

<b>3.4 CONCLUSION .....</b>	<b>101</b>
-----------------------------	------------

### **3.1 Introduction**

Variable d'état de l'atmosphère intervenant dans de nombreux processus physiques et chimiques, la température est un paramètre clef notamment en météorologie, sciences climatiques et chimie atmosphérique. La restitution des profils verticaux de la température thermodynamique de l'atmosphère nécessite des résolutions spatiotemporelles en accord avec celle des modélisations utilisées et permettant d'échantillonner les processus étudiés. Par exemple, un profil moyen mensuel de la température avec une résolution verticale de quelques centaines de mètres suffit pour extraire les grandes tendances climatiques. A l'opposé, les phénomènes frontaux et les phénomènes convectifs nécessitent un échantillonnage de l'atmosphère plus fin temporellement (de la dizaine de minutes à l'heure) et bien résolu selon la verticale, typiquement avec une mesure tous les ~100 m. Dans la couche limite atmosphérique (CLA), des mesures à haute fréquence (de la minute à la seconde) et haute résolution verticale (inférieur à la centaine de mètre) sont essentielles pour étudier les processus dynamiques en lien avec la turbulence et les processus convectifs. Les profils verticaux de la température atmosphérique ont été historiquement effectués par sondages depuis le 19<sup>ème</sup> siècle, puis par radiosondages depuis 1929. Ils permettent d'échantillonner les masses d'air traversées pendant l'ascension d'un ballon porteur des instruments de mesures. Cette technique est toujours utilisée aujourd'hui pour mesurer la température mais également la pression, l'humidité et le vent. Disséminées partout sur les continents, bien que de manière assez inhomogène, les stations de radiosondages opèrent en général deux lâchés de ballon par jour à 12h UTC et 00h UTC selon les recommandations de l'Organisation Mondiale de la Météorologie (OMM). Très bien résolues jusqu'au-delà de la tropopause, ces mesures ne permettent pas un échantillonnage temporel élevé et une couverture globale (moins de lancements dans l'hémisphère Sud et très peu dans les zones océaniques).

Depuis la seconde moitié du 20<sup>ème</sup> siècle et la conquête de l'espace, la météorologie tire parti de capteurs spatiaux qui permettent une couverture globale assez homogène de la Terre et mesurent une grande quantité de paramètres dont les variables thermodynamiques classiques que sont la température et le rapport de mélange de vapeur d'eau (par exemple, Chazette et al., 1998). Ces mesures à l'échelle globale viennent significativement compléter les mesures historiques par radiosondage et sont directement assimilées, via les luminances spectrales, dans les modèles de prévision du temps. Dérivés de la télédétection passive, les profils

mesurés depuis l'espace souffrent d'une résolution verticale faible (de l'ordre de 1 km, Chedin et al., 1986; Maddy et Barnet, 2008; Schlüssel et al., 2005), et ne donnent pas accès aux basses couches de l'atmosphère car limités par les fonctions de poids des canaux utilisés. C'est pourtant dans cette partie de l'atmosphère que surviennent des phénomènes complexes de convection déterminant pour la prévision météorologique. Il existe donc un manque de mesures à hautes résolutions temporelle et verticale en particulier dans les trois premiers kilomètres de la troposphère. Le lidar est un excellent candidat pour combler cette brèche. Les capacités offertes par l'utilisation de cet instrument viennent en complément des mesures existantes. Pour la température, plusieurs techniques lidars existent. Pour la haute altitude, la technique d'intégration sur le signal de rétrodiffusion élastique est utilisée, lorsque la propagation n'est affectée que par la diffusion moléculaire (Alain Hauchecorne et Chanin 1980). Cette technique est en revanche inadaptée en présence d'aérosols et ne peut donc pas être employée dans la basse/moyenne troposphère. La méthode privilégiée pour la mesure de température par lidar dans la troposphère repose sur la diffusion Raman rotationnelle (RR) des molécules atmosphériques les plus abondantes. Le lidar RR, proposé pour la première fois par Cooney (1972), utilise la dépendance en température des spectres RR du diazote ( $N_2$ ) et du dioxygène ( $O_2$ ). Ce chapitre a pour objet de présenter cette technique qui a été implémentée sur le lidar WALI (Weather and Aerosol Lidar) en 2017, qui est le tout premier lidar de ce type en France. Les bases physiques utilisées par cette technique sont présentées dans un premier temps. La manière d'étalonner le signal lidar pour obtenir un profil de température est ensuite détaillée. Le simulateur instrumental représentatif du lidar WALI est exposé et permet d'étudier finement les différentes sources d'erreurs sur la mesure de la température atmosphérique. Le positionnement des filtres interférentiels sur le spectre RR, les fuites de signal élastique dans ces filtres, l'impact du facteur géométrique, la plage de température utilisée pour l'étalonnage et le bruit de mesure sont les sources d'incertitudes principales étudiées dans cette partie.

## 3.1 Lidar Raman rotationnel

### 3.1.1 Principe de mesure

L'intensité des raies du spectre Raman rotationnel d'une espèce moléculaire donnée varie en fonction de la température d'équilibre du milieu, qui modifie la distribution des molécules sur les états excités correspondant aux modes de rotation (Figure 19 et 2). Pilotées par la loi de Maxwell-Boltzmann qui régit le peuplement des niveaux excités en fonction de l'agitation thermique, les variations de l'enveloppe affectant les raies en fonction de la température ne sont pas égales suivant l'éloignement spectral de la raie

rotationnelle par rapport à la raie de Cabannes (longueur d'onde incidente). La dissymétrie de cette variation d'intensité des raies se répercute évidemment sur la section efficace de rétrodiffusion Raman ; elle est mise en évidence dans la Figure 19. En s'appuyant sur la sensibilité du spectre RR avec la température et en sélectionnant judicieusement deux filtres interférentiels de largeur spectrale étroite ( $RR_1$  et  $RR_2$ , en gras sur la Figure 19) centrés respectivement sur des niveaux faiblement et fortement excités, on peut alors déduire la température. Tous les phénomènes de propagation étant sensiblement identiques pour ces deux longueurs d'ondes proches, le ratio des signaux mesurés par les voies de détection rotationnelles du lidar est directement une fonction biunivoque de la température thermodynamique de l'air.

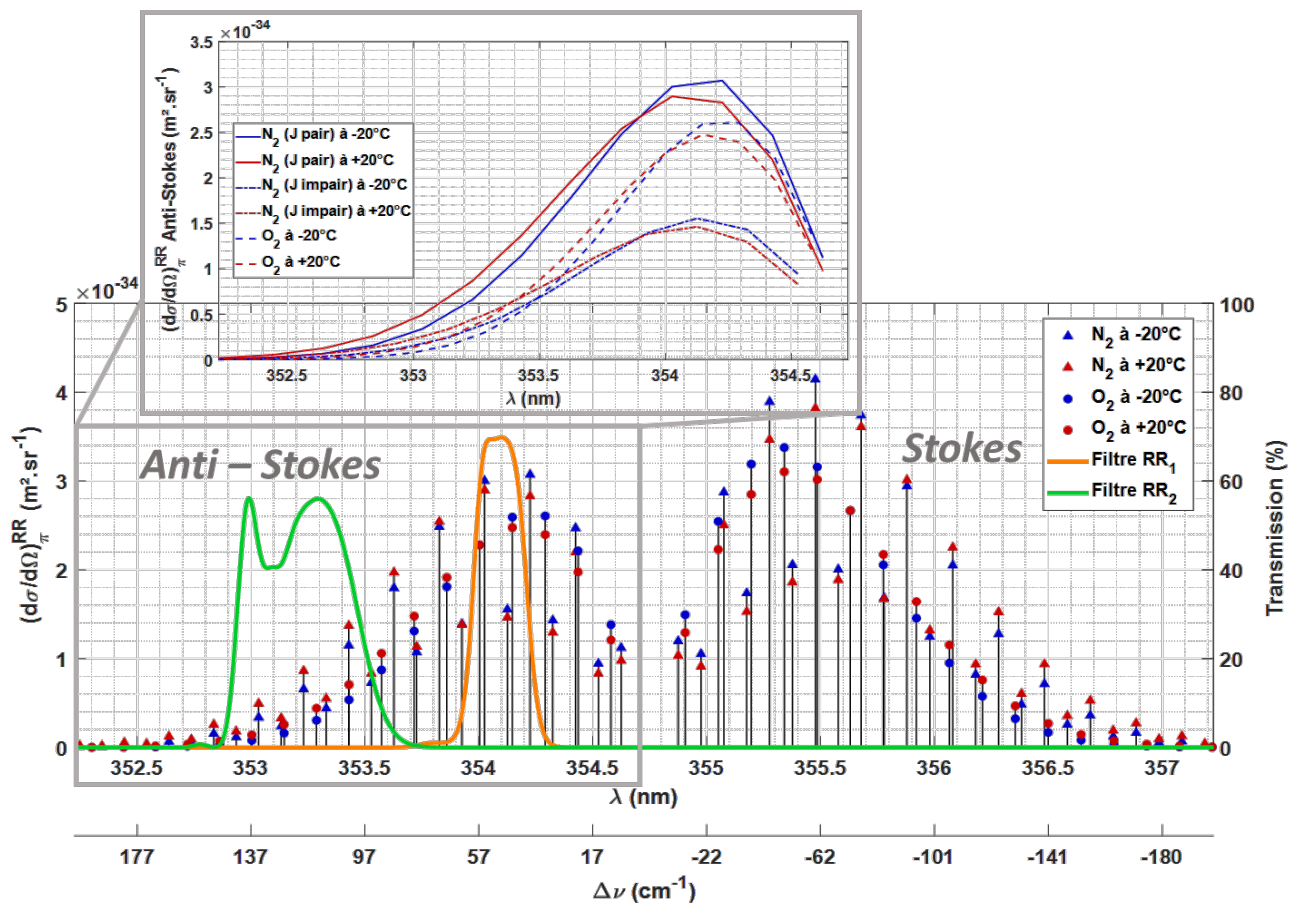


Figure 19 : Spectre Raman rotationnel de  $N_2$  et  $O_2$  avec les intensités des raies pour deux températures distinctes ( $-20^\circ\text{C}$  et  $+20^\circ\text{C}$ ). Les filtres  $RR_1$  (basse valeur de  $J$ ) et  $RR_2$  (haute valeur de  $J$ ) sont ceux utilisés sur le lidar WALLI. Ils ont été mesurés à l'aide d'un spectroscopie avec une résolution spectrale de  $0,25\text{ cm}^{-1}$ . Un coefficient ( $r_{O_2}/r_{N_2} = 0,27$ ) est appliqué sur les sections efficaces de rétrodiffusion de  $O_2$  (intensités des raies) pour rendre compte du mélange atmosphérique. En agrandissant la partie anti-Stokes du spectre (figure du haut), on met bien en évidence la dissymétrie du spectre en fonction de la température : pour de hautes valeurs de  $J$  (à gauche), l'intensité va croissante avec la température, pour de petites valeurs de  $J$  (à droite), l'intensité des raies va décroissante avec la température.

Pour comprendre quantitativement ces phénomènes (d'après Behrendt, 2005) il est nécessaire de se placer dans le formalisme de la théorie quantique de polarisabilité de Placzek (Long 2002). Pour l'application à la mesure lidar, l'air est ici considéré comme un mélange homogène de molécules de  $N_2$  et  $O_2$  avec un rapport de mélange constant (respectivement 0,7808 et 0,2095). Ces molécules diatomiques homonucléaires sont traitées comme des molécules linéaires. Dans ce cadre, il est possible de décrire les niveaux d'énergie rotationnels d'une molécule  $i$  en fonction du nombre quantique de rotation  $J$  et pour un niveau de vibration  $v$  donné par la relation :

$$E_{rot,v,i}(J) = hc_0 \cdot [B_{v,i} \cdot J(J+1) - D_{v,i} \cdot J^2(J+1)^2] \quad (60)$$

$B_{v,i}$  et  $D_{v,i}$  sont les constantes de rotation et de distorsion centrifuge de la molécule  $i$  pour le niveau de vibration  $v$ . Les transitions entre niveaux d'énergie peuvent s'effectuer en respectant les règles de sélection qui sont pour les transitions Raman :

$$\Delta v = 0, \pm 1 ; \Delta v = v_f - v_i \quad (61)$$

$$\Delta J = 0, \pm 2 ; \Delta J = J_h - J_b \quad (62)$$

avec  $v_i$  et  $v_f$  les nombres quantiques de vibration des niveaux initiaux et finaux de la transition et  $J_h$  et  $J_b$  les nombres quantiques de rotation des niveaux les plus hauts ( $h$ ) et bas ( $b$ ) en énergie.

Dans la suite, seul le niveau de vibration fondamental ( $v = 0$ ) est considéré. On parle alors de diffusion Raman rotationnelle pure. La Figure 20 représente le diagramme d'énergie des niveaux Raman rotationnels purs ( $v = 0$  et  $J$  de 0 à 7). Seules les transitions mises en évidence par les flèches sont permises.

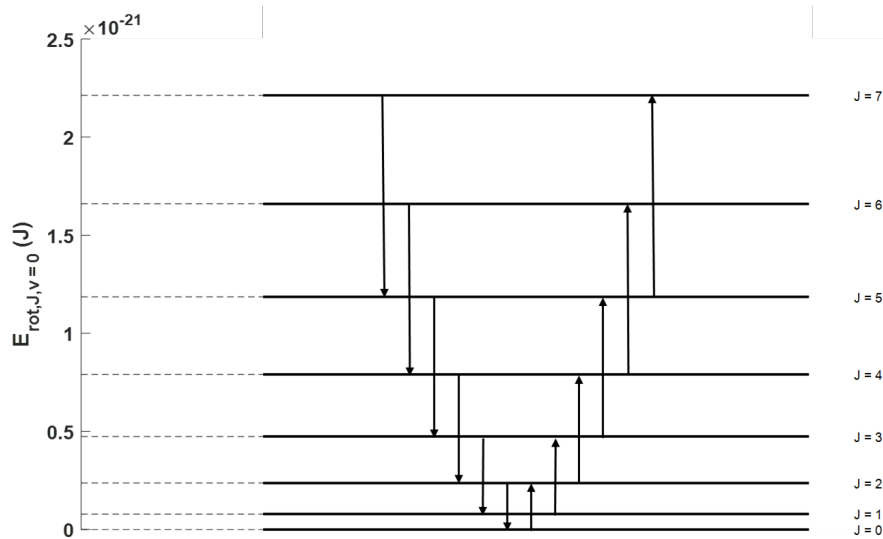


Figure 20 : Diagramme des niveaux d'énergie Raman rotationnels purs pour la molécule de  $N_2$ . 8 niveaux sont représentés depuis le niveau fondamental ( $J = 0$  à  $J = 7$ ). Les flèches indiquent les transitions permises entre les niveaux d'énergie.



Le spectre Raman rotationnel pur n'est pas symétrique par rapport à la raie de Cabannes. La branche Stokes du spectre est caractérisée par des longueurs d'ondes plus grandes que celle du photon incident (énergie prise au photon par la molécule). Sur le plan des fréquences, exprimées en nombre d'onde ( $\text{cm}^{-1}$ ), le décalage des raies Raman Stokes est donné par (Behrendt 2005) :

$$\Delta v_{St,i}(J) = -B_{0,i} \cdot 2 \cdot (2J + 3) + D_{0,i} \cdot [3 \cdot (2J + 3) + (2J + 3)^3]; J = 0, 1, 2, \dots \quad (63)$$

A l'opposé, pour la branche Anti-Stokes (énergie cédée au photon par la molécule), on obtient :

$$\Delta v_{Ast,i}(J) = -B_{0,i} \cdot 2 \cdot (2J - 1) - D_{0,i} \cdot [3 \cdot (2J - 1) + (2J - 1)^3]; J = 2, 3, 4, \dots \quad (64)$$

Ces expressions sont indépendantes de la fréquence d'excitation  $\nu_0$ . Pour calculer les intensités de chacune des raies du spectre RR, il est nécessaire d'avoir recours à la distribution de population de Maxwell-Boltzmann des niveaux RR jusque dans les hautes valeurs de  $J$ , au niveau vibrationnel fondamental ( $\nu = 0$ ). Les sections efficaces résultantes peuvent être exprimées pour le cas particulier de la rétrodiffusion (Andreas Behrendt 2005) :

$$\left( \frac{\partial \sigma_{RR,i}(\nu_0, \theta, T)}{\partial \Omega_{diff}} \right)_{\theta=\pi} = \frac{112\pi^4}{15} \cdot \frac{g_i(J) h c_0 B_{0,i} (\nu_0 + \Delta v_i(J))^4 \gamma_i^2}{(2I_i + 1)^2 \cdot k_B T} \cdot X(J) \cdot \exp\left(-\frac{E_{rot,0,i}(J)}{k_B T}\right) \quad (65)$$

avec pour la branche Stokes :

$$X(J) = \frac{(J+1)(J+2)}{2J+3} \text{ pour } J = 0, 1, 2, \dots \quad (66)$$

et pour la branche anti-Stokes :

$$X(J) = \frac{J(J-1)}{2J-1} \text{ pour } J = 2, 3, 4, \dots \quad (67)$$

Plusieurs paramètres sont impliqués dans ce calcul :  $g_i$  représente le poids statistique lié au spin nucléaire  $I_i$  des atomes de la molécule considérée.  $h$  et  $k_B$  sont respectivement les constantes de Planck et de Boltzmann ;  $c_0$  est la vitesse de la lumière dans le vide.  $\nu_0$  est le nombre d'onde de la lumière incidente et  $\Delta v_i$  les décalages spectraux RR dépendants de  $J$  et du sens de décalage (Eq. 63 et 64).  $B_{0,i}$  est la constante de rotation de la molécule  $i$  pour le niveau vibrationnel fondamental (présent également dans  $E_{rot,0,i}(J)$ ). La constante  $\gamma_i$  représente l'anisotropie du tenseur de polarisabilité de Placzek. Toutes les valeurs numériques des paramètres intrinsèquement liés à la nature des molécules de  $\text{N}_2$  ou  $\text{O}_2$  sont résumées dans le Tableau 3.

**Tableau 3 : Valeurs numériques, pour le niveau vibrationnel fondamental des molécules de  $\text{N}_2$  et  $\text{O}_2$ , des constantes de rotation, distorsion centrifuge, poids statistique du spin nucléaire, spin nucléaire et anisotropie du tenseur de polarisabilité.**

Molécule	$B_{0,i}$ ( $\text{cm}^{-1}$ )	$D_{0,i}$ ( $\text{cm}^{-1}$ )	$g_i(J)$		$I_i$	$\gamma_i^2$ ( $\text{cm}^6$ )
			$J$ pair	$J$ impair		

$\text{N}_2$	1,98957	$5,76 \cdot 10^{-6}$	6	3	1	$0,51 \cdot 10^{-48}$
$\text{O}_2$	1,43768	$4,85 \cdot 10^{-6}$	0	1	0	$1,27 \cdot 10^{-48}$

L'équation (65) met en évidence, pour une valeur de  $J$  donnée, la dépendance de la section efficace de rétrodiffusion RR vis-à-vis de la température thermodynamique  $T$  du milieu. Bien que le calcul montre que les sections efficaces RR sont plus importantes du côté Stokes du spectre, la fluorescence des aérosols est une probable source de biais important à ces longueurs d'onde. De plus, en incidence non normale, le décalage de la longueur d'onde centrale des filtres interférentiels vers les plus petites longueurs d'ondes peut occasionner d'importantes contaminations des signaux RR Stokes par de la rétrodiffusion Rayleigh. Pour ces raisons, les lidars RR utilisent, sauf exceptions (par exemple, Vaughan et al., 1993), la partie anti-Stokes du spectre RR.

### 3.1.2 Equation du lidar Raman rotationnel pur

La section efficace RR étant établie, en reprenant l'expression de l'équation lidar corrigée pour une visée zénith (chapitre 2, Eq. 16), on peut exprimer le signal lidar reçu par une voie  $\text{RR}_i$  (dépendant du filtre  $i$  utilisé) par :

$$\begin{aligned}
 S_2^{\text{RR}_i}(\lambda_l, z, T) &= K_s^{\text{RR}_i}(\lambda_l) \cdot F_{\text{RR}_i}(z) \cdot \\
 N(z) \cdot &\left[ \sum_{j=\text{N}_2, \text{O}_2} \sum_{J_k} T_{\text{RR}_i}(J_k) \cdot r_j \cdot \left( \frac{\partial \sigma_{\text{RR},j}(v_0, \theta, T)}{\partial \Omega_{\text{diff}}} \right)_{\theta=\pi} \right] \\
 &\cdot \underbrace{\exp\{-(1 + \eta_{\text{RR}_i}) \cdot \tau_a(\lambda_l, z_0, z) - \tau_m(\lambda_{\text{RR}_i}, z_0, z) - \tau_m(\lambda_l, z_0, z)\}}_{T_{\text{atm}}(z_0, z)^2}
 \end{aligned} \tag{68}$$

Dans cette équation,  $\lambda_{\text{RR}_i}$  représente la longueur d'onde centrale du filtre  $\text{RR}_i$ . Les rapports de mélange massique de  $\text{N}_2$  et  $\text{O}_2$  ( $r_j = r_{\text{N}_2}$  ou  $r_{\text{O}_2}$ ) sont supposés constants pour le profil de densité atmosphérique  $N(z)$  considéré ici (vrai dans la troposphère et la stratosphère). Comme pour le Raman- $\text{N}_2$ ,  $\eta_{\text{RR}_i} = \left(\frac{\lambda_{\text{RR}_i}}{\lambda_l}\right)^{-\tilde{a}}$  avec  $\tilde{a}$  le coefficient d'Angström. Les longueurs d'ondes d'émission et  $\text{RR}_i$  étant très proches, ce facteur correctif qui traduit la dépendance spectrale de l'épaisseur optique des aérosols est égal à  $1 \pm 0,01$  pour  $\tilde{a}$  variant de -1 à 2 (calcul avec  $\lambda_{\text{RR}_2}$ , la longueur d'onde la plus éloignée de  $\lambda_l$ ). La différence de transmission atmosphérique est donc négligée entre les deux voies RR ; on note  $T_{\text{atm}}(z_0, z)$ , la transmission commune à ces deux voies.

En choisissant deux filtres  $\text{RR}_i$  dans deux zones du spectre distinctes comme illustré dans la Figure 19, un système lidar acquiert deux signaux qui varient différemment en fonction de la température du milieu

atmosphérique. La réjection du filtre  $RR_1$  à la longueur d'onde d'émission, très proche de sa longueur d'onde centrale, est critique pour ne pas biaiser le signal  $RR_1$  par une contamination via la rétrodiffusion élastique.

### 3.1.3 Analyse du signal

Pour analyser les deux signaux  $RR_i$  et en extraire la température, il convient de s'affranchir d'un maximum de paramètres indépendants de ces variations. On utilise alors le ratio des deux voies  $RR$ , que l'on nomme  $Q$  :

$$Q(z, T) = \frac{S_2^{RR_2}(\lambda_l, z, T)}{S_2^{RR_1}(\lambda_l, z, T)} \quad (69)$$

Ce qui se développe en :

$$Q(z, T) = \frac{K_S^{RR_2}(\lambda_l)}{K_S^{RR_1}(\lambda_l)} \cdot \frac{F_{RR_2}(z)}{F_{RR_1}(z)} \cdot \frac{\left[ \sum_{j=N_2, O_2} \sum_{J_k} T_{RR_2}(J_k) \cdot r_j \cdot \left( \frac{\partial \sigma_{RR,j}(v_0, \theta, T)}{\partial \Omega_{diff}} \right)_{\theta=\pi} \right]}{\left[ \sum_{j=N_2, O_2} \sum_{J_k} T_{RR_1}(J_k) \cdot r_j \cdot \left( \frac{\partial \sigma_{RR,j}(v_0, \theta, T)}{\partial \Omega_{diff}} \right)_{\theta=\pi} \right]} \quad (70)$$

Le rapport des constantes se réduit au rapport des gains respectifs des voies  $RR_i$ . Le ratio des fonctions de recouvrement est, comme pour la mesure de vapeur d'eau, un terme critique pour les premières couches surplombant le lidar. Une caractérisation erronée des facteurs géométriques peut conduire à d'importants biais (supérieurs au degré Kelvin) dans les premières centaines de mètres échantillonnées. Les transmissions des filtres interférentiels  $T_{RR_1}$  et  $T_{RR_2}$  sont impliquées dans le dernier terme qui pilote la dépendance en température.

Sur la Figure 21, les sections efficaces simulées pour les voies  $RR_1$  et  $RR_2$  du WALI sont tracées en fonction de la température. On retrouve la variation opposée des sections efficaces suivant la température comme mis en évidence dans la Figure 19. On remarque que la section efficace  $RR_1$  est moins sensible aux variations de température que  $RR_2$ . Il est possible d'utiliser une combinaison linéaire des voies  $RR_1$  et  $RR_2$  pour obtenir un signal très peu dépendant de la température et l'utiliser à l'instar de la voie Raman- $N_2$  pour mesurer l'épaisseur optique des aérosols. Le ratio  $Q$  est également tracé sur la Figure 21. C'est le ratio théorique idéal pour des voies ayant le même facteur géométrique et un rapport des gains constant, ici égal à 1.

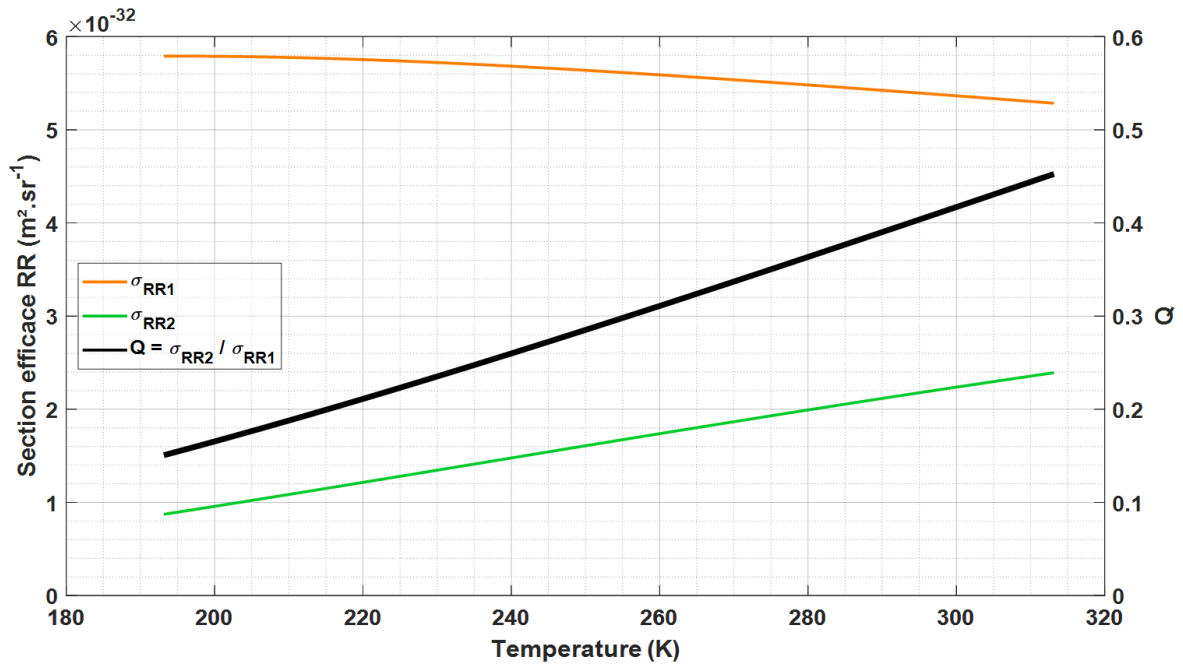


Figure 21 : Relation entre la température en Kelvin et les sections efficaces de rétrodiffusion RR telles que vues via les filtres interférentiels du WALI. Ces sections sont représentées en couleur (orange pour  $RR_1$  et vert pour  $RR_2$ ) pour une plage de température de  $-80^\circ\text{C}$  à  $+40^\circ\text{C}$ . En trait plein noir, le rapport de ces deux sections efficaces appelé  $Q$  est tracé sur cette même plage de température (axe des Y à droite). Dans ce cas les filtres sont supposés orthogonaux à l'axe optique de réception du lidar et le rapport  $Q$  présenté ainsi suppose des rapports des gains et des facteurs géométriques égaux à 1.

En théorie, si seule une raie est sélectionnée par chacun des deux filtres RR du lidar, une connaissance parfaite des caractéristiques instrumentales permet de connaître la forme analytique de  $Q(T)$ . Pour des filtres plus larges intégrant plusieurs raies RR ; la fonction  $Q(T)$  est un ratio de sommes pondérées d'exponentielles de la température. Cela rend l'inversion de l'équation (70) insoluble analytiquement. En pratique, on utilise une approximation polynomiale de  $Q(T)$  pour effectuer l'étalonnage de la mesure de température par lidar.

### 3.1.4 Étalonnage

Il est possible d'étalonner un lidar RR sans utiliser de données externes (Vaughan et al. 1993). En général ce genre d'approche conduit à des erreurs supérieures au degré (Behrendt 2005). Un étalonnage par rapport à des mesures de références est donc préféré. Le profil  $T_{cal}(z)$  servant à étalonner le lidar doit être le plus co-localisé possible avec la ligne de visée de l'instrument et doit permettre un étalonnage jusqu'aux plus hautes altitudes accessibles afin d'explorer une large gamme de température. En général, de telles données de température sont issues de radiosondages. Toutefois, des approches combinées avec une sonde plus proche à basse altitude permettent d'affiner le profil  $T_{cal}(z)$  pour éviter les biais liés à l'utilisation d'un

profil de radiosondage trop distant de la localisation du lidar. Le profil servant à l'étalonnage peut être mixte entre des données acquises dans les premiers kilomètres de l'atmosphère, par exemple par un ULM (planeur Ultra Léger Motorisé) ou un drone embarquant une sonde de température, et des données d'un radiosondage distant (80 km pour l'exemple donné ci-dessous) pour les altitudes plus élevées ( $Z > 4$  km) dans la troposphère libre. Dans ce dernier cas les localisations du lidar et du radiosondage sont supposées sous la même influence de masses d'air. Une courbe d'étalonnage utilisant un tel profil est présentée en Figure 22.

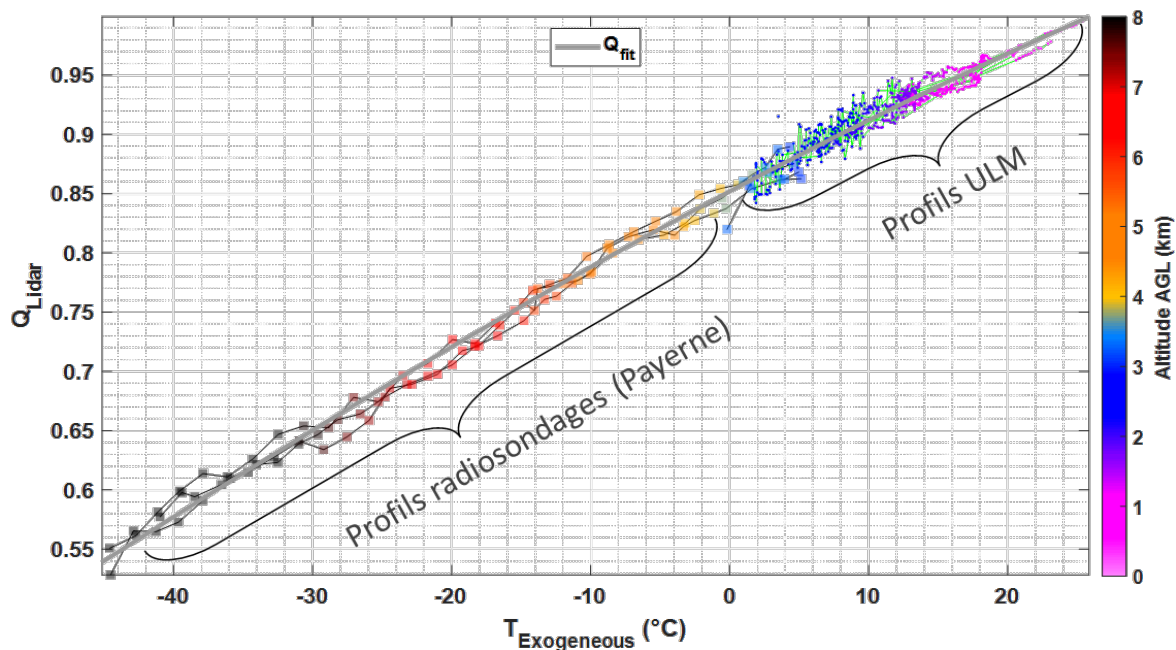


Figure 22 : Courbe d'étalonnage en température du ratio  $Q$ . Pour une même altitude  $z$  et des temps concomitants, les valeurs de  $Q$  sont tracées en ordonnée en fonction de la température du profil d'étalonnage établi à l'aide de vols ULM et de radiosondages. La couleur des points fait référence à la barre de couleur sur la droite et renseigne sur l'altitude de mesure des données. Une fonction de  $T$  ( $Q_{fit}$  en trait plein gris) est ensuite ajustée à ces données pour être appliquée à tous les profils lidar pour un suivi continu de la température.

L'ajustement du ratio  $Q$  peut se faire en utilisant une fonction linéaire de la température, mais les erreurs d'approximation liées à l'utilisation d'une telle fonction sont importantes ( $> 1$  K). Les travaux de Gerasimov et Zuev (2016) comparent différentes fonctions d'étalonnage utilisables dans le cadre de la mesure de température par lidar RR. Cinq fonctions sont comparées dans la Figure 23 par rapport à l'erreur intrinsèque qu'elles occasionnent pour l'étalonnage, et sont données par les relations (A à E) suivantes entre  $Q$  et  $T$  :

$$\left\{ \begin{array}{l}
 T = \frac{b}{\ln(Q) - a} \Leftrightarrow Q = \exp\left(\frac{b}{T} + a\right); \text{Eq. A} \\
 T = \frac{\ln(Q)}{b \ln(Q)^2 - a \ln(Q) + c} \Leftrightarrow Q = \exp\left(\frac{a + \frac{1}{T} + \sqrt{a^2 + \frac{2a}{T} + \frac{1}{T^2} - 4bc}}{2b}\right); \text{Eq. B} \\
 T = \frac{2b}{\ln(Q) - a - \sqrt{(\ln(Q) - a)^2 - 4bc}} \Leftrightarrow Q = \exp\left(\frac{b}{T} + a + cT\right); \text{Eq. C} \\
 T = \frac{2c}{-b - \sqrt{4c(\ln(Q) - a) + b^2}} \Leftrightarrow Q = \exp\left(\frac{c}{T^2} + \frac{b}{T} + a\right); \text{Eq. D} \\
 T = \frac{c}{\ln(Q)^2 + b \ln(Q) + a} \Leftrightarrow Q = \exp\left[\frac{-b - \sqrt{b^2 - 4\left(a - \frac{c}{T}\right)}}{2}\right]; \text{Eq. E}
 \end{array} \right. \quad (71)$$

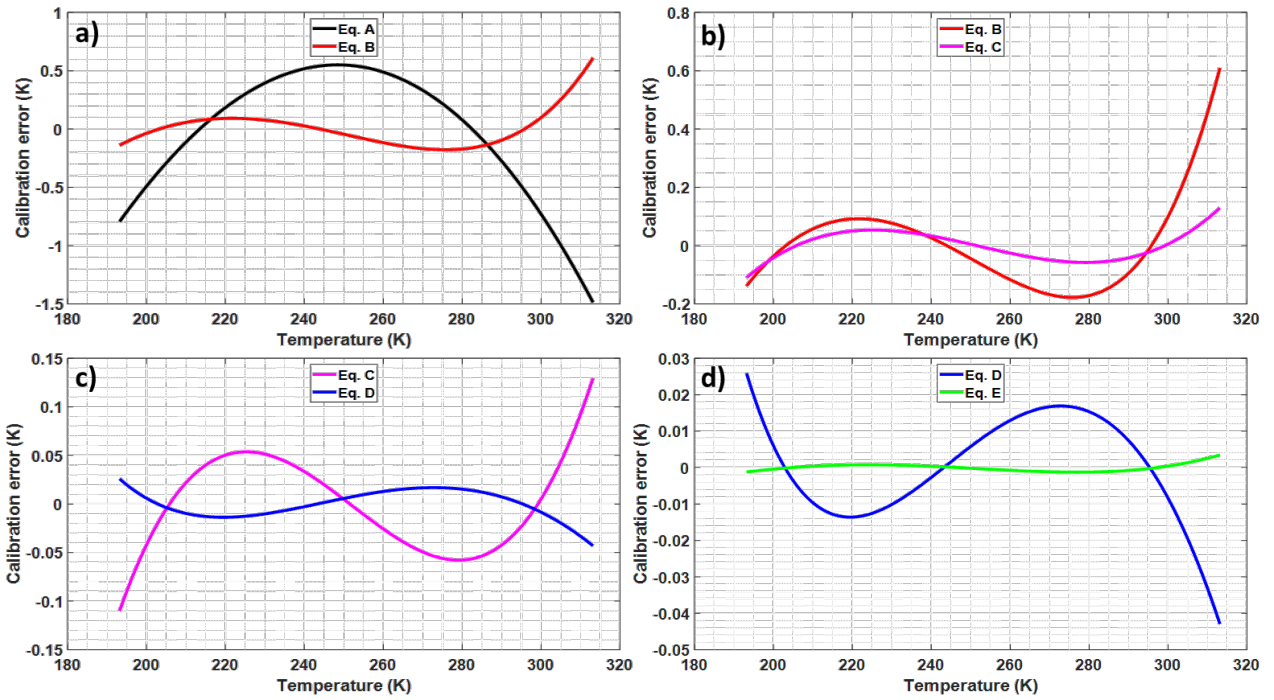


Figure 23 : Erreurs d'étalonnage intrinsèquement liées à la fonction utilisée pour une plage de température de  $-80^{\circ}\text{C}$  à  $+40^{\circ}\text{C}$ . Les graphiques, dont l'axe des ordonnées est successivement agrandi de a) à d), représentent les erreurs pour cinq fonctions d'étalonnages différentes (équations A à E de l'équation 12). Pour une même courbe, le code couleur est préservé d'un graphique à l'autre.

Mise à part l'équation A, ces fonctions comptent trois coefficients dont la détermination se fait par régression entre le ratio  $Q$  mesuré par lidar et le profil de température de référence. Si des fonctions de degré supérieur permettent de minimiser davantage l'erreur d'étalonnage, l'équation E est un bon compromis entre une erreur faible ( $< 4 \cdot 10^{-3}$  K sur la plage de température de calcul) et une contrainte sur les coefficients d'étalonnage rapidement atteinte. La fonction de l'équation D, souvent mise en avant (Behrendt 2005), n'est théoriquement pas celle qui permet de minimiser l'erreur au mieux, bien que ces

erreurs soient extrêmement faibles par rapport aux incertitudes instrumentales. Les coefficients calculés pour les filtres du lidar WALI (Figure 23), pour chacune des fonctions précédemment présentées, sont rassemblés dans le Tableau 4 avec les erreurs maximales occasionnées.

**Tableau 4 : Coefficients de cinq fonctions d'étalonnage présentées en équation 71. Le ratio Q est calculé avec l'équation 70 et une régression est effectuée sur une plage de température de  $-80^{\circ}\text{C}$  à  $+40^{\circ}\text{C}$  pour obtenir les coefficient d'étalonnage. L'erreur maximale associée à chaque fonction est également indiquée.**

Coefficients	Eq. A	Eq. B	Eq. C	Eq. D	Eq. E
a	$9,7453 \cdot 10^{-1}$	$-1,4423 \cdot 10^{-3}$	$4,7214 \cdot 10^{-1}$	1,2308	$2,1116 \cdot 10^1$
b	$-5,5606 \cdot 10^2$	$-1,9194 \cdot 10^{-3}$	$-4,9462 \cdot 10^2$	$-6,8292 \cdot 10^2$	$-1,7381 \cdot 10^1$
c		$-1,8684 \cdot 10^{-4}$	$1,0071 \cdot 10^{-3}$	$1,5396 \cdot 10^4$	$1,1124 \cdot 10^4$
<b>Erreur maximale due à l'étalonnage (K)</b>	1,487	0,610	0,130	0,043	0,004

## 3.2 Caractéristiques des voies Raman rotationnelles du WALI

### 3.2.1 Agencement des voies Raman rotationnelles

Les voies Raman rotationnelles du lidar WALI sont déportées du télescope de réception dans un « polychromateur » via une fibre optique d'un diamètre d'un millimètre. Cette architecture permet théoriquement d'obtenir un facteur géométrique similaire pour toutes les voies déportées. Le polychromateur est schématisé en Figure 24. On y retrouve la séparation du faisceau selon les longueurs d'ondes Raman- $\text{N}_2$ , Raman- $\text{H}_2\text{O}$  et Raman rotationnelles, les filtres interférentiels et les photomultiplicateurs de chacune des voies. Cette architecture « en transmission » est différente de celle de Behrendt et Reichardt (2000) « en réflexion ». Bien que plus compact et plus simple à aligner, le polychromateur du WALI est 10 fois moins efficace pour la rejection de la raie de Cabannes, ce qui reporte la contrainte sur les filtres. Il est néanmoins choisi car cette configuration allège très largement la contrainte sur l'acceptance angulaire des filtres.

On note qu'un filtre interférentiel supplémentaire est placé en amont des voies RR. Il permet une réjection correcte (densité optique  $> 4$ ) hors de la bande passante des filtres RR.

Chaque module FI + lentille + PM est monté sur une monture dédiée réglable en inclinaison. Afin de garantir une incidence normale, l'alignement est effectué en laboratoire par couplage de fibres optiques à travers le polychromateur.

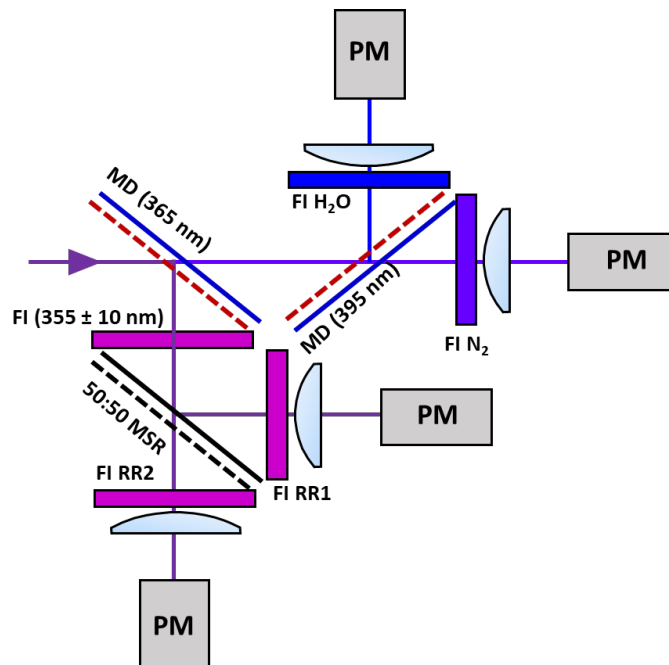


Figure 24 : Schéma du polychromateur des voies Raman du WALL. Le faisceau arrive de la gauche par la fibre et est séparé par miroir dichroïque (MD) qui réfléchit les longueurs d'ondes inférieures à 365 nm. Du côté Raman rotationnel, un premier filtre interférentiel (FI) est placé avant un miroir semi-réfléchissant (MSR) qui sépare le faisceau vers les voies RR<sub>1</sub> et RR<sub>2</sub> avec leurs FI et leurs photomultiplicateurs (PM) propres.

### 3.2.2 Caractéristiques des filtres interférentiels

Les choix de spécifications des filtres interférentiels sont cruciaux pour la mesure de température par lidar RR. Ces filtres doivent être placés de manière optimale sur le spectre RR présenté en Figure 19 et avoir une transmission extrêmement faible pour la longueur d'onde d'émission du laser. Les filtres ont été fabriqués par Materion, Inc. suivant les spécifications gracieusement partagées par A. Behrendt. Dans le Tableau 5, les caractéristiques réelles des filtres RR<sub>1</sub> et RR<sub>2</sub> utilisés par le WALL sont détaillées. Ces caractéristiques ont été mesurées au laboratoire à l'aide d'un spectroscope dans des conditions de température, pression et humidité contrôlées et représentatives des conditions rencontrées pendant les acquisitions lidars.

Tableau 5 : Tableau des caractéristiques des filtres interférentiels utilisés pour les voies Raman rotationnelles du WALL. CWL représente la longueur d'onde centrale du filtre (« Central WaveLength »), FWHM représente la largeur à mi-hauteur du filtre (« Full – Width at Half Maximum »). Les transmissions maximales, au niveau de la longueur d'onde centrale et pour la longueur d'onde d'émission du laser sont notées respectivement  $T_{\max}$ ,  $T_{\text{CWL}}$  et  $T_{\lambda}$  pour chacun des filtres.  $N_{\text{eff}}$  représente l'indice de réfraction effectif du filtre interférentiel. Toutes les longueurs d'ondes sont données dans le vide, et les mesures sont faites à 22°C.

Paramètre	RR <sub>1</sub>	RR <sub>2</sub>
-----------	-----------------	-----------------



<b>CWL (nm)</b>	$354,09 \pm 0,01$	$353,22 \pm 0,01$
<b>FWHM (nm)</b>	$0,25 \pm 0,01$	$0,53 \pm 0,01$
<b>T<sub>max</sub></b>	$58,9 \pm 5 \%$	$64,4 \pm 5 \%$
<b>T<sub>cwl</sub></b>	$58,1 \pm 5 \%$	$57,2 \pm 5 \%$
<b>T<sub>λ</sub></b>	$3 \cdot 10^{-8}$	$3 \cdot 10^{-7}$
<b>N<sub>eff</sub></b>	$1,62 \pm 0,04$	$2,03 \pm 0,05$

La transmission des filtres RR à la longueur d'onde laser ( $\lambda_{\text{laser}} = 354,725 \text{ nm}$ ) a été estimée directement sur le lidar en utilisant un écho sur cible dure à 150 mètres de distance, avec la même optique de réception pour les filtres élastique, RR<sub>1</sub> et RR<sub>2</sub>. Bien que plus éloigné de la longueur d'onde d'émission, le filtre RR<sub>2</sub> transmet plus à  $\lambda_{\text{laser}}$  que le filtre RR<sub>1</sub> dont la spécification au fabricant faisait expressément mention d'une valeur de rejection pour cette longueur d'onde. Très proche de la longueur d'onde d'émission, il est important que le filtre RR<sub>1</sub> y soit opaque. Dans les deux cas, les fuites « élastiques » sont très faibles, proches de la valeur de  $10^{-8}$  admise comme ne présentant pas d'impact pour la mesure (Di Girolamo et al. 2017). L'indice de réfraction effectif des filtres interférentiels ( $N_{\text{eff}}$ ) a été calculé en mesurant les spectres de transmission des filtres pour plusieurs inclinaisons ( $\theta$ ) des filtres par rapport à l'axe optique. L'indice de réfraction effectif d'un filtre interférentiel varie typiquement entre 1,4 et 2,2 (Bass 1995), il est utilisé pour calculer la longueur d'onde centrale de la fonction de transfert du filtre.

### 3.2.3 Choix du positionnement des filtres

Les spectres de transmission des filtres interférentiels ont la propriété d'être décalés lorsqu'ils ne sont pas attaqués en incidence normale par le rayonnement incident. Les positionnements des fonctions de transfert des filtres en incidence normale dans le domaine spectral étudié sont présentés en Figure 19. Or, la longueur d'onde centrale  $CWL$  est déplacée vers les plus petites longueurs d'onde quand on augmente l'angle d'incidence sur le filtre  $\theta$  selon la relation (Smith 1990) :

$$CWL(\theta) = CWL_0 \times \sqrt{1 - \left(\frac{\sin(\theta)}{N_{\text{eff}}}\right)^2} \quad (72)$$

avec  $CWL_0$  la longueur d'onde centrale à incidence normale et  $N_{\text{eff}}$  l'indice effectif du filtre. Une telle propriété peut permettre d'optimiser la mesure de la température. Dans la Figure 25, les spectres de transmission des filtres sont tracés pour des angles d'inclinaison jusqu'à  $5^\circ$ .

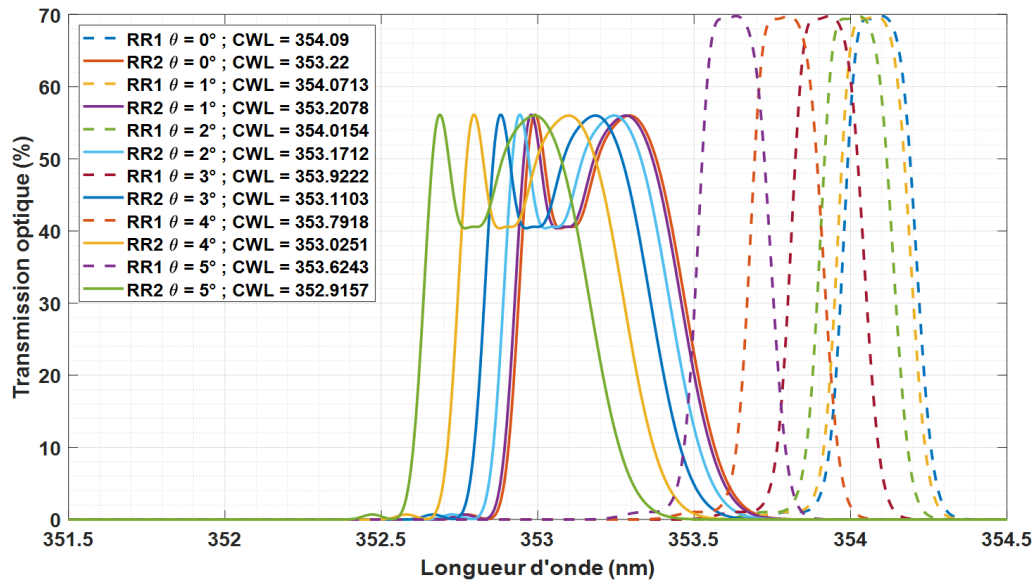


Figure 25 : Spectres de transmission des filtres RR<sub>1</sub> (traits pointillés) et RR<sub>2</sub> (traits pleins) simulés pour plusieurs angles d'inclinaison  $\theta$ . Ici la simulation ne montre qu'un déplacement de la longueur d'onde centrale des filtres.

De même que cela a été évalué pour la Figure 21 en incidence normale, on peut calculer la section efficace associée à chaque inclinaison de filtre (Figure 26). On peut ainsi chercher si une combinaison d'inclinaison des filtres rend le rapport des sections efficaces  $Q$  plus sensible à la température.

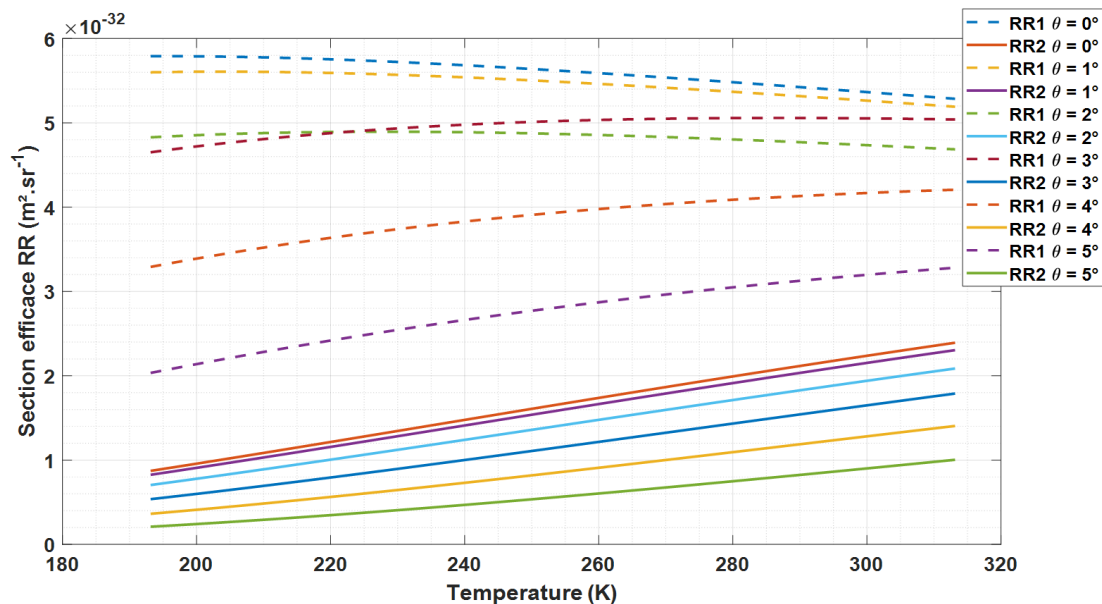
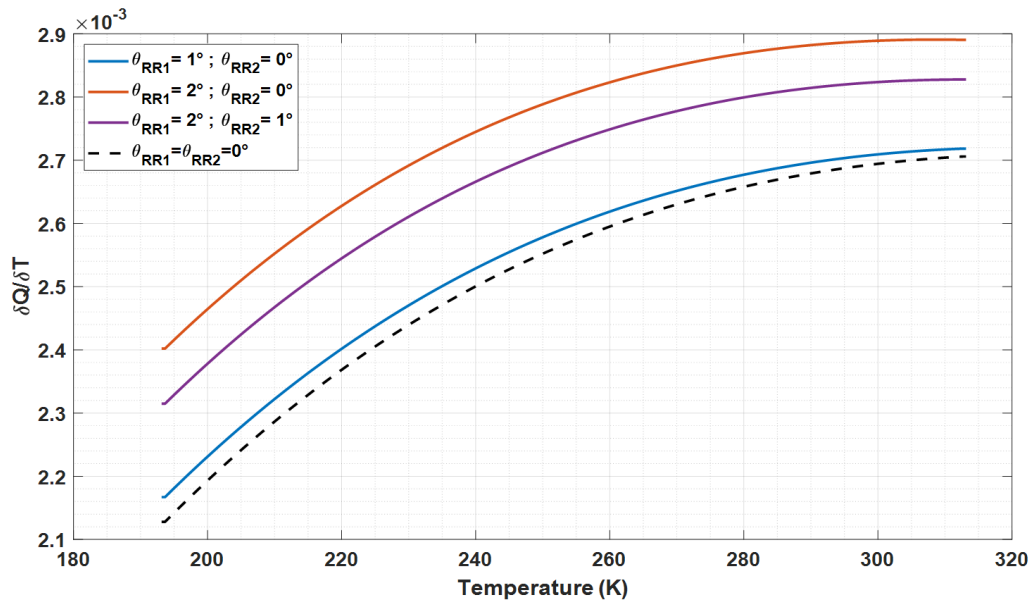


Figure 26 : Sections efficaces de rétrodiffusion Raman rotationnelle pour chaque inclinaison de chacun des filtres. Les sections efficaces RR<sub>1</sub> sont tracées en traits pointillés et les RR<sub>2</sub> en traits pleins.

Sur la Figure 26 on remarque que la section efficace associée à RR<sub>2</sub> comporte toujours la même tendance croissante avec la température. En effet, comme mis en évidence dans la Figure 19, en dessous de  $\sim 353,9$  nm l'intensité des raies RR augmente toujours avec la température. Pour RR<sub>1</sub>, avec une inclinaison d'environ  $3^\circ$ , la longueur d'onde centrale du filtre se retrouve aux alentours de 353,9 nm. On remarque

alors que la section efficace résultante est encore plus faiblement sensible à la température (courbe pointillée bordeaux).

On peut trouver 3 combinaisons qui améliorent faiblement la sensibilité de  $Q$  vis-à-vis de la température (Figure 27) quand on se place hors de l'incidence normale.



**Figure 27** : Gradient de  $Q$  (qui correspond, au premier ordre, à la pente des pseudo-droites  $Q = f(T)$ ). Trois combinaisons sont tracées en couleur et offrent une sensibilité accrue à la température par rapport à la configuration normale des filtres.

Si ces configurations sont théoriquement plus sensibles à la température que la configuration d'origine, le calcul de l'erreur liée à l'étalonnage est cependant légèrement défavorable. Le gain étant minime, la configuration actuelle des filtres interférentiels, en incidence normale, peut être considérée optimale pour la mesure de température.

### 3.2.4 Sensibilité au champ de vue

Si l'inclinaison des filtres peut être choisie pour les raisons évoquées précédemment, l'angle d'incidence sur les filtres peut également s'écarter de la normale pour des raisons de construction. En effet, des angles d'incidences plus élevés sont accessibles en champ proche, ce qui peut créer une distorsion sur le signal lidar entre le champ proche et le champ lointain. On peut considérer que l'on se trouve en champ lointain à peu près à 300 m pour un lidar comme le système WALI. On parle ici de petits angles, pour le WALI, le calcul à l'aide du champ de vue du télescope (1,6 mrad) et des distances focales du télescope (600 mm) et de la lentille utilisée pour recollimater le faisceau (50 mm), donne un angle d'incidence maximal de  $\sim 1^\circ$ . Sur la Figure 28 le ratio  $Q$  est représenté pour des angles d'incidences de  $0^\circ$ ,  $0,1^\circ$ ,  $0,5^\circ$  et  $1^\circ$  sur les filtres  $RR_1$  et  $RR_2$ .

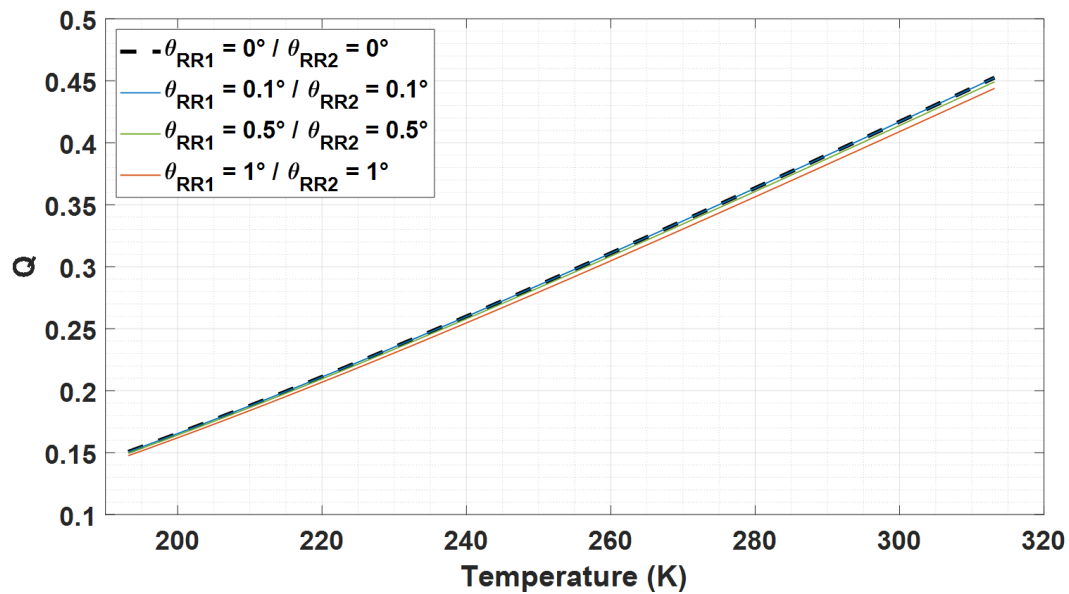


Figure 28 : Ratio  $Q$  en fonction de la température pour des couples d'angles d'incidences petits sur les filtres  $RR_1$  et  $RR_2$ .

Comme discuté dans les sections 3.3.2.2 et 3.3.2.3 qui suivent, l'étalonnage doit s'effectuer en champ lointain, en particulier loin de la zone impactée par le facteur géométrique et des effets angulaires du champ proche. De cette manière, la courbe d'étalonnage est celle calculée pour une incidence normale sur les filtres (Figure 28, courbe noire pointillée). Bien que les courbes pour différentes incidences semblent proches, les écarts à la courbe d'étalonnage en incidence normale occasionnent une erreur de l'ordre du degré Kelvin (Figure 29) pour des incidences de  $1^\circ$ .

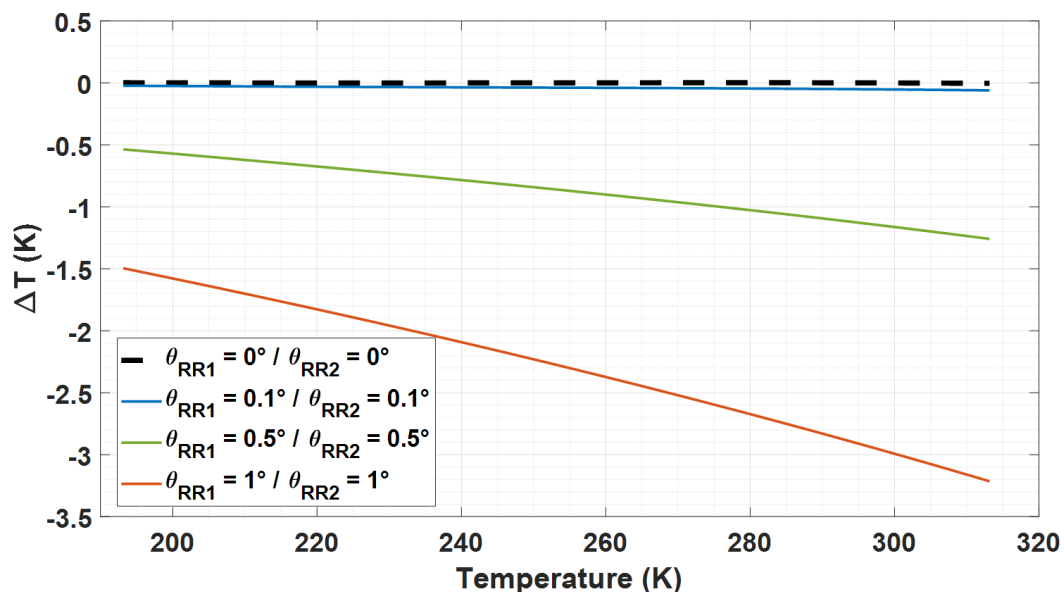


Figure 29 : Erreur sur la température en fonction de la température. L'inversion des données acquises en incidence non normale est effectuée en utilisant les coefficients d'étalonnage calculés en incidence normale (courbe pointillée noire).

Ces erreurs croissent avec la température ce qui implique une erreur d'autant plus forte près de la surface là où la température atmosphérique est la plus élevée. En pratique les photons rétrodiffusés du champ proche n'attaquent pas tous le filtre avec l'angle d'incidence maximal. On note néanmoins que les biais engendrés peuvent être importants. Le dimensionnement des optiques de réception, et en particulier des distances focales s'avère cruciale pour limiter les angles d'incidences maximaux accessibles en champ proche.

### 3.3 Bilan de liaison du WALI

Dans le but de quantifier les incertitudes sur un profil de température mesuré par le système WALI, l'instrument a été modélisé numériquement afin de générer des signaux lidar synthétiques. Cette modélisation a été couplée à un algorithme d'inversion afin de pouvoir étudier chaque source d'erreur distinctement. Il s'agit d'une modélisation dite "end-to-end" comme celle utilisée par Chazette et al. (2001) et Shang et Chazette (2015). Ces erreurs seront toutes supposées indépendantes, elles s'ajouteront donc quadratiquement pour obtenir l'erreur totale sur la mesure.

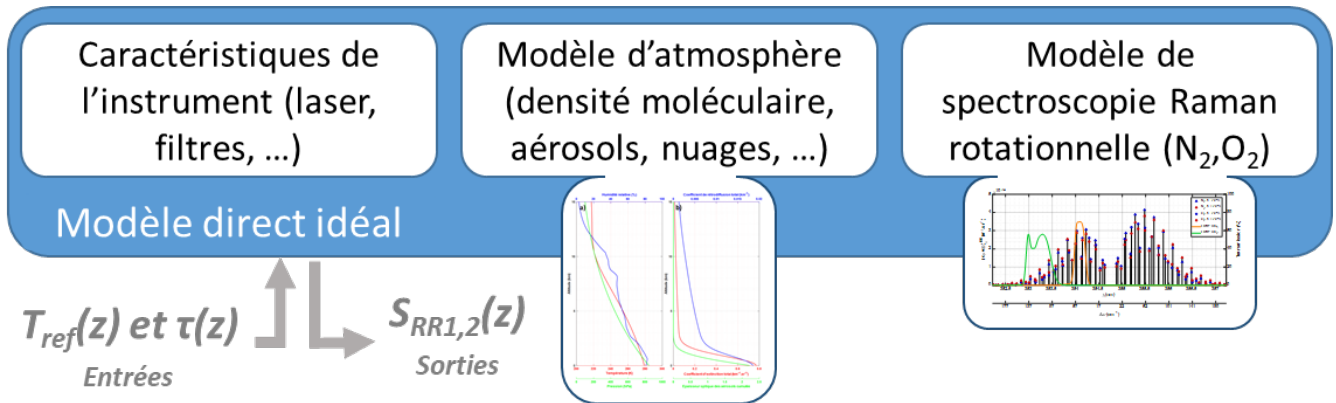
#### 3.3.1 Modèle direct – inverse

Dans cette section, les signaux lidars RR sont simulés à partir d'une atmosphère modélisée, représentative d'une situation typique (modèle direct). Le ratio  $Q$  ainsi calculé est ensuite étalonné pour retrouver la température utilisée en entrée du modèle direct via une modélisation inverse. Il est ainsi possible d'étudier les impacts en termes de biais liés aux facteurs géométriques, à l'extrapolation des coefficients d'étalonnage au-delà de la plage de température couverte par le profil de référence ou encore à un biais sur le profil de température utilisé pour effectuer l'étalonnage. Enfin, le niveau de bruit des signaux simulés est ajusté sur des signaux réels afin d'évaluer la constante système du lidar WALI et ainsi les erreurs aléatoires sur la mesure de température.

##### 3.3.1.1 Modèle direct

Le modèle direct est schématisé en Figure 30. La modélisation est dite idéale car les signaux modélisés en sortie ne sont pas bruités. Il doit être initialisé par un profil de température  $T_{ref}(z)$  et un profil d'épaisseur optique des aérosols  $\tau(z)$ . Avec ces deux conditions initiales, le modèle direct fournit les deux signaux  $S_{RR1}(z)$  et  $S_{RR2}(z)$  suivant les équations (65) et (68). Dans le modèle d'atmosphère, le profil de pression est déduit de celui d'altitude par la formule du nivellement barométrique pour une atmosphère normalisée (Berberan-Santos, Bodunov, et Pogliani 1997). Le profil de densité moléculaire impliqué dans les signaux

RR (Eq. 68) est déduit des profils de pression et de température par la loi des gaz parfaits. La diffusion moléculaire est calculée avec la densité et la section efficace Rayleigh présentée dans le chapitre 2 (Eq. 32).



**Figure 30** : Schéma en blocs du modèle direct. Il est composé des caractéristiques instrumentales, d'un modèle d'atmosphère initialisé par un profil de température et d'épaisseur optique des aérosols. Enfin le modèle de spectroscopie Raman rotationnelle (RR) permet de calculer les sections efficaces RR. Il est dit idéal car fournissant des signaux moyens non soumis au bruit de mesure.

Afin d'initialiser le modèle direct, les profils de température présentés en Figure 31a sont issus d'observations effectuées le 17 juin 2019 au Sud du lac d'Annecy lors d'une campagne de mesures ayant impliqué le lidar WALI (voir le Chapitre 5, section 5.2). Le profil d'épaisseur optique cumulée des aérosols sont également déduits de cette campagne. Il est représentatif d'une atmosphère peu chargée en aérosols comme c'est le cas majoritairement en France hors épisode de pollution, avec une épaisseur optique totale de 0,12 et un ratio lidar de  $\sim 60$  (par exemple, Chazette et Royer, 2017). Les aérosols sont ici présents seulement dans la couche limite atmosphérique d'une hauteur d'environ 2 km, typique en condition estivale à nos latitudes. La Figure 31b représente le profil du coefficient de rétrodiffusion total avec un nuage au sommet de la couche limite ( $\sim 2$  km). C'est typiquement le genre de nuage d'eau liquide qui se forme au niveau de la zone d'entraînement. Son épaisseur est d'environ 200 m et il est associé à coefficient de rétrodiffusion maximal de  $10 \text{ km}^{-1}\text{sr}^{-1}$  pour représenter un nuage optiquement épais (Carnuth & Reiter, 1986; Chazette, 1990; Li et al., 2011). A noter que seul son coefficient de rétrodiffusion est présenté car c'est la seule propriété impliquée dans le biais occasionné par une fuite du signal élastique dans les voies RR.

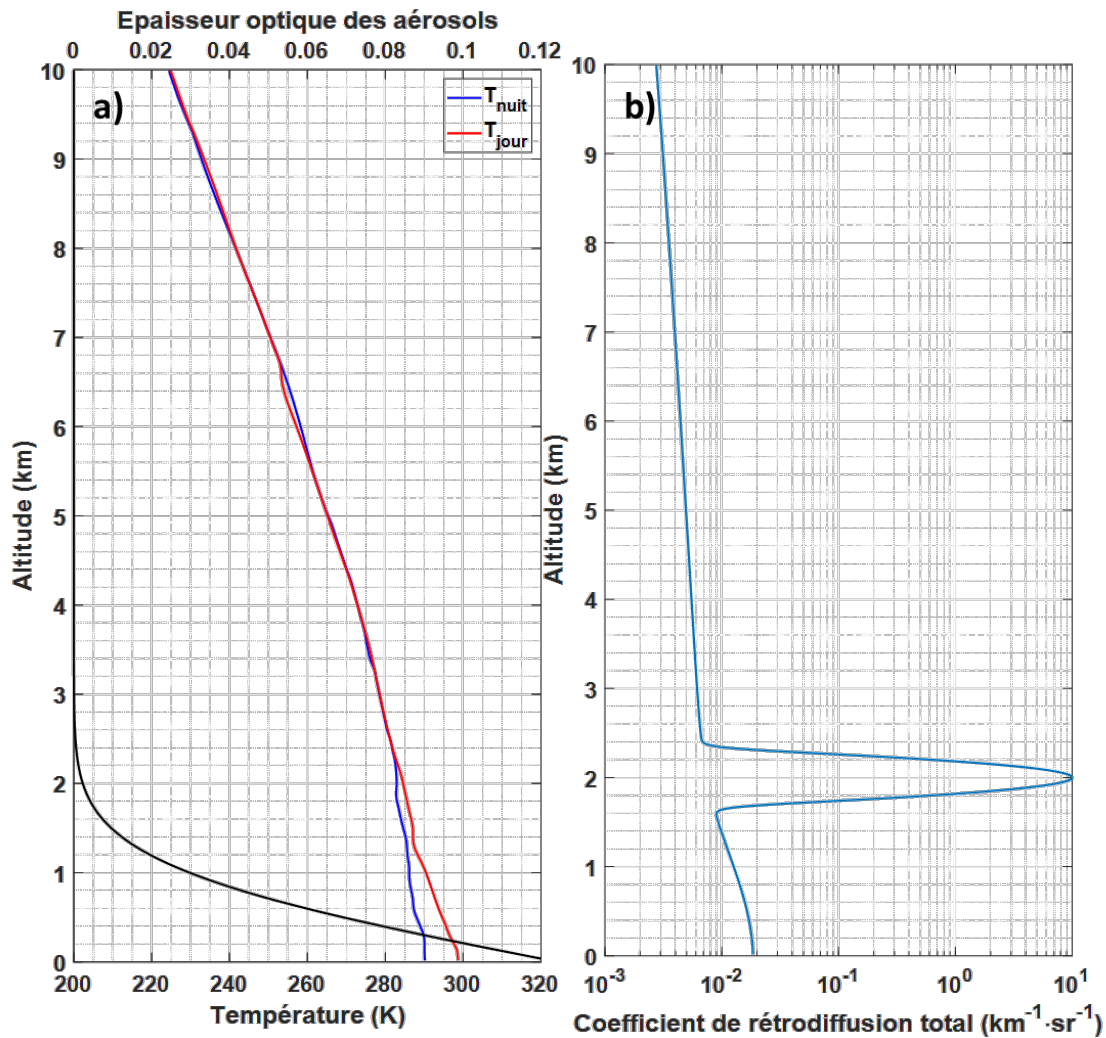


Figure 31 : Conditions initiales du modèle direct. a) Les profils de température observés de jour (rouge) et de nuit (bleu) se réfèrent à l'axe des abscisses du bas. Ils ont été mesurés le 17 juin 2019 au Sud du Lac d'Annecy. Le profil d'épaisseur optique des aérosols (noir) se réfère à l'axe des abscisses du haut de la figure. b) Coefficient de rétrodiffusion total avec la présence d'un nuage au sommet de la couche limite (~2 km).

### 3.3.1.2 Modèle inverse

Le modèle inverse s'appuie sur la relation bijective entre la température et le ratio  $Q$  des signaux RR (sorties du modèle direct). Le schéma du modèle inverse est présenté Figure 32.

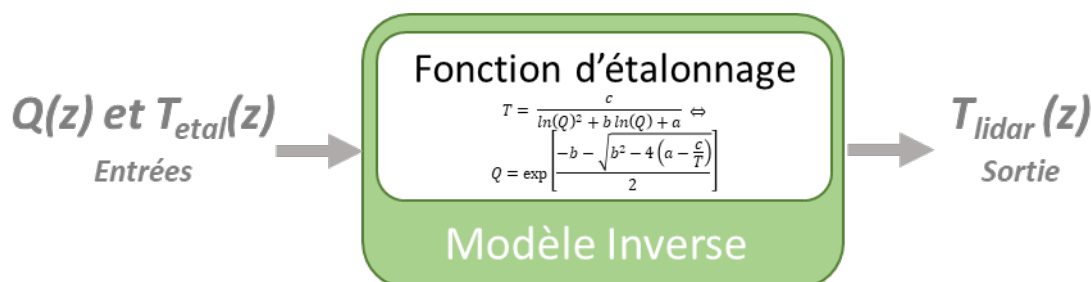


Figure 32 : Schéma du modèle inverse. Il utilise en entrées un profil de ratio  $Q(z)$  et un profil de température dédiés à l'étalonnage  $T_{\text{etal}}(z)$ . En sortie, on retrouve la température  $T_{\text{lidar}}(z)$  associée au ratio  $Q$ .

En entrée de ce bloc on retrouve le ratio  $Q$  issu du modèle direct et un profil de température utilisé pour étalonner ce ratio. En pratique, le profil étalon issu généralement de mesures *in situ* (radiosondage, ULM, ...) n'est pas parfaitement égal au profil  $T_{\text{ref}}$  à l'aplomb du lidar. La fonction d'étalonnage utilisée dans ce travail est celle de l'équation 71E présentée précédemment.

### 3.3.2 Estimation des biais

Dans cette partie, les biais de la mesure de température par lidar sont étudiés à l'aide du modèle direct-inverse. Ils ne dépendent pas du bruit instrumental, et sont donc étudiés de manière théorique avec des profils lidar non bruités. Le profil de température de référence utilisé dans toute cette section est un profil de nuit (Figure 31a, courbe bleue) non contaminé par la luminance du ciel.

#### 3.3.2.1 Cohérence du modèle inverse et fuites élastiques

La température en sortie du modèle inverse doit être comparée à la température initiale, supposée la température "vraie". Lorsque le profil de température utilisé pour l'étalonnage est égal à  $T_{\text{ref}}$  alors l'erreur résiduelle n'est autre que l'erreur intrinsèque de la fonction utilisée pour l'étalonnage qui est évaluée inférieure à  $5 \cdot 10^{-3}$  K. Ce résultat est mis en évidence dans la Figure 33a.

Bien que les fuites observées sur les filtres  $RR_1$  et  $RR_2$  au niveau de la longueur d'onde d'émission soient faibles (Tableau 5), il convient d'étudier leurs impacts en termes de biais sur la mesure de température. Ces fuites interviennent comme un terme additif dans chacun des signaux  $RR$ . Ce terme est égal à la transmission à la longueur d'onde du laser (fuite) que multiplie le coefficient de rétrodiffusion total (molécules, aérosols et le cas échéant nuages). On remarque que la rétrodiffusion des molécules n'ajoute pas de biais (les courbes a et b sont identiques). La présence d'aérosols à des concentrations classiques produit un effet visible mais reste négligeable (biais induit inférieur à  $10^{-3}$  K). En revanche, si le terme de fuite additif est de l'ordre ou supérieur à  $10^6 \text{ km}^{-1}\text{sr}^{-1}$  alors le biais induit est de l'ordre du degré Kelvin (Figure 15d). Ce biais est fréquemment rencontré lors de mesures en atmosphère nuageuse. En pratique, après avoir traversé un nuage épais, le rapport signal à bruit diminue fortement et ne permet pas d'extraire de l'information fiable au-dessus du nuage.



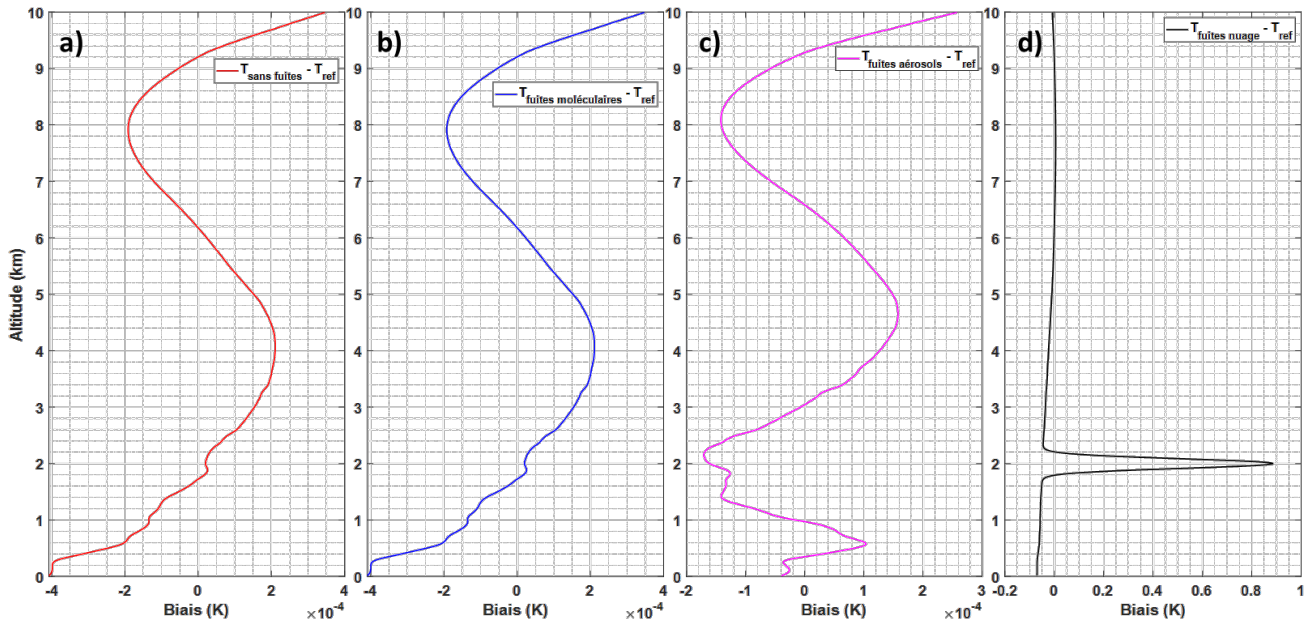


Figure 33 : Profils du biais entre la température de référence et la température inversée. Les graphiques a) à d) représentent respectivement le cas où l'on ne considère pas les fuites de signal élastique dans les filtres (a), le cas où l'on considère les fuites de signaux moléculaires seulement (b), moléculaires et aérosols (c) et la présence d'un nuage à 2 km d'altitude (d).

Ainsi, les erreurs liées aux fuites de signal élastique, restent un sérieux enjeu des lidars RR (Andreas Behrendt 2005) en condition nuageuse. Pour annuler ces biais, les fuites des filtres interférentiels doivent être inférieures à  $10^{-8}$  ce qui est parfois atteint par l'utilisation de plusieurs filtres en cascade au prix d'une diminution de la portée du lidar (Paolo Di Girolamo et al. 2017). Lorsque cela n'est pas possible, des techniques pour corriger ce biais et permettre une mesure peu biaisée de la température au sein d'une couche nuageuse sont publiées dans la littérature (Behrendt et al. 2002; Su et al. 2013; Di Girolamo et al. 2017). Elles reposent sur une correction du signal  $RR_1$  et nécessitent une mesure du signal élastique (voie « aérosols ») simultanée, comme c'est le cas avec le lidar WALI. Le profil élastique affecté des coefficients de fuite mesurés sera donc soustrait aux canaux RR.

### 3.3.2.2 Impact d'un profil étalon biaisé

La température utilisée jusqu'ici pour l'étalonnage était supposée égale à la température de référence (température à la verticale de l'instrument). En pratique, les profils utilisés pour l'étalonnage ne sont pas toujours parfaitement colocalisés avec le lidar et les instruments de mesures in situ comme ceux des radiosondages ne sont pas exempts d'erreurs. Pour les mesures au LSCE, le radiosondage opérationnel de Météo France lâché depuis Trappes (à 14 km du LSCE) est utilisé. Dans les basses couches, et notamment dans la couche limite planétaire, il est difficile de garantir une homogénéité horizontale de la température sur cette distance. Il convient alors d'évaluer l'impact d'un profil étalon biaisé par rapport au profil « vrai »

local et choisir la fenêtre d'étalonnage la plus pertinente pour éviter une erreur sur tout le profil mesuré par lidar. Un cas de figure est présenté en Figure 34a avec un profil d'étalonnage qui diverge de la température de référence en dessous de  $\sim 2$  km (hauteur typique d'une couche limite d'été en région parisienne). Les écarts de température sont choisis car représentatif de la variabilité spatiale de la température en région Ile-de-France. La variabilité est entre autres liée aux effets d'îlot urbain (Kim et al. 2013; Kim et al. 2015).

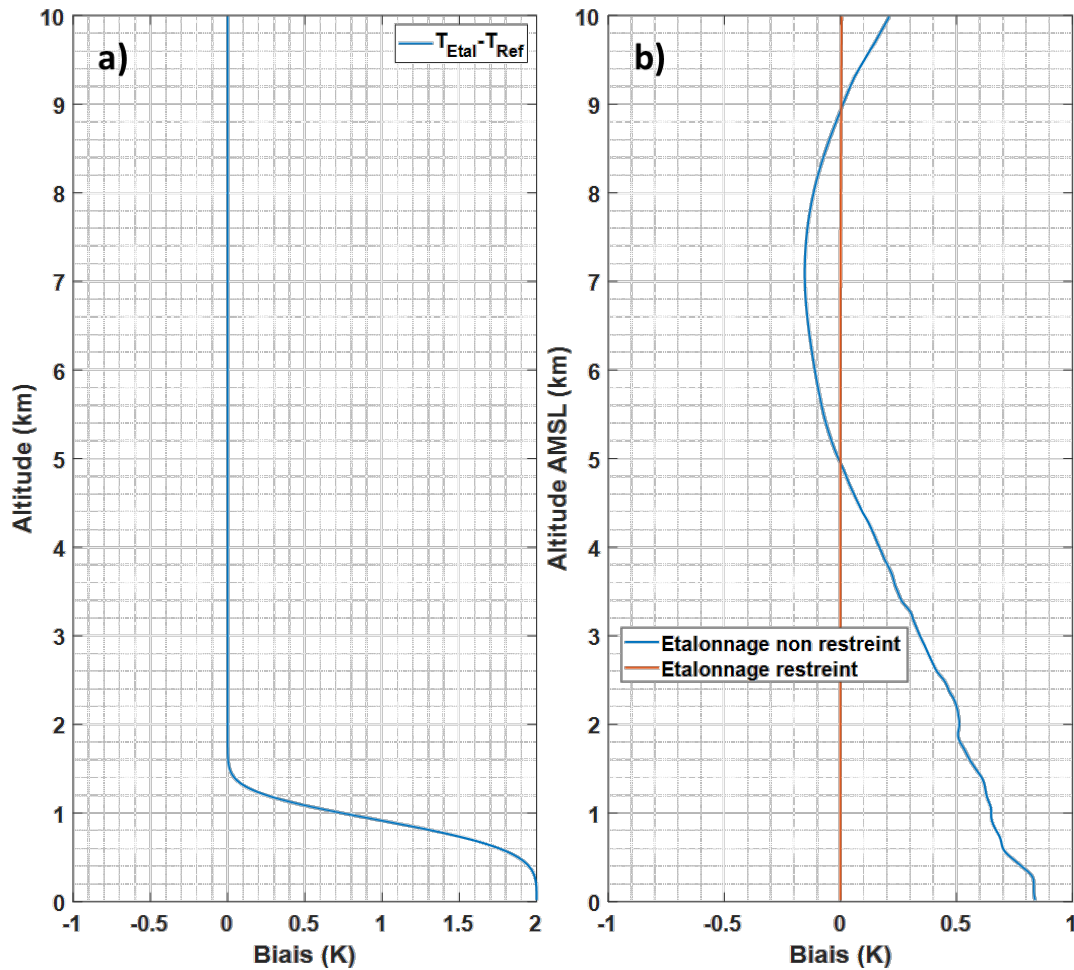


Figure 34 : Différence entre la température de référence  $T_{Ref}$  et la température utilisée pour étalonner,  $T_{Etal}$  (a). Biais entre la température inversée et  $T_{Ref}$  si l'on considère tout le profil d'étalonnage (b, bleu) ou si l'on restreint l'étalonnage au-dessus de 2 km (b, rouge).

En Figure 34b, le biais est calculé entre la température de référence et la température inversée de deux manières différentes. Dans un cas tout le profil d'étalonnage est pris en compte (courbe bleue), dans l'autre, l'étalonnage est restreint à une zone au-dessus de 2 km, hors de la couche limite planétaire. On remarque que la prise en compte du profil d'étalonnage dans son entièreté induit un biais important sur tout le profil de température inversé ( $>0,5$  K en dessous de 2 km). En pratique, l'hypothèse d'égalité entre  $T_{Ref}$  et  $T_{Etal}$  est souvent faite, mais si le profil étalon est éloigné du lidar, cette hypothèse est mise à mal. Il est alors

nécessaire de restreindre l'étalonnage à une zone où l'on peut dûment supposer que la température à la verticale du lidar est la même que celle du profil d'étalonnage (dans la troposphère libre par exemple). Le biais devient alors négligeable (Figure 34b, courbe orange) pour des profils idéaux non bruités. Nous verrons qu'un biais peut émerger lorsqu'une restriction de la plage de température utilisée pour l'étalonnage est appliqué à des profils réalistes (§3.3.3.4)

### 3.3.2.3 Impact du facteur géométrique

La configuration du télescope du lidar WALI est conçue pour assurer une réception commune pour toutes les voies Raman afin d'obtenir des facteurs géométriques (FG) proches voir identiques. Toutefois, un écart résiduel de l'ordre de 5 % est observé en pratique entre les voies d'acquisition  $RR_1$  et  $RR_2$ . Il est dû à la différence de réponse des filtres interférentiels (cf. §3.2.4) et des photomultiplicateurs de chaque voie à différentes incidences. La Figure 35 schématise un tel cas avec des facteurs géométriques très proches (< 5 % d'écart à 150 m) et convergeant à 300 m.

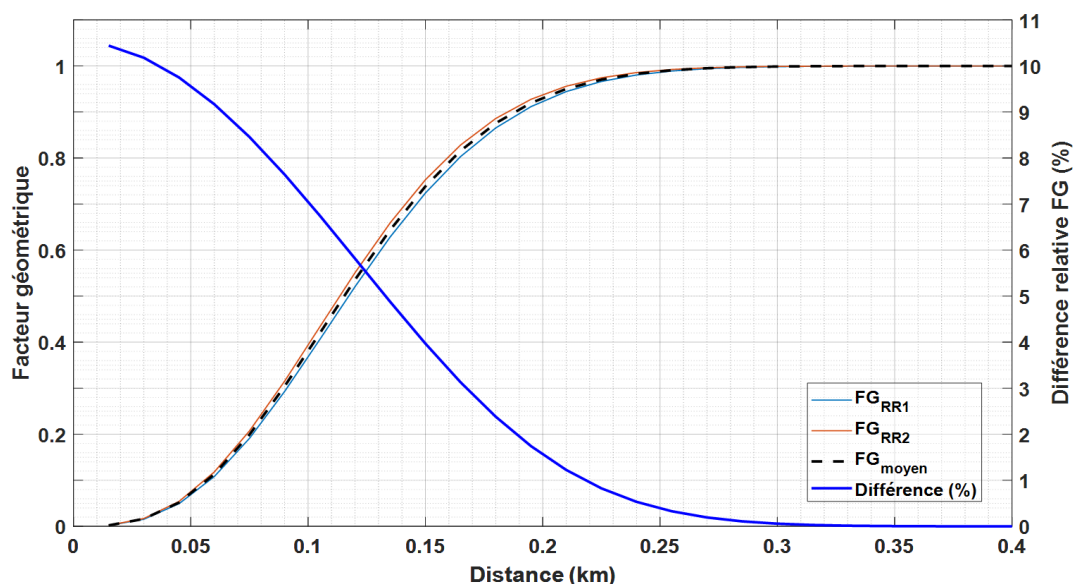


Figure 35 : Facteurs géométriques simulés pour les voies  $RR_1$  (orange) et  $RR_2$  (bleu clair) et leur moyenne (pointillés noirs). Ils convergent à 300 m et leur différence relative (bleu foncé) décroît d'environ 10 % au niveau de l'instrument à moins de 5 % après 150 m de distance.

Les erreurs associées à une telle différence de facteurs géométriques sont représentées dans la Figure 36. Lorsque la partie impactée par le FG est utilisée pour l'étalonnage, une erreur significative (de l'ordre du Kelvin) se propage non-linéairement à tout le profil de température (Figure 36, courbe jaune). Si l'étalonnage ne prend pas en compte cette partie du profil lidar, l'erreur est cantonnée aux couches impactées par le FG (Figure 36, courbe rouge). Cette erreur est significative (plusieurs degrés Kelvin, Figure 36b).

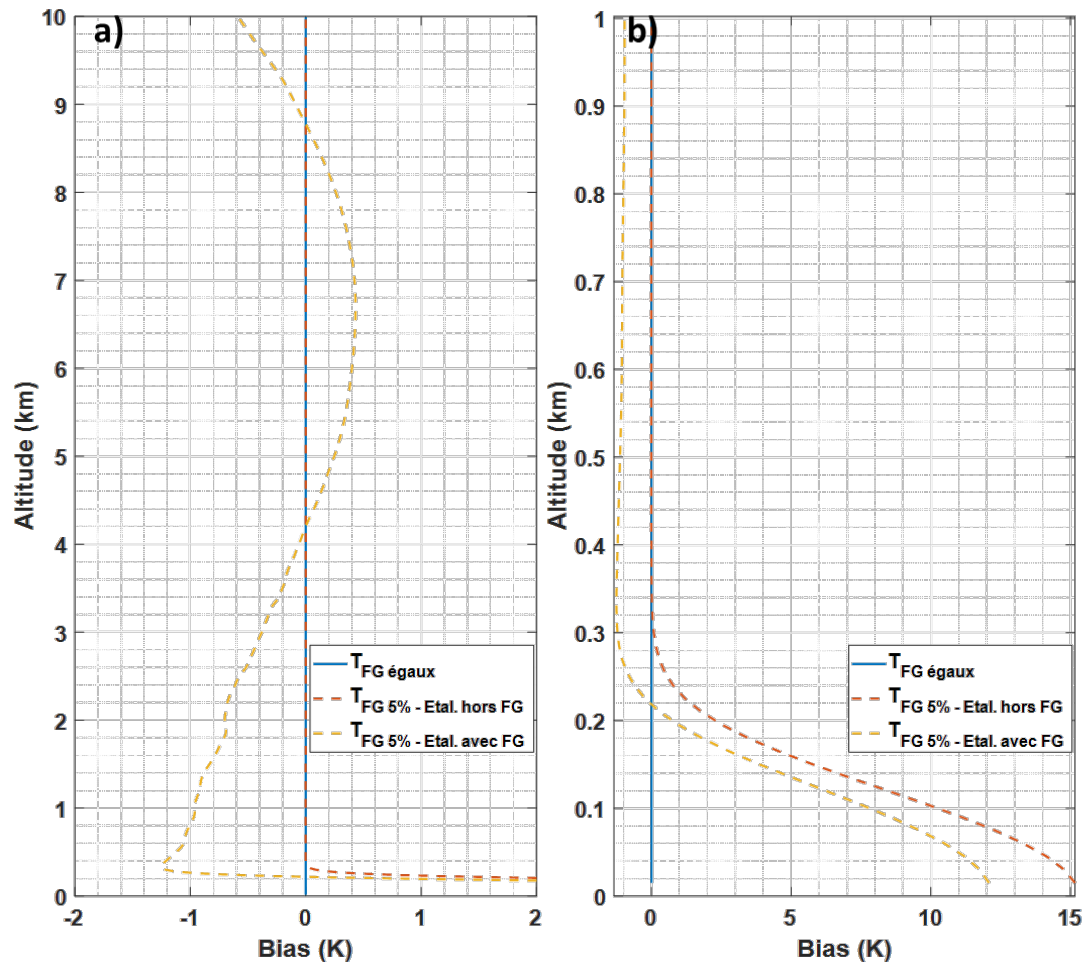


Figure 36 : Biais sur l'estimation de température par lidar pour des facteurs géométriques (FG) égaux (bleu), et avec des écarts de l'ordre de 5 %, avec prise en compte (jaune) ou non (orange) lors de l'étalonnage. En b, le profil est agrandi au niveau des couches impactées par le FG.

Le résidu de 5% d'écart entre les FG des voies RR persistant même après avoir caractérisé les FG par la procédure décrite dans le chapitre 2, en aucun cas, les couches impactées par le FG ne doivent donc être prises en compte lors de l'étalonnage du ratio  $Q$ . La courbe d'étalonnage calculée en dehors des FG peut être extrapolée aux basses couches. Une correction de rapport des facteurs géométriques des voies  $RR_1$  et  $RR_2$  peut alors être déduite des écarts des ratio  $Q$  à la courbe d'étalonnage à basse altitude. Dans tous les cas, l'erreur dans la zone du FG est importante et doit motiver l'obtention d'un recouvrement complet le plus proche possible de l'émission afin d'obtenir une estimation de la température correcte dans les plus basses couches de l'atmosphère.

### 3.3.3 Erreur aléatoire

Toutes les sources d'incertitudes discutées précédemment sont des biais pouvant être partiellement corrigés. Néanmoins, en champs proche, dans le facteur géométrique du lidar, il est parfois difficile de corriger

parfaitement les biais. Le bruit de mesure doit également être pris en compte pour évaluer les biais. Dans ce qui suit, les limites instrumentales sur l'erreur en température liée au bruit statistique de détection sont étudiées en fonction de l'altitude.

### 3.3.3.1 Ajustement sur des profils réels

Afin d'étudier les erreurs aléatoires liées aux bruits de détection, une analyse statistique de Monte-Carlo est utilisée sur le modèle de ce qui se fait dans la littérature pour les lidars (Chazette et Totems 2017; Shang et Chazette 2015).

La démarche est décrite schématiquement dans la Figure 37. La température de référence étant issue des observations, en sortie du modèle direct les signaux modélisés correspondent à une version non bruitée des signaux réels mesurés par lidar. Les signaux modélisés sont ensuite affectés d'un bruit blanc gaussien dont l'amplitude est ajustée sur des signaux réellement mesurés via une évaluation de la constante système entre les observations réelles du lidar WALI et la modélisation bruitée du signal. De nuit, on peut écrire en comptage de photons (bruit de grenaille prédominant) :

$$S_{obs} \approx S_{sim,bruité} = K_S \cdot S_{sim} + \frac{\sqrt{K_S \cdot S_{sim}}}{\text{écart-type de bruit}} \cdot B \quad (73)$$

Et pour des signaux enregistrés en conditions diurnes :

$$S_{obs} \approx S_{sim,bruité} = K_S \cdot S_{sim} + \frac{\sqrt{K_S \cdot (S_{sim} + FdC)}}{\text{écart-type de bruit}} \cdot B \quad (74)$$

avec  $S_{obs}$  le signal observé,  $S_{sim,bruité}$  le signal simulé et bruité,  $K_S$  la constante système,  $S_{sim}$  le signal modélisé moyen (non bruité),  $FdC$  le fond de ciel qui "parasite" le signal de jour et  $B$  une matrice aléatoire de bruit suivant une distribution normale. Quatre cents réalisations sont prises en compte pour chaque profil bruité en sortie du générateur gaussien schématisé en Figure 37. Un tel nombre de réalisations assure une répartition gaussienne représentative pour des calculs d'erreur à une écart type. Quatre de ces réalisations sont tracées en Figure 38 pour les deux signaux RR de jour (b et d) et de nuit (a et c).

Les niveaux de bruit utilisés dans cette étude sont liés aux observations du 17 juin 2019 effectuées à Lathuile (Cf Chapitre 5). Les résultats présentés dans ce qui suit sont donc liés aux caractéristiques du lidar pendant cette campagne de mesures. Ainsi, pour les profils présentés en Figure 38, il est à noter que l'énergie de l'émission laser est d'environ ~60mJ, en deçà des 90-100 mJ d'énergie nominale que peut atteindre le laser à 354,725 nm.

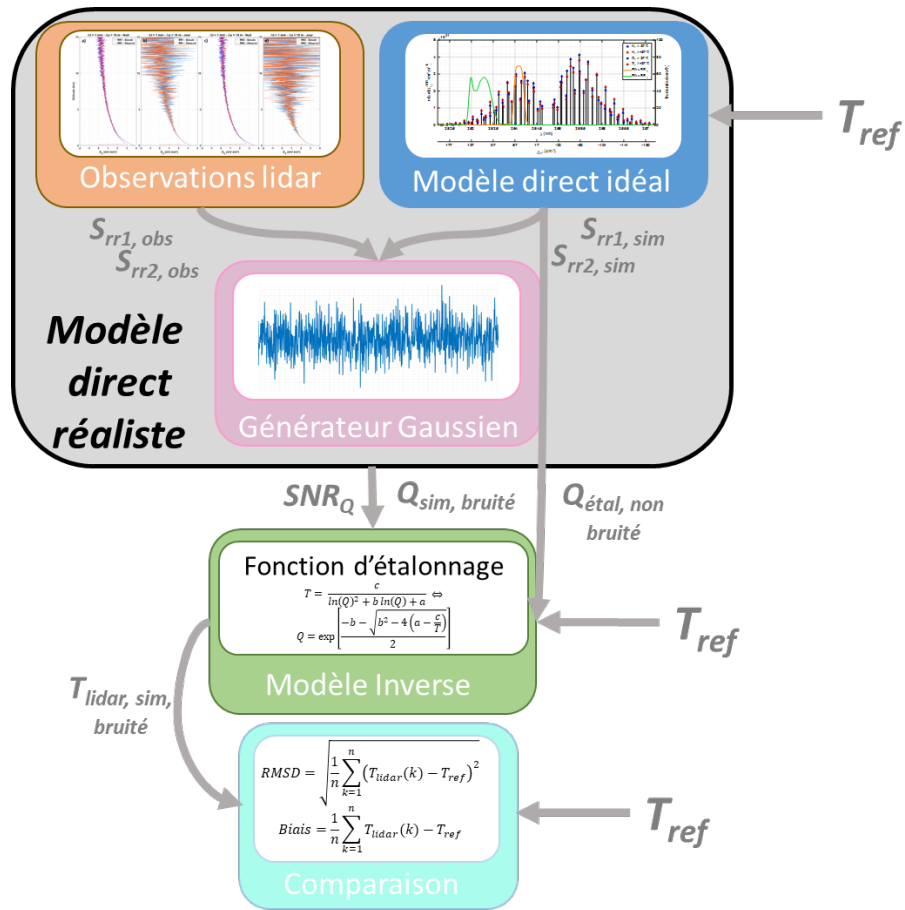


Figure 37 : Schéma en blocs du modèle direct-inverse avec l'analyse de Monte-Carlo. Pour une étude réaliste des erreurs aléatoires, des observations lidars réelles sont utilisées. L'étalonnage est supposé idéal, avec l'utilisation de signaux non bruités.

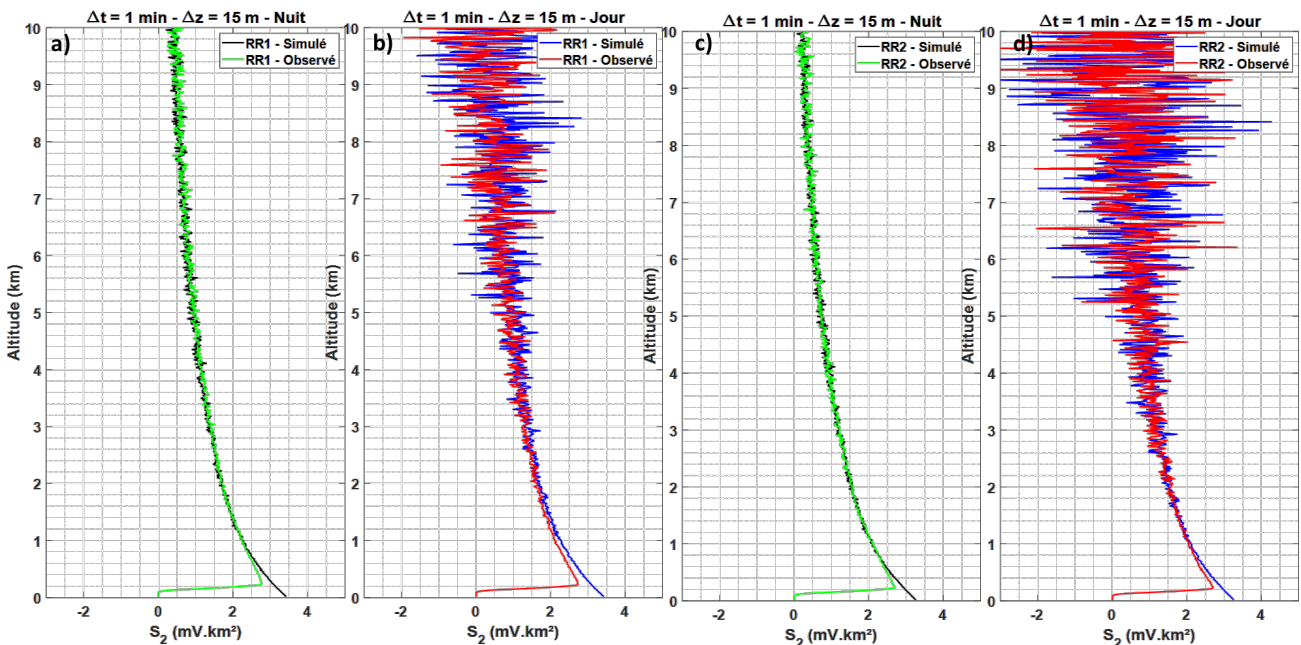


Figure 38 : Signaux  $RR_1$  (ab) et  $RR_2$  (cd) corrigés du fond de ciel et de l'angle solide, simulés numériquement et observés à Lathuille le 17 juin 2019. Les profils observés ont une résolution temporelle d'une minute (moyenne de 1000 tirs laser) et une résolution verticale de 15 m (résolution

brute divisée par 20). Une distinction est faite pour les mesures de nuit (a et c) et celle de jour (b et d) qui sont caractérisées par des niveaux de bruit significativement différents.

### 3.3.3.2 Rapport signal à bruit

Pour chacun des signaux, le rapport signal à bruit (SNR, pour « Signal-to-Noise Ratio ») peut simplement être calculé comme le rapport du signal non bruité sur l'écart-type du bruit ajusté sur les signaux observés. Par ailleurs, comme montré dans le chapitre 2, le SNR est proportionnel à la racine carrée du nombre de profils intégrés pour la mesure ( $\sqrt{p}$ ) et la racine carrée de la résolution verticale du lidar ( $\sqrt{\Delta z}$ ). On peut ainsi calculer le SNR des signaux RR<sub>1</sub> et RR<sub>2</sub> pour différentes durées d'intégration des signaux et différents lissages verticaux par la formule suivant :

$$SNR_a = SNR_b \cdot \frac{\sqrt{\Delta z_a}}{\sqrt{\Delta z_b}} \cdot \sqrt{\frac{p_a}{p_b}} \quad (75)$$

avec  $SNR_a$  et  $SNR_b$  les SNR pour un couple de résolutions verticales  $\Delta z_{a,b}$  et temporelles différentes (nombre de profils  $p_{a,b}$  moyennés).

Le SNR du ratio des voies RR<sub>2</sub> et RR<sub>1</sub>, noté  $SNR_Q$  peut se calculer comme une fonction de  $SNR_{RR1}$  et  $SNR_{RR2}$  tel que :

$$SNR_Q = \frac{1}{\sqrt{\left(\frac{1}{SNR_{RR1}}\right)^2 + \left(\frac{1}{SNR_{RR2}}\right)^2}} \quad (76)$$

Ce SNR varie très rapidement en fonction de l'altitude, avec des valeurs extrêmement élevées au plus proche de l'instrument et une décroissance en carré inverse de l'altitude.

Connaissant la loi reliant  $Q$  et  $T$  (Figure 21, courbe noire), on peut calculer de manière théorique l'erreur sur la température ( $\Delta T$ ) en fonction de l'erreur sur  $Q$  ( $\Delta Q$ ) de la manière suivante :

$$\Delta T = \left(\frac{\partial Q}{\partial T}\right)^{-1} \cdot \Delta Q \text{ avec } \Delta Q = \frac{Q}{SNR_Q} \text{ on obtient } \Delta T = \left(\frac{\partial Q}{\partial T}\right)^{-1} \cdot \frac{Q}{SNR_Q} \quad (77)$$

Sachant que  $\frac{\partial Q}{\partial T}$  (tracé en Figure 27, courbe noire pointillée) peut être estimé via la courbe d'étalonnage, il est ainsi possible de directement relier une erreur de température à un  $SNR_Q$  associé à la mesure. La Figure 39 présente ce calcul sur une plage de température de  $-80^\circ\text{C}$  à  $+40^\circ\text{C}$ .

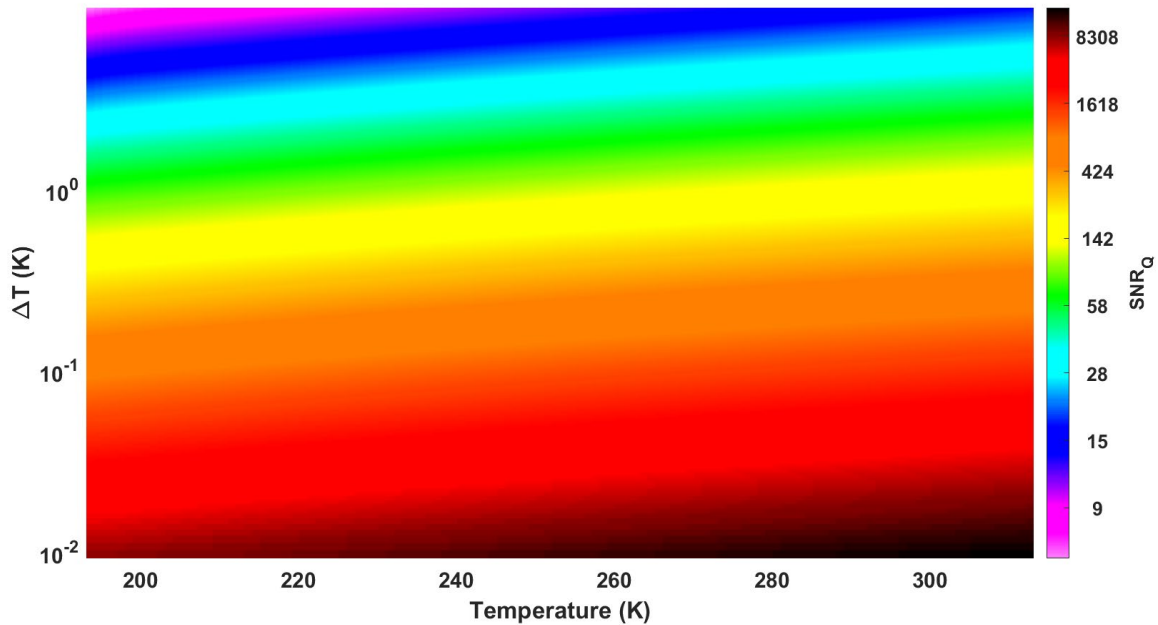


Figure 39 : Erreur théorique sur la température en fonction de la température et du  $SNR_Q$  (en couleur). Les échelles de l'axe des Y et de la barre de couleur sont logarithmique.

Pour une erreur maximale souhaitée sur la température on peut théoriquement savoir quel rapport signal à bruit il faut attendre sur le ratio Q. On notera que le  $SNR_Q$  diminue avec la température pour une erreur donnée. A 0°C, un  $SNR_Q$  de 130 est associé à une erreur de 1 K. Ces résultats sont indépendants des caractéristiques du lidar. Un lidar, selon ses spécifications, sera associé à un profil de  $SNR_Q$  puis associé à une erreur en suivant la relation présentée dans la Figure 39.

### 3.3.3.3 Erreur sur la température en fonction de l'altitude

Dans cette section, on se place dans le cas d'un étalonnage idéal. C'est-à-dire que la courbe de calibration est idéale, elle est calculée avec des profils lidar non bruités (flèche du modèle direct idéal vers le modèle inverse dans le schéma en Figure 37). En pratique le lissage des signaux et la multiplicité des profils étalons, pouvant être utilisés sur une période de mesure prolongée, permettent de se rapprocher de ce cas d'étalonnage idéalisé.

Toutes les réalisations de la simulation de Monte-Carlo sont inversées à l'aide des coefficients d'étalonnage « parfaits ». L'erreur est ensuite calculée n'est due qu'au bruit des profils et non de l'étalonnage. On utilise l'erreur quadratique moyenne (RMSD, « Root-Mean-Square Deviation ») pour la température inversée ( $T_{lidar}$ ) par rapport à la température de référence  $T_{ref}$  et pour chaque altitude à l'aide de la formule suivante :



$$RMSD = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{k=1}^n (T_{lidar}(k) - T_{ref})^2} \quad (78)$$

On obtient ainsi un profil d'erreur sur la température en fonction de l'altitude. De tels profils sont présentés en Figure 40 pour le jour (Figure 40a) et la nuit (Figure 40b) et pour différentes résolutions verticales et temporelles. Ces profils sont associés aux profils de  $SNR_Q$  discuté dans la section précédente. On remarque par exemple qu'avec un temps d'intégration de 20 minutes et une résolution de 50 m selon la verticale, le lidar WALI est capable de fournir un profil de température jusqu'à ~3 km de jour et ~8 km de nuit avec une erreur inférieure au degré Kelvin.

La Figure 41 permet de mettre en relation l'incertitude de mesure sur la température et le rapport signal à bruit dans le cas de mesures nocturnes pour lesquelles le niveau de fond de ciel est négligeable par rapport au signal utile. Les courbes sont parallèles et proches, comme attendu au vu du résultat théorique présenté à la Figure 39. On remarque qu'un  $SNR_Q$  supérieur à ~150 permet d'obtenir une erreur inférieure au degré Kelvin quelle que soit la résolution utilisée. Les valeurs de  $SNR_Q$  et d'altitude maximale atteinte pour une erreur inférieure à un degré Kelvin sont résumées dans le Tableau 6 pour le lidar WALI avec les quatre résolutions étudiées dans les Figure 40 et Figure 41.

**Tableau 6 : Altitude maximale ( $Z_{max}$ ) et rapport signal à bruit du ratio Q ( $SNR_Q$ ) pour une erreur inférieure à un degré Kelvin dans le cas du lidar WALI. Des distinctions sont faites pour les mesures diurnes et nocturnes et quatre couples de résolutions temporelles et verticales.**

Résolutions		$\Delta t = 1 \text{ min}$	$\Delta t = 20 \text{ min}$	$\Delta t = 20 \text{ min}$	$\Delta t = 60 \text{ min}$
		$\Delta z = 15 \text{ m}$	$\Delta z = 15 \text{ m}$	$\Delta z = 50 \text{ m}$	$\Delta z = 100 \text{ m}$
Jour	$Z_{max} \text{ (km)}$	1,4	2,6	3,3	4,4
	$SNR_Q$	145	187	178	203
Nuit	$Z_{max} \text{ (km)}$	4,2	7,1	8,6	10,3
	$SNR_Q$	135	115	103	120

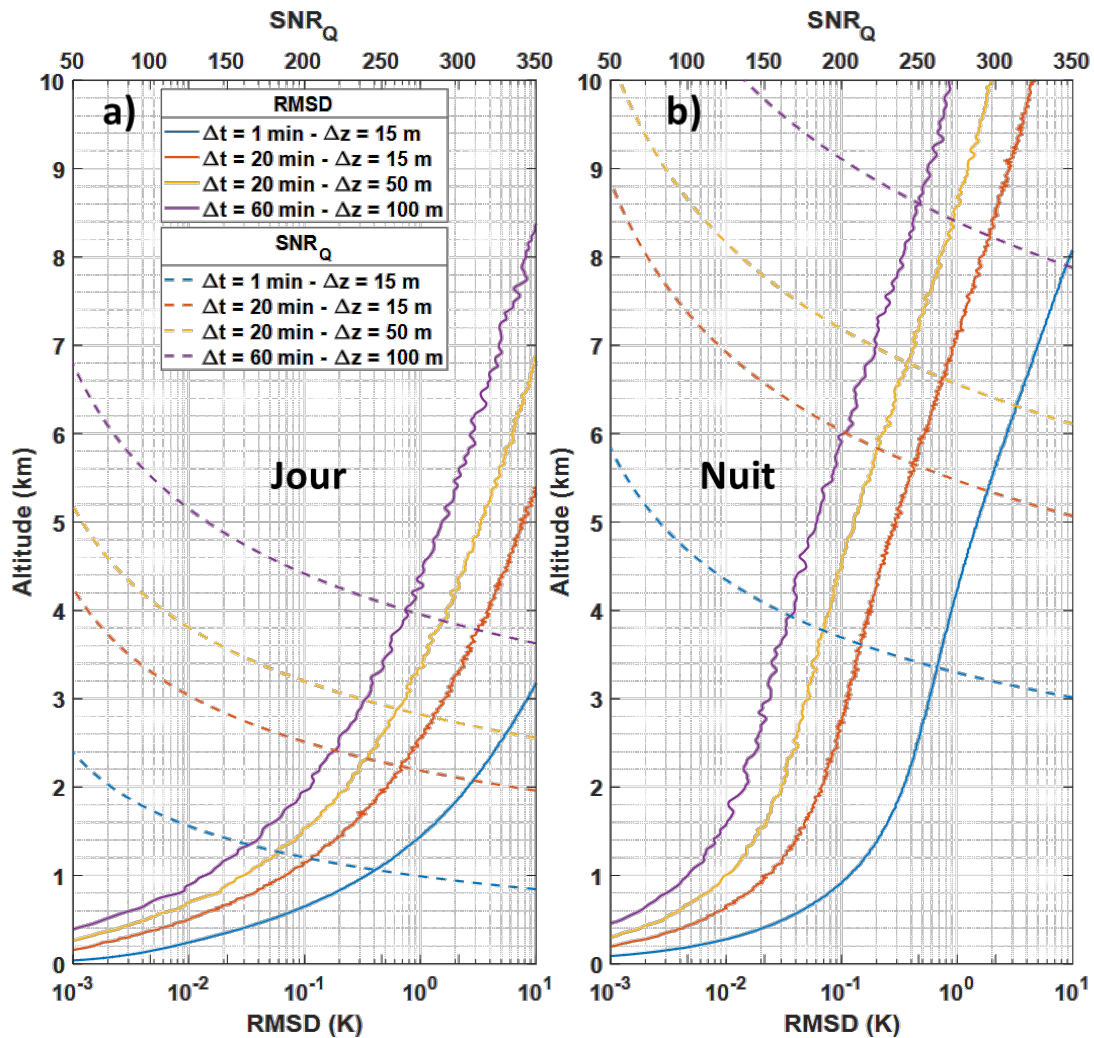


Figure 40 : Profils de  $SNR_Q$  (pointillés, axe des X linéaire en haut) et RMSD (traits pleins, axe des X logarithmique en bas) en fonction de l'altitude pour des simulations représentatives de mesures diurnes (a, jusqu'à 5 km) ou nocturnes (b, jusqu'à 10 km) du lidar WALI. Plusieurs résolutions verticales et temporelles sont tracées en couleurs et détaillées en légende.

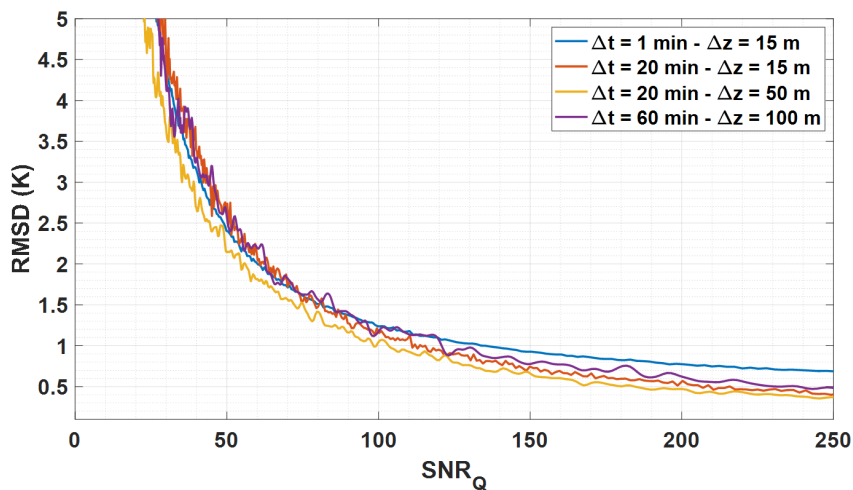


Figure 41 : Incertitude sur la température en fonction du rapport signal à bruit sur le ratio lidar Q ( $SNR_Q$ ). Quatre cas aux résolutions verticales et temporelles différentes sont présentés pour des mesures nocturnes.

### 3.3.3.4 Impact de la plage d'étalonnage

Dans cette section, l'étalonnage n'est plus supposé parfait mais calculé à l'aide de profils lidars réalistes. Pour un étalonnage avec des radiosondages, une résolution temporelle de 60 min est utilisée pour  $Q_{\text{étal}}$ , elle correspond environ au temps de montée du ballon sonde. A noter qu'en pratique la variabilité naturelle de la température dans la fenêtre temporelle d'étalonnage peut être supérieure à la variabilité induite par le bruit de détection. Si tel est le cas, il faudra réduire cette fenêtre temporelle de manière itérative jusqu'à ce que la variabilité naturelle ne soit plus une source supplémentaire d'erreur sur l'étalonnage. La résolution verticale de  $Q_{\text{étal}}$  est dégradée à 100 m pour maximiser le SNR.

Schématiquement, la méthode pour évaluer l'impact d'un étalonnage réaliste est présenté à la Figure 42.

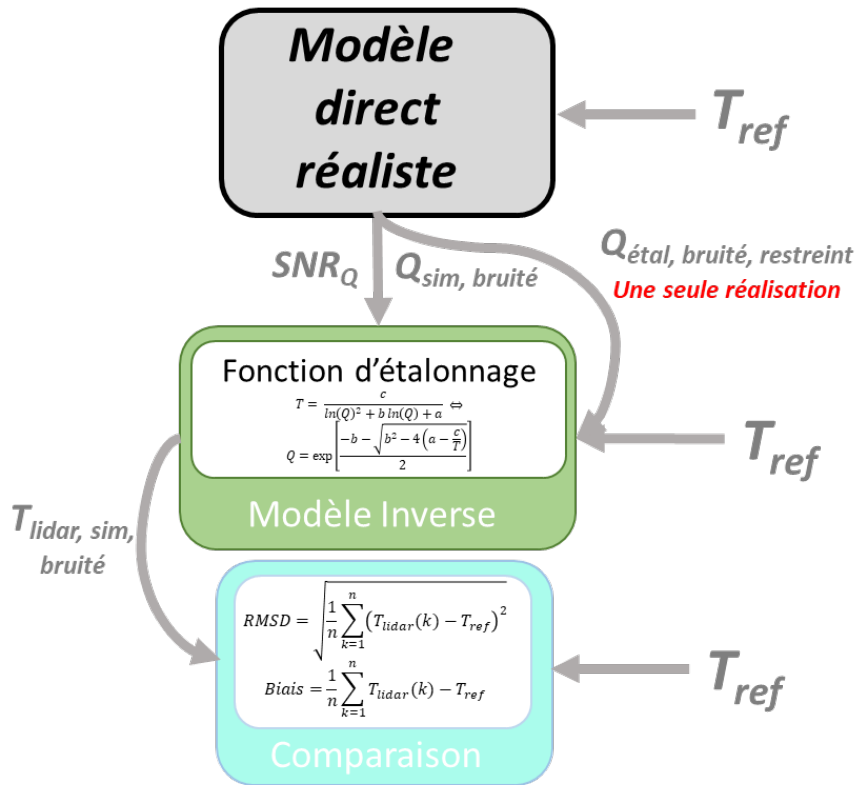


Figure 42 : Schéma en blocs du modèle direct-inverse avec l'analyse de Monte-Carlo pour un étalonnage non idéal. Une seule réalisation de la simulation de Monte-Carlo est utilisée pour étalonner. Ce schéma doit être répété k fois pour estimer le biais moyen de l'étalonnage sur k réalisations.

Pour se placer dans un cas représentatif de mesures réelles, seule une portion du profil  $Q_{\text{étal}}$  est utilisée pour étalonner. En effet, comme évoqué dans les sections 3.3.2.2 et 3.3.2.3, l'étalonnage doit se faire hors de la zone impactée par le facteur géométrique (donc au-dessus de 500 m) et selon la localisation du profil étalon utilisé, parfois seulement dans la troposphère libre (altitude qui dépend de l'heure de la journée et de la saison). Dans ces mêmes sections, on a également vu que pour des profils lidars non bruités la restriction du profil étalon n'induit que peu de biais. On peut aisément montrer, dans ce cas idéal, qu'une restriction,

même extrême, de la plage de température utilisée pour étalonner (quelques degrés Kelvin seulement) n'induit que très peu d'erreur ( $< 10^{-2}$  K) sur des inversions sur une plage plus large de température (plusieurs dizaines de degrés Kelvin, pour des profils jusqu'à  $\sim 10$  km).

En pratique, avec un étalonnage non idéal, la plage de température utilisée pour contraindre l'estimation des coefficients d'étalonnages doit être le plus large possible tout en étant limitée en bas par le facteur géométrique (ou la CLA) et en altitude par le niveau de bruit croissant. De jour, on utilise des intervalles entre 0,5 km et 5 km (Figure 43). De nuit, le même protocole est appliqué, mais pour davantage d'intervalles (jusqu'à 10 km d'altitude, Figure 44).

Le biais et l'erreur quadratique (RMSD) calculés sont associés à l'utilisation d'une réalisation  $Q_{\text{étal}}$  pour l'étalonnage. On peut recommencer ce processus avec toutes les autres réalisations de  $Q_{\text{étal}}$  (400 fois) et ainsi calculer la moyenne des biais d'étalonnage et la moyenne des erreurs quadratiques.

Le biais pour une réalisation est calculé entre les profils inversés et la température de référence pour des cas de jour et de nuit et des intervalles d'altitudes différents avec la formule suivante :

$$Biais = \frac{1}{n} \sum_{k=1}^n T_{lidar}(k) - T_{ref} \quad (79)$$

Les figures Figure 43 et Figure 44 présentent les biais et RMSD moyens attendus pour les différentes restrictions d'altitude discutées et explicitées en légende. De jour, le rapport signal à bruit ne permet pas de prendre en compte les profils au-delà de 5 km d'altitude. On remarque que l'intervalle 0,5 – 2 km occasionne le moins de biais (Figure 43a). La prise en compte de profils plus bruités en altitude engendre une réponse non-linéaire du biais à cause de la fonction d'étalonnage, ce qui se traduit par une augmentation du biais dans les basses couches pour les intervalles les plus larges. On remarque toutefois sur le profil de RMSD (Figure 43b) que l'intervalle 0,5 – 2 km n'est pas associée à la portée optimale pour une erreur inférieure à 1 K. Un compromis peut être trouvé en utilisant l'intervalle 0,5 – 3 km qui montre peu de biais et une RMSD inférieure à 1 K jusqu'à  $\sim 3,3$  km. C'est cet intervalle qui sera donc retenu pour calculer la portée du lidar WALI pour des mesures de jour.

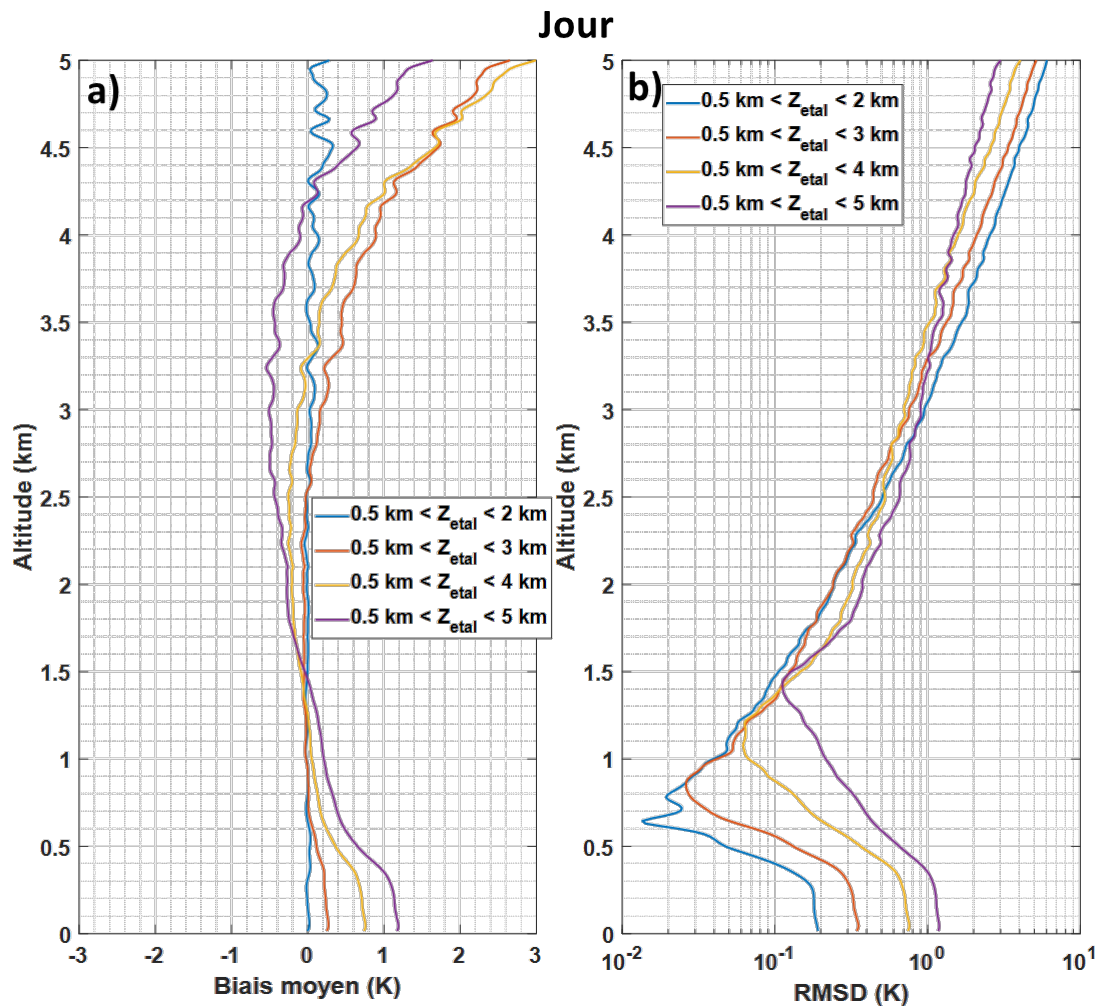


Figure 43 : Biais moyen (a) et erreur quadratique (RMSD) moyenne (b) liés à l'étalonnage sur l'estimation de la température par lidar en fonction de l'intervalle d'altitude choisi pour des mesures diurnes. Les intervalles de température correspondant aux altitudes sont croissants, de quelques degrés (minimum  $\sim 5$  K) jusque plusieurs dizaines de degrés Kelvin (maximum  $\sim 20$  K).

Pour des mesures nocturnes, la Figure 44a montre des biais plus importants en altitude pour les intervalles très restreints (0,5 – 2 km et 0,5 – 3 km). On note aussi malgré cela un biais élevé pour l'intervalle 0,5 – 10 km, dû à l'impact du niveau de bruit plus important en altitude. Cet effet est d'autant plus visible sur la Figure 44b où l'on remarque que les intervalles les plus larges, prenant en compte des portions plus bruitées des profils, sont associés à une erreur plus importante dans les basses couches. Cet effet de la fonction d'étalonnage conduit à privilégier un intervalle ni trop restreint ni trop large pour les mesure de nuit. L'intervalle 0,5 – 6 km offrant une erreur inférieure au dixième de degré Kelvin dans les premiers kilomètres et une portée de l'ordre de  $\sim 8,5$  km pour une erreur inférieure à 1K, c'est l'intervalle qui est choisi pour un étalonnage de nuit du WALI.

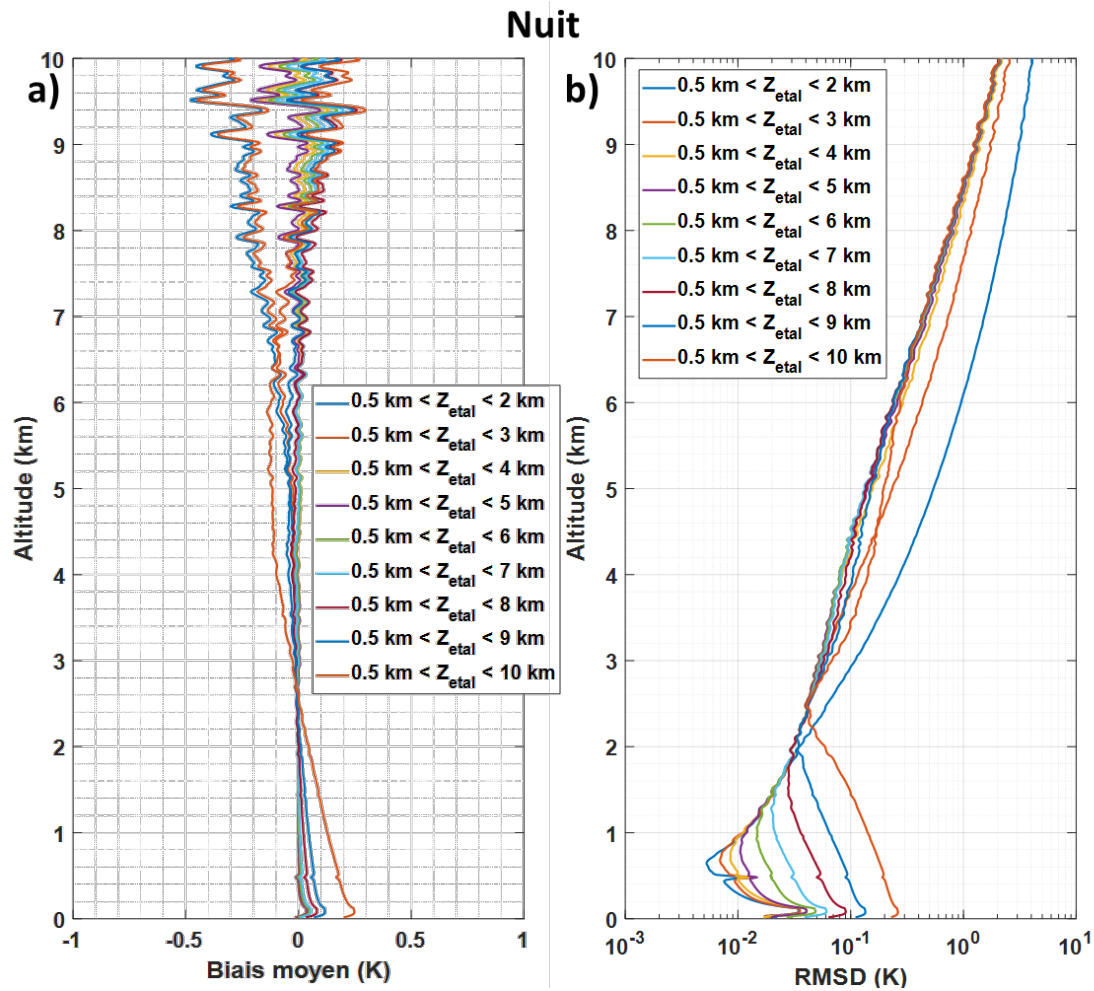


Figure 44 : Biais moyen (a) et erreur quadratique (RMSD) moyenne (b) liés à l'étalonnage sur l'estimation de la température par lidar en fonction de l'intervalle d'altitude choisi pour des mesures nocturnes. Les intervalles de température correspondant aux altitudes sont croissants, de quelques degrés (minimum  $\sim 5$  K) jusque plusieurs dizaines de degrés Kelvin (maximum  $\sim 60$  K).

Ayant validé des intervalles d'étalonnage optimaux pour des mesures de jour comme de nuit, il convient de réévaluer la portée du lidar dans ces conditions d'étalonnage non-idéales. Pour cela, les courbes de RMSD présentées à la Figure 40 sont recalculées en considérant les étalonnages avec des données réalistes. Le profil de  $Q_{\text{etal}}$  utilisé pour estimer les coefficients d'étalonnage et, lui, toujours associé à une résolution temporelle de 60 min et verticale de 100 m. Les données inversées à l'aide de ces coefficients sont quant à elles associées à des résolutions plus fines présentées dans la Figure 45.

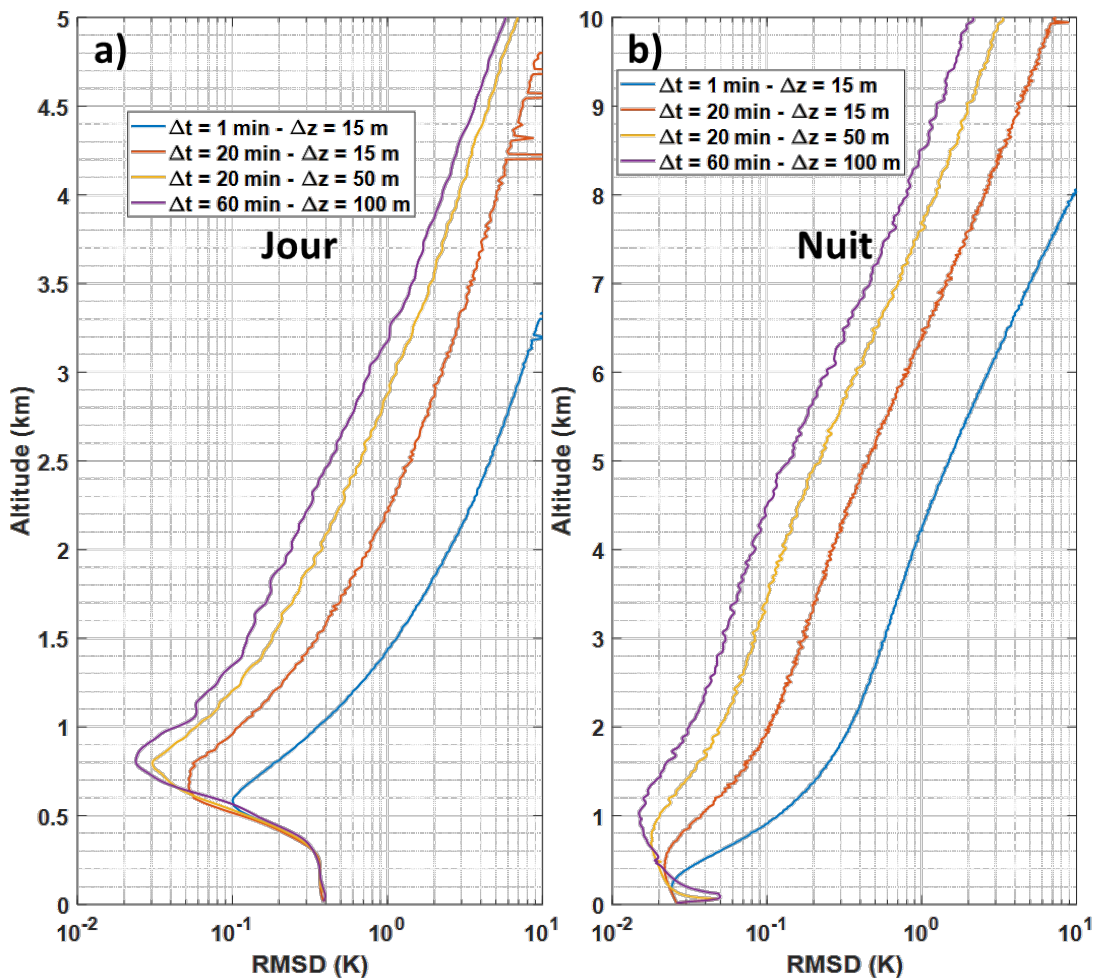


Figure 45 : RMSD (axe des X logarithmique en bas) en fonction de l'altitude pour des simulations représentatives de mesures diurnes (a, jusqu'à 5 km) ou nocturnes (b, jusqu'à 10 km) du lidar WALI. Plusieurs résolutions verticales et temporelles sont tracées en couleurs et détaillées en légende.

On remarque sur ces courbes que l'erreur dans les premiers kilomètres associée à un étalonnage de jour est de l'ordre de 0,2 K. On préfère donc toujours un étalonnage effectué sur des mesures de nuit quand la disponibilité des mesures colocalisées de température d'étalonnage le permet (radiosondages disponibles de jour et de nuit, vol ULM instrumentés seulement disponibles en journée). La portée du lidar WALI associée à un étalonnage réaliste est un peu plus faible que dans le cas de l'étalonnage idéal. En particulier, on retrouve pour une erreur de moins de 1 K, une portée de ~2,8 km (contre ~3,5 km) de jour et de ~7,7 km (contre ~8,5 km) de nuit, toutes deux associées à des résolutions de 20 min et 50 m. Ces résultats sur la portée du lidar WALI sont intrinsèquement liés au niveau de bruit utilisé en entrée du modèle direct-inverse (Figure 38). Ce niveau de bruit peut être amené à varier en fonction de l'énergie émise par le laser.

### 3.4 Conclusion

Dans ce chapitre, l'approche permettant la mesure de température par lidar Raman rotationnel a été présentée. L'équation du lidar Raman rotationnel (RR) et les sections efficaces RR associées à chacun des filtres utilisés par le WALI ont été détaillées. Ces bases théoriques ont permis l'élaboration d'un simulateur instrumental "end-to-end" utilisable pour le lidar WALI qui met en évidence les effets du positionnement des filtres interférentiels des voies d'acquisition  $RR_1$  et  $RR_2$ . Par modélisation directe-inverse, les différentes sources de biais susceptibles d'affecter la mesure de température ont été étudiées. Il est acquis que la partie du signal impactée par le facteur géométrique (même corrigé) ne doit pas être utilisée dans la recherche des coefficients d'étalonnage à cause d'une trop grande incertitude résultante sur la température ( $> 1$  K). Une restriction de l'étalonnage hors de la CLA peut également être nécessaire selon la localisation du profil de température étalon. Ces prérequis sont aisément atteints de nuit étant donné la faible erreur engendrée par l'extrapolation des coefficients d'étalonnage à une plage significativement plus étendue de température. Une zone d'étalonnage optimale se situe alors entre 0,5 km et 6 – 7 km pour des profils moyennés une heure et avec une résolution verticale de 100 m. De jour, l'importance d'un recouvrement bas sera d'autant plus important que le SNR chute très rapidement en altitude à cause du fond de ciel. Une zone appropriée à l'étalonnage se situe entre 0,5 km et 3 km. L'estimation des coefficients d'étalonnage sera toujours préférablement effectuée à l'aide de mesures de nuit. Lors de campagnes de mesures, les vols de capteurs *in situ* par ULM ou drone permettent d'obtenir des profils des températures d'étalonnages hautement colocalisés avec le lidar. Ils ne peuvent néanmoins que s'opérer de jour pour des questions de sécurité aérienne. Les effets thermiques qui peuvent s'observer par les différences de coefficients d'étalonnage de jour ou de nuit peuvent être lissés par un asservissement très précis de la température dans l'enceinte d'utilisation du lidar. Par ailleurs, la durabilité d'un étalonnage dans le temps avant que la dérive observée ne soit trop importante (1 K) doit encore faire l'objet de recherches. Les premiers résultats tendent vers une stabilité de l'étalonnage de l'ordre du mois mais sont fortement soumises au contexte dans lequel les mesures sont effectuées (stabilité en température de l'enceinte du lidar, énergie d'émission du laser constante, propreté des optiques).

L'ajustement du bruit de mesure sur des profils observés a également permis d'obtenir un bilan de liaison réaliste du WALI par une méthode de Monte-Carlo. Dans le cas où la multitude des profils d'étalonnages disponibles permet de se rapprocher des conditions d'un étalonnage idéal, la portée du lidar pour une erreur de moins de 1 K est estimée à plus de 8,5 km pour des mesures nocturnes et à plus de 3,5 km pour des



mesures diurnes, avec des résolutions de 20 min et 50 m. Pour des conditions d'étalonnage non-idéales, cette portée est diminuée d'un peu plus de ~600 m à 7,7 km et 2,8 km respectivement de nuit et de jour. De telles caractéristiques permettent d'échantillonner la basse troposphère de manière continue avec une résolution permettant l'étude de processus atmosphériques de fine échelle. Les niveaux d'erreurs associés aux résolutions présentées dans ce chapitre correspondent aux objectifs de « ruptures » publiés par l'OMM (WMO 2018) pour les besoins de modélisation et en particulier de prévision météorologique.

# Chapitre 4 : Mesure de température lors d'une situation météorologique extrême

<b>4.1 INTRODUCTION</b> .....	<b>104</b>
<b>4.2 ARTICLE : LIDAR GROUND-BASED AND IASI SPACEBORNE TEMPERATURE SAMPLING OF THE COLD WAVE OF FEBRUARY 2018 - LINK TO MESOSCALE MODELLING</b> .....	<b>105</b>
1 INTRODUCTION.....	106
2 THE 2018 COLD WAVE IN FRANCE AND HISTORICAL CONTEXT .....	109
2.1 <i>Past cold waves in France</i> .....	109
2.2 <i>Origin of the late February 2018 cold wave</i> .....	110
3 LIDAR SYSTEM DESCRIPTION, CALIBRATION, AND OBSERVATION.....	112
3.1 <i>Rotational Raman channels characteristics</i> .....	112
3.2 <i>Temperature calibration</i> .....	113
4 CROSS-COMPARISONS BETWEEN GROUND-BASED LIDAR AND IASI-DERIVED OPERATIONAL PRODUCT OF TEMPERATURE.....	117
4.1 <i>Profile-to-profile comparison</i> .....	118
4.2 <i>Statistical consideration</i> .....	120
5 CONSISTENCY BETWEEN LIDAR AND OPERATIONAL MODELLING OUTPUTS.....	122
5.1 <i>Description of the model products</i> .....	122
5.2 <i>Quantified coherence of the model outputs</i> .....	123
6 CONCLUSION AND DISCUSSION.....	127
APPENDIX A: TIME-SERIES OF STATISTICAL INDICATORS BETWEEN LIDAR TEMPERATURE RETRIEVALS AND FORECAST OPERATIONAL PRODUCTS .....	128
<b>4.3 CONCLUSION</b> .....	<b>131</b>

## 4.1 Introduction

Le chapitre précédent a permis d'établir le potentiel du lidar WALI pour la mesure de température via une approche par modélisation directe-inverse de l'instrument. Dans ce quatrième chapitre, ce potentiel est mis à profit avec des mesures sur l'atmosphère conduites lors d'un évènement de froid intense présentant des températures au sol inférieures à  $-9^{\circ}\text{C}$ . Ces observations ont été effectuées durant la dernière semaine de février 2018 où un très fort contraste de température a été observé dans la basse troposphère. Cette période a été marquée par l'arrivée d'une vague de froid tardive ayant déferlé depuis les steppes sibériennes jusqu'en Europe de l'Ouest. Elle a fait suite à un temps relativement doux avec la remontée d'air d'origine méditerranéenne. A l'instar des vagues de chaleur estivales, les vagues de froid sont des évènements météorologiques que l'on peut qualifier d'extrêmes tant les températures qui y sont associées sont éloignées des normales saisonnières, entraînant des impacts sociétaux importants.

Les données acquises en février 2018 par le lidar WALI ont été étalonnées en température via les radiosondages effectués depuis la station Météo-France de Trappes. Ces mesures mettent en évidence un champ de température très perturbé qui représente un « cas d'école » pour effectuer des inter-comparaisons entre les mesures lidar et d'autres approches opérationnelles de restitution des champs de température. Dans ce travail, je me suis principalement intéressé au spectro-radiomètre IASI (Interféromètre atmosphérique de sondage dans l'infrarouge) embarqué sur les satellites MetOp (Météorologie Opérationnelle). Le produit opérationnel IASI fournit les profils de température en utilisant un échantillonnage vertical contraint par différentes fonctions de poids associées à des bande spectrales infrarouge optimisées (Schlüssel et al. 2005). A la différence de la mesure lidar, la résolution verticale est plus faible, de l'ordre du kilomètre dans la troposphère. Le second type de données que j'ai considéré est issu des sorties du modèle de prévision météorologique à méso-échelle AROME (Application de la Recherche à l'Opérationnel à Méso-Echelle) et du modèle du Centre Européen des Prévisions Météorologiques (ECMWF, « European Centre for Medium-Range Weather Forecasts ») de 5<sup>ème</sup> génération (ERA5). Ces deux modèles sont utilisés de manière opérationnelle pour la prévision du temps, le premier par Météo-France et le second par la communauté européenne. Tous deux utilisent les données IASI dans leur approche d'assimilation variationnelle ; il n'y a donc pas une totale indépendance entre les différents jeux de données. Néanmoins, la modélisation permet des inter-comparaisons continues dans le temps à la différence de l'observation IASI qui est quant à elle plus directe.

La littérature scientifique est peu fournie sur ce type d'exercice d'inter-comparaison. Il y a surtout des exercices de comparaison effectués à partir de radiosondages, qui sont eux-mêmes assimilés dans les modèles (par exemple, Divakarla et al., 2006; Kwon et al., 2012; Lanzante et al., 2003). On notera néanmoins, un exercice d'assimilation effectué tout récemment dans la cadre d'HyMeX (Hydrological cycle in the Mediterranean experiment) qui met en évidence l'intérêt de différents jeux de données pour l'assimilation de la mesure lidar Raman de la vapeur d'eau (Fourrié et al. 2019). Des exercices comparables pour la température n'ont pas encore été effectués par lidar à ma connaissance, mais ce travail sur la vapeur d'eau, qui n'est en rien décorrélié du champ de température dans l'atmosphère, est prometteur. On voit donc là tout l'intérêt de conduire des travaux d'inter-comparaison sur le champ de température entre l'observation lidar et la modélisation, en passant par les mesures satellite assimilées de manière opérationnelle dans les modèles de prévision du temps. Ces inter-comparaisons sont la prémisse à des travaux futurs d'assimilation opérationnelle de la mesure de température par lidar.

Les résultats sur la complémentarité du lidar avec les mesures issues des plateformes spatiales et la cohérence des champs de températures des modèles de prévisions ont donc motivé l'écriture d'un article soumis à une revue à comité de lecture. Cet article proposé pour publication au Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society (QJRMS) est présenté dans la section suivante.

## 4.2 Article : Lidar ground-based and IASI spaceborne temperature sampling of the cold wave of February 2018 - Link to mesoscale modelling

### **Lidar ground-based and IASI spaceborne temperature sampling of the cold wave of February 2018 - Link to mesoscale modelling**

Alexandre Baron, Patrick Chazette, and Julien Totems

Université Paris-Saclay, CNRS, CEA, UVSQ, Laboratoire des sciences du climat et de l'environnement, 91191, Gif-sur-Yvette, France.

*Correspondence to:* Alexandre Baron ([alexandre.baron@lsce.ipsl.fr](mailto:alexandre.baron@lsce.ipsl.fr))

**Abstract.** A cold wave was sampled using a temperature-sensing rotational Raman lidar during the last days of February 2018 in Gif-sur-Yvette, 20 km south of Paris. The onset of the cold wave was sudden and led to strong temperature contrasts in the lower troposphere: a warm air mass arrived on 23 February from

the Mediterranean region first produced a strong temperature inversion ( $\sim 10$  °C / 200 m) on 24 February at the top of the planetary boundary layer (PBL). It was followed by a cold spell (a drop of 12 °C over 12 hours) from Siberia starting on 26 February that was experienced throughout Western Europe. After the calibration performed using closest radiosounding profiles, the lidar-derived vertical profiles of temperature show an uncertainty of 1 °C within both the PBL and the lower/middle free troposphere ( $\sim 3$  / 6 km for day / night), with a vertical resolution starting from 15 m at ground and evolving with altitude, and a temporal resolution of 20 minutes. The continuous sampling between 21 and 27 February allows a comparison exercise between the lidar dataset and i) the level 2 temperature product of the IASI instrument, as well as ii) forecasts by the ERA5 and AROME weather models and iii) ERA5 reanalyses. For this study, the centred root-mean-squared error (RMSE), the Pearson correlation coefficient (COR) and the mean bias (MB) are used. Comparisons with IASI show a good agreement in the lower and middle free troposphere (COR = 0.84, MB = 0.15 K, centred RMSE = 1.9 K), whereas significant discrepancies are highlighted within the PBL (COR = 0.71, MB = 2.4 K, centred RMSE = 2.0 K). The comparisons with ERA5 and AROME forecasts highlight a particularly good concordance for every forecast step (COR  $\sim$  0.95), despite some differences around the top of the PBL.

**Keywords.** Lidar, IASI, AROME, ERA5, cold wave

## 1 Introduction

The westerlies prevailing in the European mid-latitude troposphere, associated with the thermal inertia of the North Atlantic Ocean, make the western European climate mild in winter (Seager et al. 2002). Occasionally, when the winter usual circulation regime is disturbed by atmospheric blocking (Buehler, Raible, et Stocker 2011; Masato, Hoskins, et Woollings 2012; Lehmann et Coumou 2015), colder air masses coming from the east or even continental Russia and Siberia surge over Central and Western Europe, as observed in Italy (Macchiato et al. 1993), Greece (Pappas, Hatzianastassiou, et Katsoulis 2004) as well as the United Kingdom (Prior et Kendon 2011) over time. These cold air masses incursions have repercussions on plant phenology (Menzel, Seifert, et Estrella 2011), human health (Laaidi et al. 2013) and even human mortality (Lowe et al. 2015). To prepare society for these consequences, the underlying levers at the origin of these events are still subject to active research. In particular, the role of sea-ice around the Arctic is studied (Petoukhov et Semenov 2010; Yang et Christensen 2012; Hanna et al. 2015), as well as the stratosphere-troposphere coupling (Tomassini et al. 2012) and the relationship with sudden stratospheric warming (Marshall et Scaife 2010). Studies on the impact of sea-surface temperature and the North Atlantic

oscillation (NAO, Hurrell et al., 2003) are also conducted (Buchan et al. 2014; O'Reilly, Minobe, et Kuwano-Yoshida 2015; F. Hansen et al. 2017). The evolution of cold waves (CWs) in a warming climate are also investigated (De Vries, Haarsma, et Hazeleger 2012), and for example, Cattiaux et al. (2010) and Parey and Hoang (2016) show a decreasing trend in France, both in frequency and in strength.

The comprehension and forecast of extreme meteorological events therefore require powerful means of atmospheric observation, especially for the thermodynamic temperature. The observational requirements are established by the WMO (World Meteorological Organization 1996) and although these observations rely heavily on passive remote sensing techniques, active remote sensing allows better vertical and temporal resolution.

Temperature measurements using lidar constitute powerful candidates for breakthrough WMO requirements. They can be performed in the upper atmosphere simply by using the integration technique on the elastic backscatter signal, where only molecular scattering occurs (Hauchecorne et Chanin 1980). As the latter technique suffers from the presence of aerosol in the low/middle troposphere, the method privileged nowadays to retrieve the tropospheric temperature relies on the rotational Raman (RR) scattering of the most abundant atmospheric molecules. RR lidar, first proposed by Cooney (1972), uses the temperature dependence of the anti-Stokes branch of the RR spectra of O<sub>2</sub> and N<sub>2</sub>. Since then, noteworthy works have been conducted following technological advances to improve RR lidar systems capabilities and obtain a pure RR (PRR) backscatter clear from elastic scattering contamination (Penney et al., 1974; Arshinov et al., 1983; Nedeljkovic et al., 1993; Vaughan et al., 1993). Among notable advances, the design of interference filters (Hammann et Behrendt 2015) is instrumental for the PRR technique. The filters fineness is critical both to sufficiently reject the laser wavelength thus preventing signal contamination by elastic scattering (Di Girolamo et al. 2004; Mattis et al. 2002) and to perform temperature measurements in daylight (Radlach, Behrendt, et Wulfmeyer 2008; Y. Arshinov et al. 2005).

Outstanding state-of-the-art PRR lidars are described in the literature. In Switzerland, Balin et al. (2004) present the observations from a PRR lidar at the Jungfraujoch alpine station, with which measurements of relative humidity have been achieved combining PRR measurements of temperature with simultaneous water vapour mixing ratio measurements from a vibrational Raman channel. Nowadays, the Raman Lidar for Meteorological Observation (RALMO) at the Payerne EARLINET station is capable of providing continuous measurements of meteorological variables (Diniev et al. 2013; Mahagammulla Gamage et al. 2019) and allows joint studies of the coupled cycles of aerosols and water vapour (Navas Guzmán et al. 2019). In Germany, PRR lidars have been developed since the beginning of the 2000s (Behrendt et

Reichardt 2000; Behrendt, Nakamura, et Tsuda 2004), with a focus on meteorological and turbulent processes. Aiming to describe mechanisms inherent to the PBL dynamics, the high temporal resolution and low altitude temperature measurements (Hammann et al. 2015) of these lidars were used to investigate the moments of turbulent temperature fluctuations as in Behrendt et al. (2015), or the strength of the inversion layer (Lange, Behrendt, et Wulfmeyer 2019). The assimilation of lidar-derived temperature profiles in WRF is also to be noted (Adam et al. 2016). In Italy, the BASIL lidar developed by Di Girolamo et al. (2017) has prominently been applied to meteorological monitoring within the framework of the Hydrological cycle in the Mediterranean eXperiment (HyMeX), especially to water vapour mixing ratio and/or temperature inter-comparisons (Summa et al., 2018; Di Girolamo et al., 2020).

Benefiting from these studies, a PRR channel operating in the UV has been developed to equip the former Water vapour and Aerosol LIdar (Chazette, Marnas, et Totems 2014), renamed Weather and Aerosol LIdar (WALI). As discussed by Di Girolamo et al. (2004), the use of the 355 nm wavelength makes the system less sensitive to the visible sky background during daytime measurements while being also eye-safe a few meters away from the laser emission. The main purpose of the WALI system is to offer a versatile tool, compact and easily transportable on-board the Mobile Atmospheric Station (MAS, e.g. Chazette, 2016), devoted to aerosol and meteorological measurements during instrumental field campaigns (e.g. Totems et al., 2019).

The present study aims to present the potential of PRR lidar to follow the rapid temperature variation during a cold wave event occurring over western Europe in the low free troposphere. We then study the coherence of this dataset with i) temperature retrievals from passive spaceborne measurements, and ii) modelling before and during this extreme winter weather event. These goals are achieved through the first measurements of atmospheric temperature by the PRR lidar system developed at the Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) during a dedicated measurement campaign which took place in late February 2018 for approximately six full days (from 21 to 27 February). This short but dense dataset gives the opportunity to compare PRR lidar temperature to the level 2 products of the meteorological space platforms MetOp (Meteorological Operational) - A & B carrying the infrared atmospheric sounding interferometer (IASI, Pougatchev et al., 2009). It is also the opportunity to check the statistical coherence with lidar measurements of operational modelling, which themselves assimilate IASI radiances mainly within the free troposphere. Hence, we consider products of two mesoscale models: The Application de la Recherche à l'Opérationnel à Méso-Echelle (AROME) forecast output, and the European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF) of 5<sup>th</sup> generation (ERA5) forecast

output. We also study the improvement in terms of temperature following the reanalysis process via the ERA5 reanalysis product, as previously performed for atmospheric water vapour by Chazette et al. (2016a). The paper is structured as follows. Section 2 first discusses CWs occurrence in Europe and in France, based on historical data from Météo-France ground-based meteorological stations. The synoptic weather situation during the lidar measurements in February 2018 is also presented, supported by backward trajectory calculation for the cold air mass. In section 3, the characteristics of the new WALI PPR channel are described, with its calibration against radiosondes and the associated error budget. The lidar observations and the results of inter-comparisons with IASI are presented in section 4. In section 5, the coherence of Numerical Weather Prediction (NWP) model forecasts and reanalysis with respect to lidar data is studied. Finally, we conclude in section 6 by summarizing the results.

## 2 The 2018 cold wave in France and historical context

### 2.1 Past cold waves in France

The event of February 2018 presented in this paper lasted three winter days (26/02 to 28/02). To set this event in the wider context of CWs in France, an analysis of daily temperature data gathered by 41 Météo-France meteorological stations spatially distributed over continental France is performed. To extract the CWs in the 1950-2019 period from this dataset, the spatial average over the stations is computed and the result is only kept if 80% of the stations were operational at the same time. The dataset is reduced to the winter season (December-January-February) and the seasonal standard  $T_{ST}$  is computed between 1981 and 2010 accordingly to the indicator defined by Météo-France ([www.meteofrance.fr/prevoir-le-temps/meteo-et-sante/grands-froids#](http://www.meteofrance.fr/prevoir-le-temps/meteo-et-sante/grands-froids#)). The results are presented in Figure 46: the selected CWs include at least a 3-days period with temperature below  $T_{ST} - \sigma_{ST}$ , where  $\sigma_{ST}$  is the standard deviation (STD) of the winter temperature standard  $T_{ST}$ .



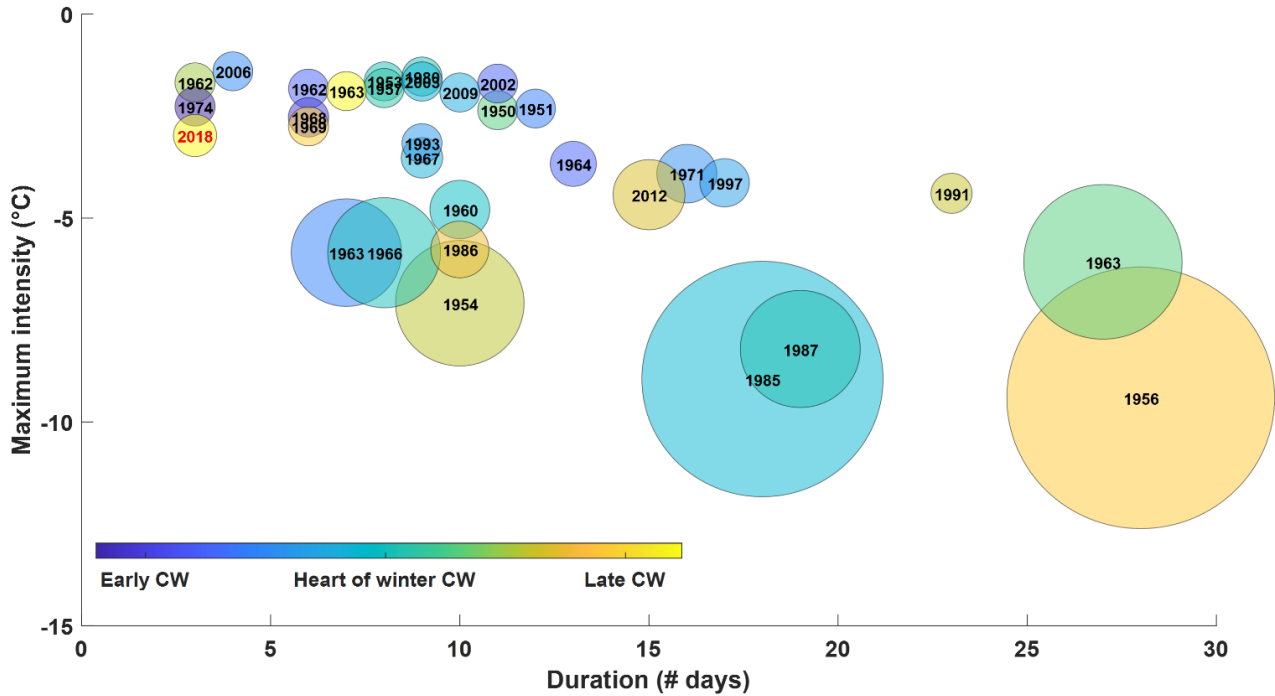


Figure 46: Cold wave (CW) occurrence in France from 1950 to 2019. The maximum intensity (Y-axis) is the France-averaged temperature of the coldest day of each CW. The colour indicates the early or late onset of the CW (i.e. blue for December and yellow for February). The size of the disk indicates the severity of the CW, computed as a function of its duration, maximum intensity and mean temperature. The year  $n$  in black font centred in each disk relates to the winter of years  $(n-1)/n$ .

From this diagram, the historical cold winters that occurred in France since 1950 stand out clearly. The winter of 1963 was the coldest recorded on this period but remarkable CWs occurred in 1954, 1956, 1985, 1987 and more recently in 2012. The CW of 2018 which is discussed in this paper is not one of the strongest events, nonetheless it occurred extremely late in February. Such a late event is not frequent as only two CWs started after 20 February, in 1963 and 2018, and can have larger societal impacts in particular in agriculture (Planchon et al. 2015) or by triggering harmful particulate pollution episodes in urban areas (Baron, Chazette, et Totems 2020). In the future, CWs are expected to be less frequent and less harsh in Western Europe and in particular in France (Cattiaux et al. 2010; Parey et Hoang 2016).

## 2.2 Origin of the late February 2018 cold wave

Although the 2018 event is mild compared to historically significant CWs in France, its origin does not differ from common cases. The following discussion on the synoptic weather pattern before and during the CW relies on the ERA5 reanalysis product (ECMWF 2017) available via the Climate Change Service of Copernicus (CDS, <https://cds.climate.copernicus.eu/#!/home>). These model outputs show the establishment of a low-high dipole above the Arctic from 21 to 23 February. During the 3-days period from 23 to 25 February, the high strengthens and stretches from northern France to the Kara Sea with an oval

shape centred south-east of the Svalbard Islands. On 26 February, the situation evolves toward an omega-type blocking pattern, schematically represented in Figure 47, where the strong high is surrounded by two lows, one above the Azores Islands and another one above the Balkans. This blocking system leads to a corridor during its settlement, informally called “Moscow-Paris”, through which Siberian air masses are pulled south-westward. In Figure 47, the results from a simulation conducted with the Lagrangian model HYSPLIT (Stein et al. 2015) clearly show the path followed by cold polar and sub-polar air masses surging above Europe. The simulations are initialised with GDAS archive data at  $0.5^\circ$  of horizontal resolution and are performed in backward ensemble mode with the arrival point set at the lidar location ( $48.711^\circ\text{N}$ ,  $2.149^\circ\text{E}$ ) every 250 m from 1250 m to 2750 m of altitude with start-times every 6 hr from 26 February 0000 UTC to 1 March 0000 UTC. The compilation of all the computed trajectories clearly shows the cold wave passing through the omega block. During the night from 25 to 26 February, the temperature at 2 km AMSL drastically decreases by  $12^\circ\text{C}$  in 12 hours and the upward thermic gradient in the first hundreds of meters of the atmosphere on 26 February at noon is around  $-10^\circ\text{C km}^{-1}$ .

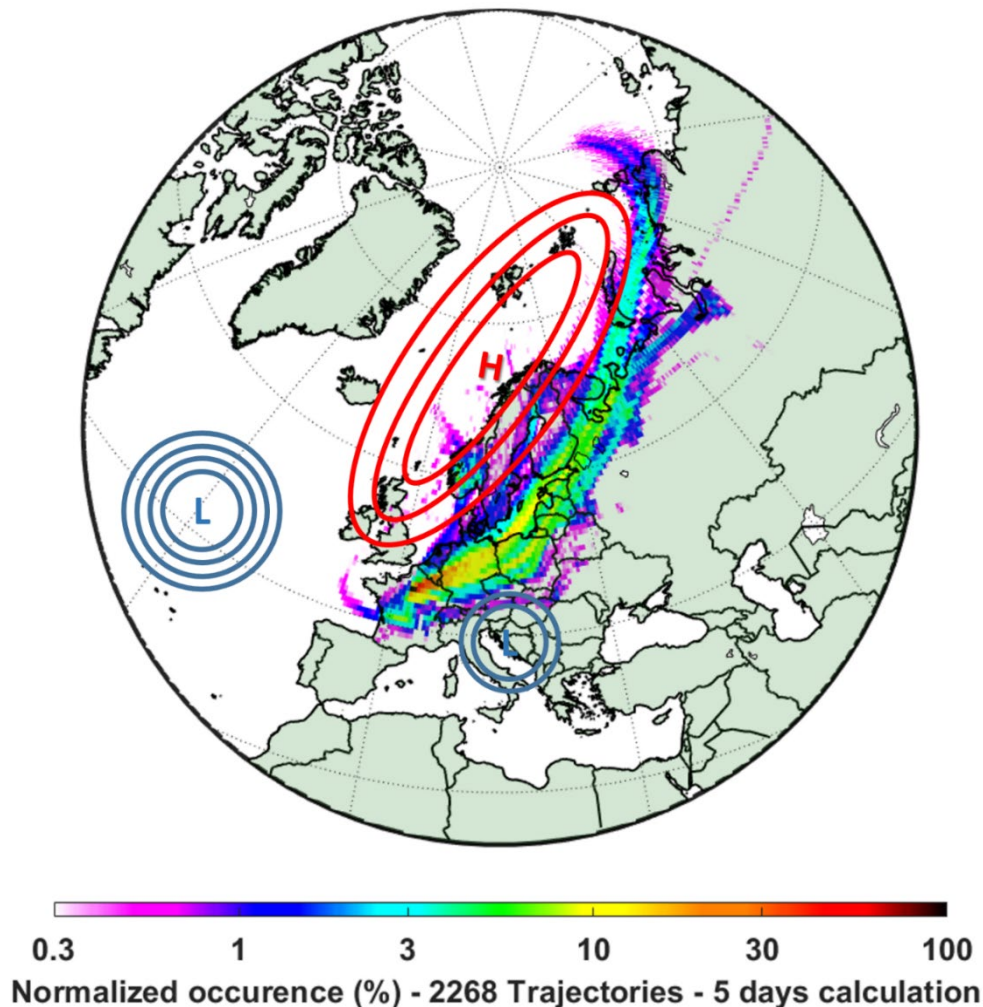


Figure 47: Representation of the normalised occurrence of backward trajectories calculated with the HYSPLIT Lagrangian model in ensemble mode. A grid of 5-day-long runs is compiled. Back

trajectories are initiated every 6 hr from 26 February 0000 UTC to 1 March 0000 UTC. They are initiated every 250 m from 1250 to 2750 m of altitude. For 26 February, the locations of the high and the two lows are represented schematically.

### 3 Lidar system description, calibration, and observation

The WALI system used in this study is a compact and transportable lidar emitting  $\sim 100$  mJ at 355 nm in eye-safe conditions. It is amply described in previous works on atmospheric aerosol and water vapour (Chazette et al., 2014b; Totems and Chazette, 2016; Totems et al., 2019). In this iteration of the instrument, the laser has been frequency-stabilized and dedicated Rotational Raman channels have been added. Like water vapour measurements, the derivation of the atmospheric temperature by PRR lidar requires a reliable calibration against external in situ data. Hereafter, the PRR channels are presented summarily, as well as the calibration using nearest high vertical resolution radiosoundings performed by Météo-France.

#### 3.1 Rotational Raman channels characteristics

The basis of temperature measurements by the PRR technique is the asymmetric variation of the intensity of rotational Raman lines of the two main atmospheric gases (nitrogen ( $N_2$ ) and oxygen ( $O_2$ )) spectrum with the thermodynamic temperature (Vaughan et al., 1993; Behrendt, 2006). The two PRR reception channels in the WALI system are centred at two distinct wavelengths (354.1 and 353.2 nm) selected in the anti-Stokes side of the spectrum. For these channels, the characteristics of the narrow interference filters are specified following studies conducted by Hammann and Behrendt (2015). A high rejection of the emitted wavelength  $\lambda$  was prescribed to avoid contamination by the elastic scattering signal backscattered from aerosols and clouds. Also, the commercially available tripled Nd:YAG laser used in WALI (Q-Smart 450 system manufactured by Lumibird, formerly Quantel) was modified by the manufacturer who added a fibre laser injector to stabilize the wavelength at  $\lambda = 354.725$  nm in vacuum, at the cost of a pulse energy reduction from 120 to 100 mJ. The laser linewidth has been checked in the laboratory with a Michelson interferometer setup, with a spectral resolution higher than 1 pm and a wavelength drift below 0.4 pm (standard deviation over 10 minutes). Finally, the transmission of lidar signals through each filter has been verified on hard-target reflexions to be less than a few  $10^{-7}$  at  $\lambda$ , which requires negligible correction in the case of an aerosol-loaded atmosphere. Thus, the range-corrected lidar signal  $S_{RRi}$  received by PRR channel  $i$  can be expressed as

$$S_{RRi}(T, z) = K_i \times O(z) \times \beta_{RRi}(T, z) \times T_{atm}^2(z) \quad (1)$$

where  $K_i$  is the system constant that includes the filter transmission,  $O$  is the overlap function and  $\beta_{RR_i}$  is the rotational Raman backscatter coefficient for channel  $i$ . The atmospheric transmission  $T_{atm}$  can only be considered at the laser emitted wavelength due to the proximity of rotational Raman lines. The theoretical expression of the RR backscatter cross-section as a function of temperature is not detailed here but can be found in previous literature (e.g. Behrendt, 2006; Weitkamp, 2005).

### 3.2 Temperature calibration

The two RR signals  $S_{RR1}$  and  $S_{RR2}$  vary asymmetrically against the atmospheric temperature  $T$ , so that the ratio of the two is a bijective function of  $T$ . Ratio  $Q(T) = S_{RR2}(T, z)/S_{RR1}(T, z)$  can be approximated by a function of  $T$  as in Behrendt (2006):

$$Q(T) = \exp\left(\frac{a}{T^2} + \frac{b}{T} + c\right) \quad (2)$$

This calibration function has been subject to several studies and can be chosen among a wide range of linear and non-linear functions (Gerasimov et Zuev 2016). Here we choose to use a well-established non-linear function that expresses the Q ratio as the exponential of a second-order polynomial of the inverse of temperature, which yields errors lesser than 0.1 K (Lange, Behrendt, et Wulfmeyer 2019; Behrendt 2005; Gerasimov et Zuev 2016). A polynomial regression is computed to assess coefficients  $a$ ,  $b$  and  $c$  of  $\ln(Q(T)) = \frac{a}{T^2} + \frac{b}{T} + c$  as a function of  $1/T$ . This leads to the unique physical solution for  $T$ :

$$T = \frac{-2a}{b + \sqrt{b^2 - 4a(c - \ln(Q))}} \quad (3)$$

Finding this calibration function requires exogenous measurements of atmospheric temperature, preferably over the full range of expected temperatures. The most convenient solution is to obtain profiles from radiosoundings launched close to the lidar site. Here, the data used for the lidar calibration originates from the Trappes meteorological station of Météo-France (<https://donneespubliques.meteofrance.fr>). That

station is located ~14 km west-northwest of the lidar location. The fitted calibration curve is displayed in Figure 48, where 11 radiosoundings from the entire measurement period are also plotted.

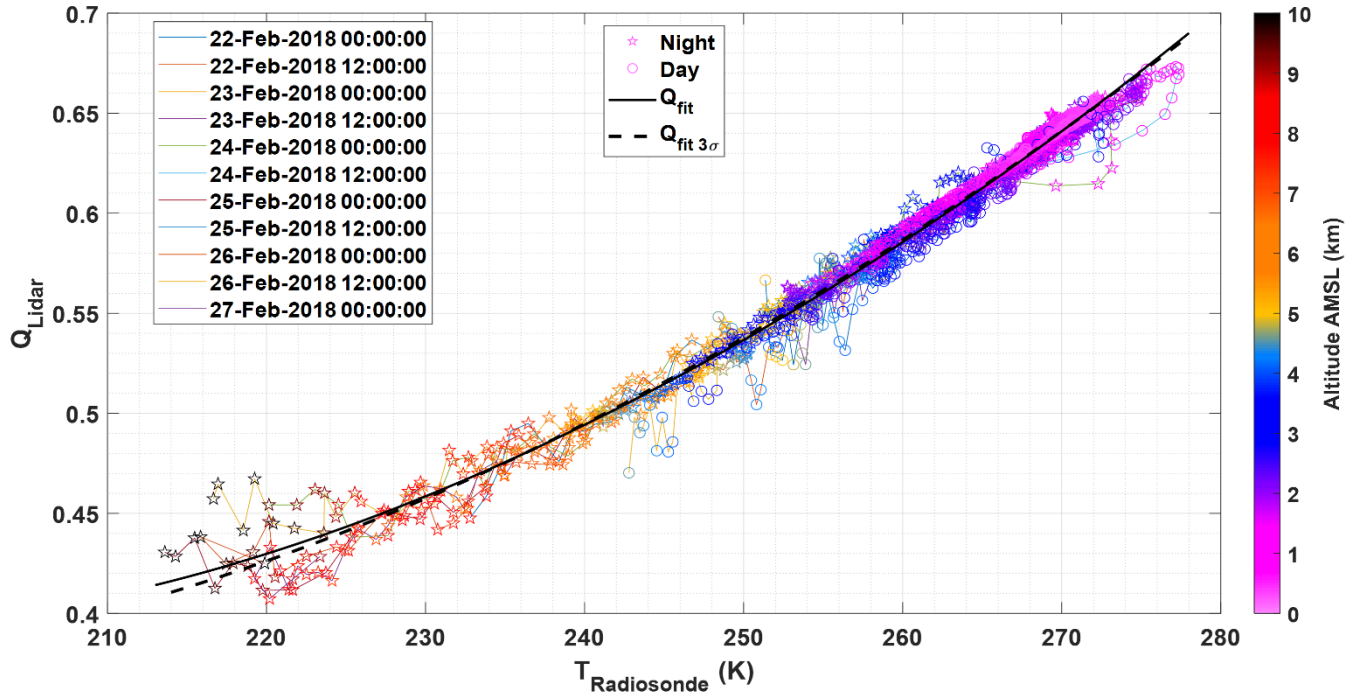


Figure 48: Calibration curve of the lidar. The  $Q$  ratio is plotted against the coinciding radiosoundings. Coloured lines correspond to each radiosounding and a distinction is made for day and night with circle and star markers, respectively. The marker colour provides information on the altitude (coloured bar). The computed regression is plotted in solid black line. The dashed line represents the re-computation without data points further than 3 standard deviations from the original fit.

Note that data points for which the lidar signal-to-noise ratio was found to be under 10 were rejected, so as not to bias the regression. The full temperature range is ~215 K to ~275 K, thanks to a sufficient signal to noise ratio (SNR) for nighttime lidar data allowing to access altitudes up to 9 km AMSL with SNR > 10 (stars markers in Figure 48) where very cold temperatures can be encountered. The atmospheric temperature was measured down to  $-20^{\circ}\text{C}$  around 2 km AMSL (purple markers) but above freezing at 3 to 4 km AMSL (up to  $\sim 3^{\circ}\text{C}$ , blue markers).

Because of excess noise near the maximum range of the lidar or radiosondes sampling different air masses as they are carried away from the lidar location by the wind, outlying data points are still visible and additional rejection is required. The coefficients of equation 3 are thus obtained by a regression computed only on points closer than 3 standard deviations from the original fit (dashed line in Figure 48). In Figure 49, an example of profile-to-profile comparison is presented for two radiosonde launches on 22 February 0000 U TC and 22 February 1200 UTC. Note that the altitude ranges in y-axis are different. The mean temperature derived from 2 hours of calibrated lidar data ( $T_L$ ) matches with the temperature derived from the radiosoundings ( $T_{RS}$ ). On Figure 49a, during nighttime,  $T_L$  is following  $T_{RS}$  up to 10 km AMSL albeit

noisier after 6 km (SNR < 20). On Figure 49b, lidar daytime data reaches 4.5 km AMSL but significant noise is present above 3 km (SNR < 15) due to background sky radiance.

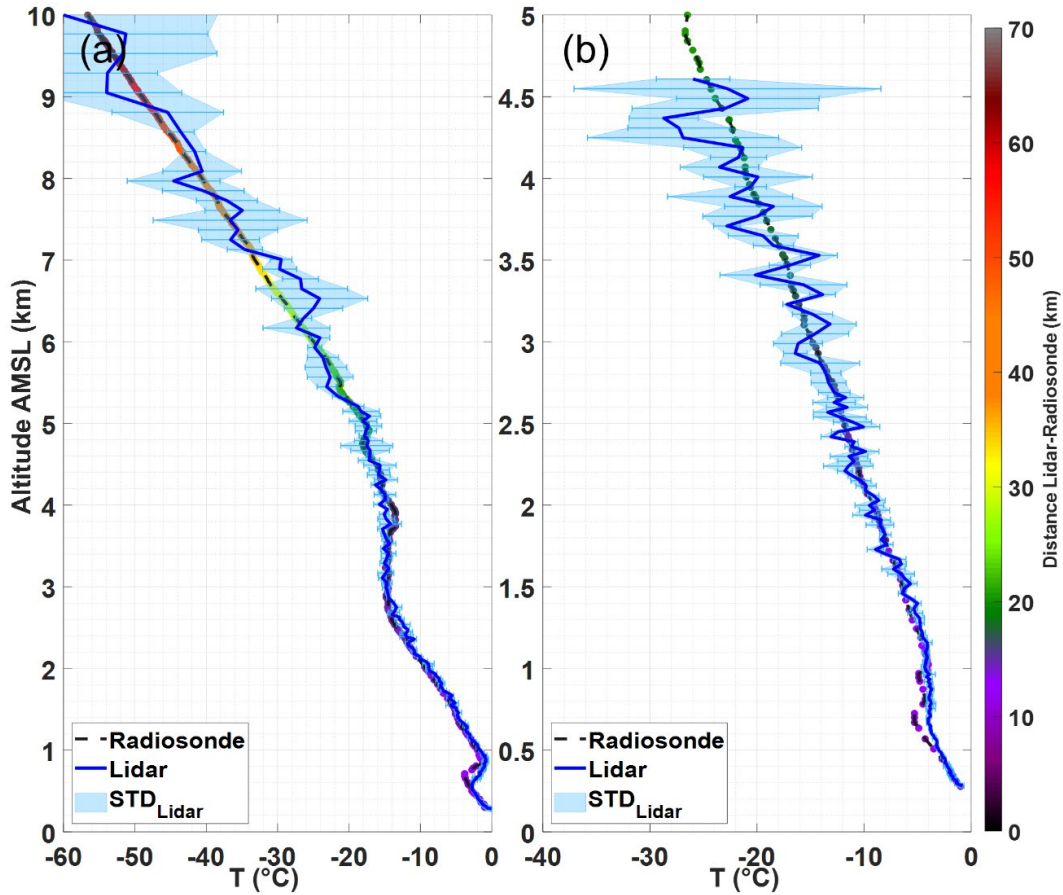


Figure 49: Radiosounding and lidar profile-to-profile comparison after temperature calibration: a) nighttime radiosonde on 22 February 0000 UTC, and b) daytime radiosonde on 22 February 1200 UTC. The grey lines with coloured dots represent the radiosounding temperatures while the thick blue lines and the blue areas represent the lidar-derived temperatures and their standard deviations for a 2-hour average, respectively. The coloured scale indicates the distance separating the lidar and the balloon during its ascension.

Considering a final resolution of 20 minutes, and a vertical resolution varying linearly between 15 m at ground level and 200 m at 8 km altitude (and constant above), an experimental error budget of the WALI is presented in Table 1 against all the available radiosonde profiles. The uncertainties are calculated as a function of altitude and a distinction is made for day and nighttime. An important result is that the WALI system allows temperature measurements up to 6 km AMSL at night within a 1 K error. Furthermore, the error remains below 1°C during daytime measurements only up to 3 km AMSL.

Table 1: Overview of the Mean Bias (MB, see equation 4) and the centred root men square error (RMSE, see equation 6) of the lidar system, with reference to radiosounding and averaged into four altitude ranges.

	All profiles	Nighttime only	Daytime only
--	--------------	----------------	--------------

Altitude range (km)	MB (°C)	RMSE (°C)	MB (°C)	RMSE (°C)	MB (°C)	RMSE (°C)
0 – 1.5	-0.23	0.7	-0.42	0.6	0.01	0.6
1.5 – 3	0.3	0.9	-0.1	0.6	0.78	0.8
3 – 4.5	0.75	1.9	-0.17	0.8	1.94	2.1
4.5 – 6	-	-	0.08	0.9	-	-

Finally, the entire  $T_L$  dataset is displayed in Figure 50a. It shows the temperature field in colour from 21 February 1500 UTC to 27 February 0800 UTC from 280 m AMSL (120 m above ground level) to 4 km AMSL. Note that white areas correspond to rejected noisy data ( $\text{SNR} < 10$ ) or cloudy conditions. The diurnal cycle of the temperature is easily noticeable in the PBL. The launch times of radiosondes are indicated as thin grey lines in Figure 50a.

This dataset can be divided into three periods: (i) The first one (P1), from 21 to 23 February 1200 UTC, is undisturbed and can be described as the typical atmospheric temperature field in late February over the Paris area, with a temperature gradient of  $\sim 5^\circ\text{C km}^{-1}$ . (ii) The second one (P2), from 23 February 1200 UTC to the end of 25 February, is disturbed by a warm air mass above the PBL resulting in a strong inversion layer ( $+10^\circ\text{C} / 300 \text{ m}$ ) between 1 and 1.2 km AMSL. Lastly, (iii) the third one (P3), from 26 to the end of the dataset on 27 February, during which a cold air mass arrived from Siberia, inducing a temperature gradient of  $-10^\circ\text{C km}^{-1}$  in the two first kilometres with a surface temperature close to  $0^\circ\text{C}$ .

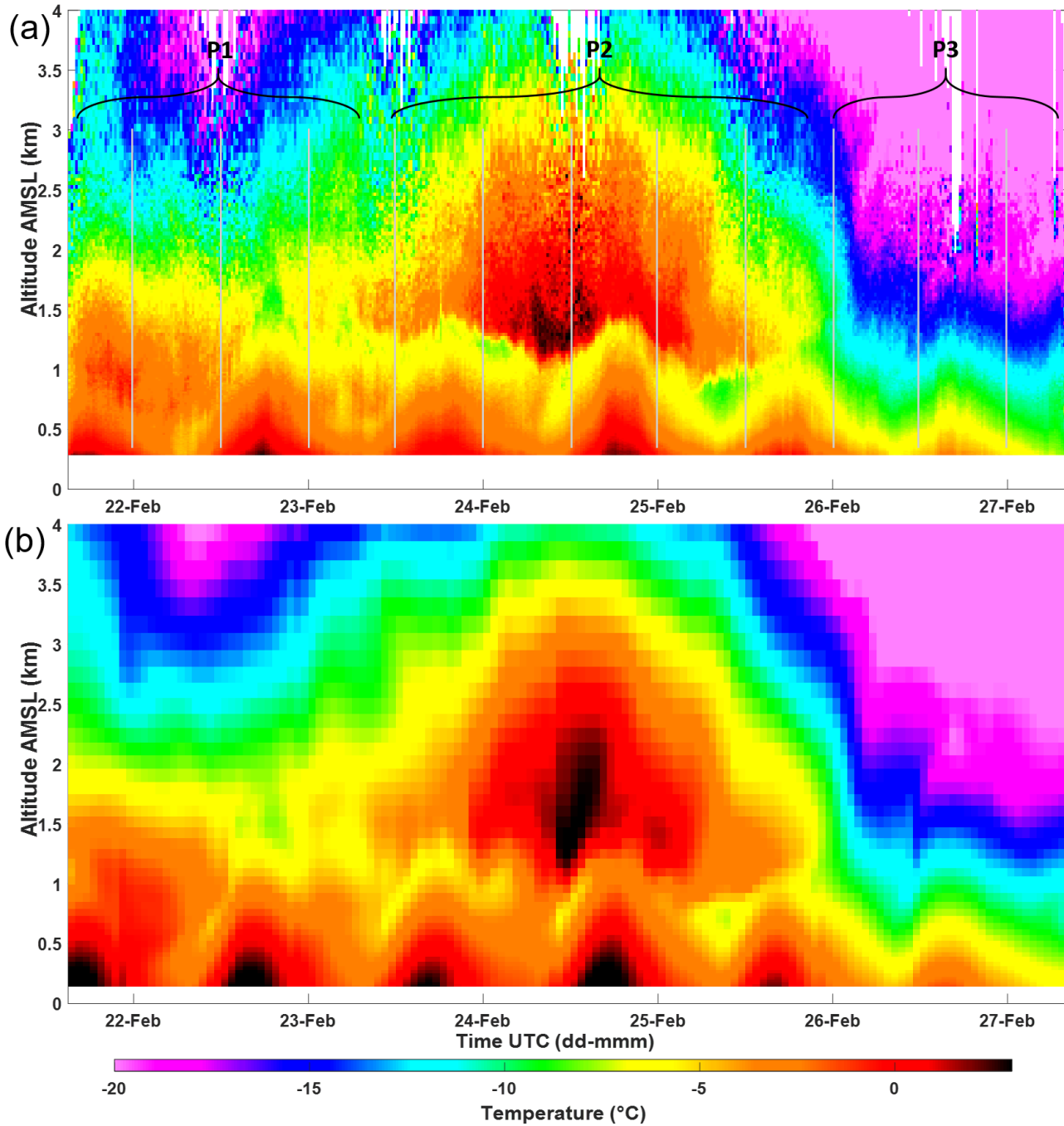


Figure 50: Time series, from 22 to 27 February, of atmospheric temperature profiles derived from: a) lidar and b) ERA5 reanalysis product. Time of RS launches are indicated by grey lines every 12 hr on the top panel. The dataset division in three periods (P1, P2 and P3) is also highlighted by black horizontal braces on the same figure.

## 4 Cross-comparisons between ground-based lidar and IASI-derived operational product of temperature

WALI has already been used in the past for inter-comparisons with IASI-derived operational level 2 products of water vapour (P. Chazette et al. 2014; Totems, Chazette, et Raut 2019). The current comparison exercise aims to show that the PRR channel newly implemented in the WALI can also be a



relevant tool to validate the temperature level 2 product retrieved from IASI (Blumstein et al. 2007; Pougatchev et al. 2009).

## 4.1 Profile-to-profile comparison

Over the duration of the measurements, 26 coincidences, i.e. profiles of IASI above the lidar location, have been found. None of them were close to a radiosonde launch time due to the ascending node time and the limited swath of the satellite at mid-latitudes, which is therefore where the continuous sampling of the lidar shows its full advantage. Among these 26 coincidences, 17 happened at night (65%). Daytime and nighttime profiles are presented in Figure 51 (a, b, c) and Figure 51 (d, e, f), respectively, for the three periods defined in Figure 50a. Alongside IASI and WALI profiles, ERA5 reanalysis profiles extracted from the time-series of Figure 50b are also displayed. The coloured shaded area around each profile represents the STD for a two-hour average, except for IASI, where it represents the STD between IASI pixels closer than 50 km from the lidar location. It is worth noting that the statistical error of the IASI temperature retrieval is about 0.6 °C between ~2 and 9 km (800-300 hPa), 1.5 °C close to the tropopause and 2 °C near ground level (Pougatchev et al. 2009).

As shown in Figure 51a, during the undisturbed period P1, all the profiles are quite similar but only the lidar highlights the small temperature inversion around 1.2 km AMSL (also visible in Figure 50a). Below 1 km AMSL, discrepancies between IASI and other profiles are significant (1 to 3 °C). During P2 (Figure 51b), lidar-derived vertical temperature profiles show a strong temperature inversion around the PBL top. The inversion strength is really marked in the lidar profile, whereas it is smoother in the ERA5 reanalysis and not seen at all by IASI. The vertical temperature profiles of the cold wave period (P3) are given in Figure 51c. P3 is characterised by colder temperatures and a steeper gradient than P1. The agreement is good between IASI and WALI after 2.5 km AMSL, whereas IASI is overestimating the temperature of the lower atmospheric layers. WALI and the ERA5 reanalysis match on the entire column of the sampling troposphere; the most significant disagreement is observed below 2 km AMSL, near the PBL top.

For nighttime profiles, Figure 51a (P1) presents an overall good agreement of all datasets except for IASI, which does not track the slight temperature inversion at 1.5 km AMSL and tends to overestimate the temperature close to the ground while underestimating (~1.5 °C) it above the inversion between 1.8 to 4.3 km AMSL. For P2 (Figure 51b) and P3 (Figure 51c), IASI-derived vertical profiles of temperature match well with the lidar retrievals within the free troposphere above 3.5 and 2 km AMSL for P2 and P3, respectively. However, IASI overestimates the temperature in the PBL (e.g. P3, below 2 km AMSL) and is

blind to temperature inversion (e.g. P2, ~1.5 km AMSL). It is worth noting that above 2-3 km, where the IASI averaging kernels are peaked (Prates et al. 2016), the agreements are quite good with the lidar and model-derived vertical profile of temperature, within a mean range of 1 °C.

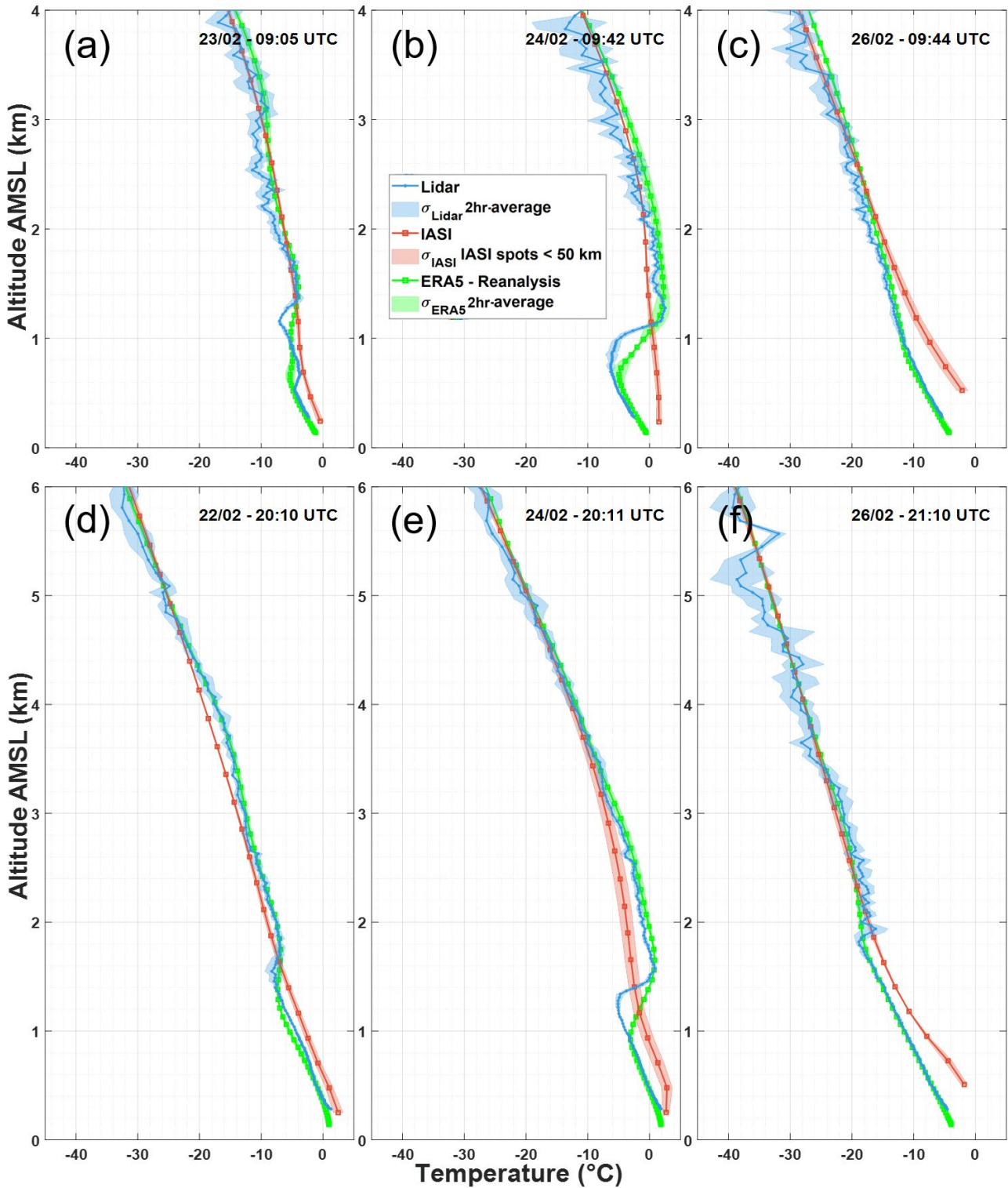


Figure 51: Profiles of IASI (red), WALI (blue), and ERA5 reanalysis (green). The profiles are plotted up to 4 km AMSL during the three periods a) P1 (23 February), b) P2 (24 February) and c) P3 (26 February) for daytime and up to 6 km AMSL for nighttime during d) P1 (22 February), e) P2 (24 February) and f) P3 (26 February).

## 4.2 Statistical consideration

To quantify the agreements and the differences of the different datasets, the computation of common indicators that are the centred root-mean-squared error (RMSE), the Pearson correlation coefficient (COR) and the mean bias (MB) are achieved following the equations:

$$MB = \frac{1}{n} \sum_{k=1}^n (T_c(k) - T_{Lidar}(k)) \quad (4)$$

$$COR = \frac{\frac{1}{n} \sum_{k=0}^n [(T_c(k) - \bar{T}_c) \times (T_{Lidar}(k) - \bar{T}_{Lidar})]}{\sqrt{\sum_{k=1}^n (T_c(k) - \bar{T}_c)^2 \times \sum_{k=0}^n (T_{Lidar}(k) - \bar{T}_{Lidar})^2}} \quad (5)$$

$$RMSE = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{k=1}^n [(T_c(k) - \bar{T}_c) - (T_{Lidar}(k) - \bar{T}_{Lidar})]^2} \quad (6)$$

with  $T_c$  the temperature dataset to be compared with the coinciding lidar measurements. Such statistical parameters are commonly used for comparisons between models and observations (e.g. Tombette et al., 2008; Wang et al., 2013). In the following Figure 52 we plot them as vertical profiles by selecting samples of lidar and coincident measurements located at the same altitude bin and summing them over time.

The COR, MB and centred RMSE profiles between IASI and WALI are plotted in Figure 52. The statistics on the 26 available profiles are shown in Figure 52a where IASI-derived vertical profiles of temperature are compared to the concomitant lidar datasets up to 4 km AMSL. In Figure 52b and 7c, the computation of the statistical indicators is restricted to the 9 diurnal and the 17 nocturnal profiles, respectively.

The discrepancies already observed in Figure 51 are emphasised here. On the three panels a, b and c in Figure 52, the correlation drops from  $\sim 0.8$  to  $\sim 0.6$  below 1.5 km AMSL, as well as the MB which is within the  $[-1 \text{ }^\circ\text{C}; +1 \text{ }^\circ\text{C}]$  interval above 1.5 km but about  $+4 \text{ }^\circ\text{C}$  near ground-level. The centred RMSE profile maxima show the altitudes where IASI commits unstable errors with reference to WALI. The altitudes between 0.5 and 1.5 km AMSL correspond with the PBL top height where temperature inversions are not correctly sampled by IASI. The RMSE is larger in the PBL ( $> 2 \text{ }^\circ\text{C}$  and a little less for nocturnal profiles). For all and daytime profiles (Figure 52a and b), the RMSE in the free troposphere up to 4 km AMSL remains around  $2 \text{ }^\circ\text{C}$ . On the other hand, in Figure 52c, nocturnal measurements up to 6 km AMSL show a really good agreement in terms of both correlation ( $COR > 0.8$ ) and bias ( $|MB| < 1 \text{ }^\circ\text{C}$ ) in the free troposphere (above 1.5 km AMSL), particularly above 4 km AMSL where the MB is almost null. The RMSE profile shows several maxima that are the result of differences observed both around the PBL top

(during the three periods, ~1.5 km AMSL) and in the free troposphere (especially during P1 and P2, ~2.5 km and ~4 km AMSL).

These results are compiled in Table 2: where a distinction is made for four altitude ranges and calculations performed on all, nighttime and daytime profiles. It clearly demonstrates the inaccuracy of IASI under 1.5 km AMSL, within the PBL, where no averaged kernel function is peaked (Prates et al. 2016).

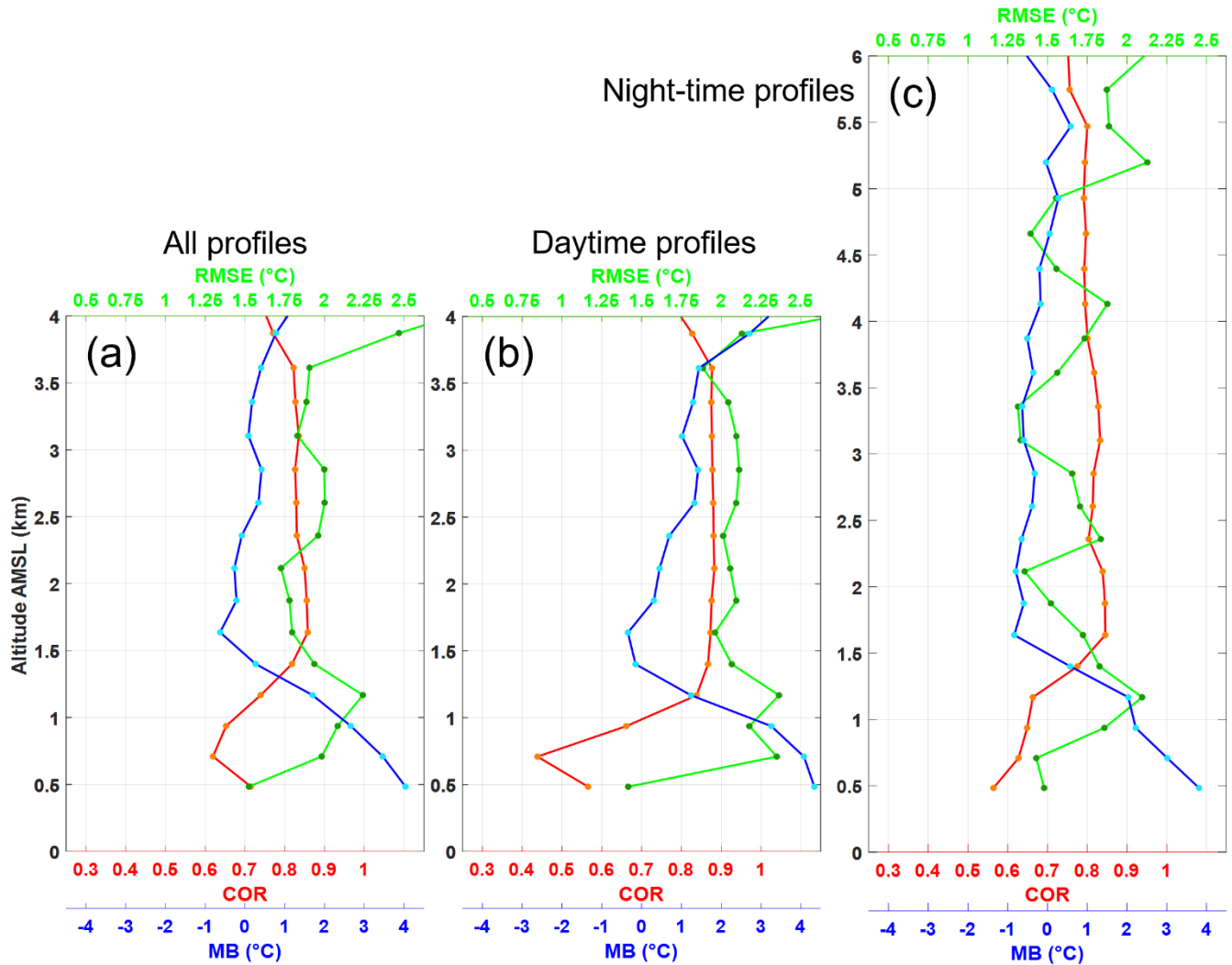


Figure 52: Profiles of Correlation (COR, red), Mean Bias (MB, blue) and centred root mean square error (RMSE, green) between IASI temperature profiles and corresponding lidar measurements: a) all the 26 lidar-IASI profiles comparison up to 4 km, b) restricted to the 9 diurnal profiles and c) 17 nighttime profiles up to 7 km.

Table 2: Correlation coefficient (COR), Mean Bias (MB) and centred root mean square error (RMSE) between IASI- and lidar-derived vertical temperature profiles and averaged into four altitude ranges. The values are in *italic* when the altitude range does not allow to ensure a lidar error below 1 °C.

Altitude range (km)	All profiles			Nighttime only			Daytime only		
	COR	MB (°C)	RMSE (°C)	COR	MB (°C)	RMSE (°C)	COR	MB (°C)	RMSE (°C)
0 - 0.5	0.6	0.7	0.8	0.6	0.7	0.8	0.6	0.7	0.8
0.5 - 1	0.7	0.8	0.9	0.7	0.8	0.9	0.7	0.8	0.9
1 - 1.5	0.8	0.9	1.0	0.8	0.9	1.0	0.8	0.9	1.0
1.5 - 4	0.9	1.0	1.1	0.9	1.0	1.1	0.9	1.0	1.1

0 – 1.5	0.71	2.4	2.0	0.66	2.3	1.7	0.67	2.6	2.1
1.5 – 3	0.84	-0.1	1.9	0.93	-0.6	1.6	0.88	0.6	2.1
3 – 4.5	<i>0.8</i>	<i>0.5</i>	<i>2.2</i>	0.81	-0.4	1.6	<i>0.84</i>	<i>1.9</i>	<i>2.2</i>
4.5 – 6	-	-	-	0.79	0.2	1.8	-	-	-

## 5 Consistency between lidar and operational modelling outputs

In the following, the temperature fields of numerical weather prediction model are checked in terms of forecasts (AROME and ERA5) and reanalysis (ERA5) against the lidar-derived vertical temperature profiles.

### 5.1 Description of the model products

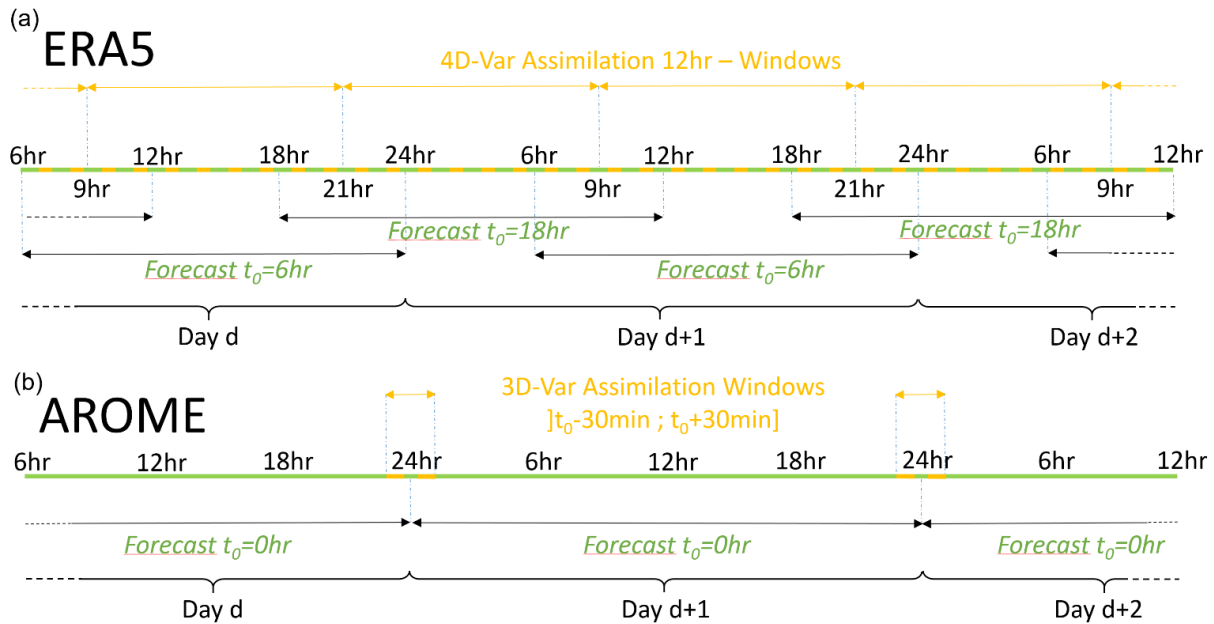
The ERA5 global reanalysis product that has been used in this study is an hourly output of the atmospheric temperature on the 47 model levels up to 4 km AMSL. The model comes with a horizontal resolution of  $0.25^\circ$  and an inverse-distance weighting average is made over the nine grid points surrounding the lidar location ( $48.711^\circ\text{N}$ ,  $2.149^\circ\text{E}$ ). This dataset is presented in Figure 50b in the form of a full time series and in Figure 51 by showing concomitant profiles with IASI transits.

In terms of operational forecast, it is also interesting to see how NWP models predict the temperature field during the measurement period of late February 2018. Two ERA5 forecast products and one available AROME forecast output have been used to answer this point.

The ERA5 forecast outputs follow the same processing as that used for the reanalysis. Figure 53a presents the time-sequential diagram of the procedure used to produce the forecasts. From 0900 to 2100 UTC, there are 12-hours 4D-Var assimilation windows that follow one after the other. In the same time frame, 3 hours before the end of each assimilation window (0600 or 1800 UTC), a short forecast run is launched for 18 Forecast Steps (FS) of one hour. In this study, both ERA5 forecast products are used.

An available AROME forecast product is also used in this work and schematically represented in the diagram of Figure 53b: it is the run that begins at 0000 UTC for 24 FS. The procedure differs from the one used at ECMWF. Initialized with the global NWP model ARPEGE (Courtier et al., 1991), the AROME-France mesoscale model (Seity et al. 2011) has a spatial extension centred over metropolitan France. The assimilation in AROME is made with a 3D-Var protocol during a 1-hour window ( $t_0 \pm 30$  min) with the use of the incremental analysis update (IAU) (Brousseau et al. 2016). The IAU technique implies that the first FS of AROME (i.e. 0100 UTC in our case) also contains information resulting from the assimilation.

Both models assimilate IASI radiances within the free troposphere (ERA5: Collard and McNally, 2009; AROME: Guidard et al., 2011).



**Figure 53:** Sequential diagrams of the production procedures for the Numerical Weather Prediction Model operational products. a) For ERA5, two distinct products are available: a forecast run launched at  $t_0 = 0600$  UTC and one at  $t_0 = 1800$  UTC, both for 18 hours / forecast steps (green). At the same time, assimilation windows occur every 12 hours for a duration of 12 hours. b) For AROME, a forecast run is launched at  $t_0 = 0000$  UTC for 24 hours / forecast steps (green). The assimilation windows start 30 min before the run and ends 30 min after  $t_0$  (yellow).

## 5.2 Quantified coherence of the model outputs

Figure 50b shows the temporal evolutions of the temperature vertical profile taken from the ERA5 reanalysis product, above the lidar location during the whole measurement period. When compared with lidar-derived temperature vertical profiles (Figure 50a), a general coherence between model and observation is noted. All temperature patterns are well represented, including the warm air mass transported above the PBL and the cold wave. Yet, some difference in the temperature at the PBL top ( $\sim 0.5-1$  km AMSL) on 23 and 24 February can be noticed as well as the altitude range of the warm air mass, which is greater in the model.

In Figure 51, ERA5 profiles which averaged 2 hours around the IASI profile are plotted jointly with IASI and lidar temperature data. The same statement as for Figure 50 can be made: an overall good agreement with the lidar is noticed. However, one can notice some discrepancies in panels a), b), e) and f) of Figure 51, especially around the PBL top, with modelled temperature inversions that look smoother than the ones observed. In particular, the lidar profile of Figure 51a shows a slight temperature inversion around 1.2 km AMSL which is not seen by IASI nor transcribed in the reanalysis. Such differences can be attributed to

the better vertical resolution of the lidar profiles, which record more accurately the sharp variabilities of the atmosphere.

For both, forecasts and reanalysis, the discrepancies are quantified using the statistical indicators previously presented. They are shown in Figure 54 and computed for three pairs of datasets: the two ERA5 forecasts (orange dashed line and area), the AROME forecast (blue dashed line and area) and the ERA5 reanalysis (black solid line). The coloured areas represent the range of variation swept by the corresponding statistical indicator profiles calculated for each FS from FS = 0 hr to FS = 18 hr for each forecast product.

In Figure 54a, mean COR values are greater than 0.9 up to 4 km AMSL. Despite an overall good accordance, caveats must be acknowledged for both forecasts regarding the PBL (~700 m to ~1500 m AMSL) where a sharp decrease of the correlation is clearly highlighted by the coloured areas. We also note a significant decrease in COR around 3.5 km AMSL. This reflects the discrepancies between models and lidar at the PBL top and the strength of the inversion, on one hand, and the difficulty to accurately retrieve the vertical extent of the warm air mass of P2, on the other. It should be noted that the lower SNR on the lidar profile at the higher altitudes may influence the statistical results. It is worth noting that the ERA5 reanalysis is not significantly more correlated with observations than it is with forecasts in the PBL and even a little less correlated above 2 km AMSL. In Appendix A, Figure A1 displays the time-series of COR for the three forecast products (i.e. AROME  $t_0 = 0000$  UTC, ERA5  $t_0 = 0600$  UTC, and ERA5  $t_0 = 1800$  UTC). This corroborates the caveats of models around the PBL top and even some disagreement for  $t_0 = 1800$  UTC ERA5 forecast in the PBL development for FS > 16.

The MB profiles are shown in Figure 54b. Models tend to predict hotter temperatures than lidar observations within a  $1 \pm 1^\circ\text{C}$  interval for mean values of MB remaining within the uncertainties associated with the lidar measurements. A small positive drift of the MB can be noticed, especially for AROME forecast. It could be associated with both the growing uncertainties of lidar temperature estimates with altitude, especially for daytime, and/or a possible quality deterioration of the forecast with increasing FS at these altitudes. The AROME forecast also appears to be more biased by  $>1^\circ\text{C}$  than ERA5 ( $\sim 1^\circ\text{C}$ ), while the ERA5 reanalysis is associated with a slightly higher absolute bias below 1 km AMSL ( $>0.5^\circ\text{C}$ ) when comparing to the ERA5 forecast ( $\sim 0.5^\circ\text{C}$ ). In Appendix A, Figure A2 displays the time series of the MB for the three forecast outputs. On one hand, the discrepancies around the PBL are noticeable during the entire diurnal cycle, and on the other hand, the bias increases during daytime (0800 to 1800 UTC),

which can be the result of a hotter temperature model estimate ( $\sim 1$  °C) combined with a colder lidar estimate ( $\sim 1$  °C) with respect to the radiosounding (see Table 1, a MB > 0 during daytime).

In Figure 54c, the RMSE is larger ( $> 1$  °C) in the PBL (750 to 1500 m AMSL). It also increases between 2 and 2.5 km AMSL from 0.6 °C to 1 °C with a slight peak associated to the discrepancies observed in Figure 50 and 6 during period P2 with a warm air mass which is hotter and more developed in the model. Above 3.5 km AMSL, noisier daytime lidar data ( $\sim 1.9$  °C error at this altitude, see Table 1) probably make the RSME increase ( $> 1.5$  °C in average and  $> 3$  °C in variability). Note that the RMSE is similar for the ERA5 analyses and even slightly larger than the mean values of the forecasts. In Appendix A1, Figure A3 shows the RMSE time-series for the three forecasts. The same conclusion as that made for the MB time-series can be drawn here: highlighted differences around the PBL top ( $\sim 2$  °C) and high values above 3 km AMSL during daytime ( $\sim 2.5$  °C).

All the statistical results are summarized in Table 3 for comparison between the lidar and the four model outputs (i.e. AROME forecast, the two ERA5 forecasts and ERA5 reanalysis) as a function of the altitude range.

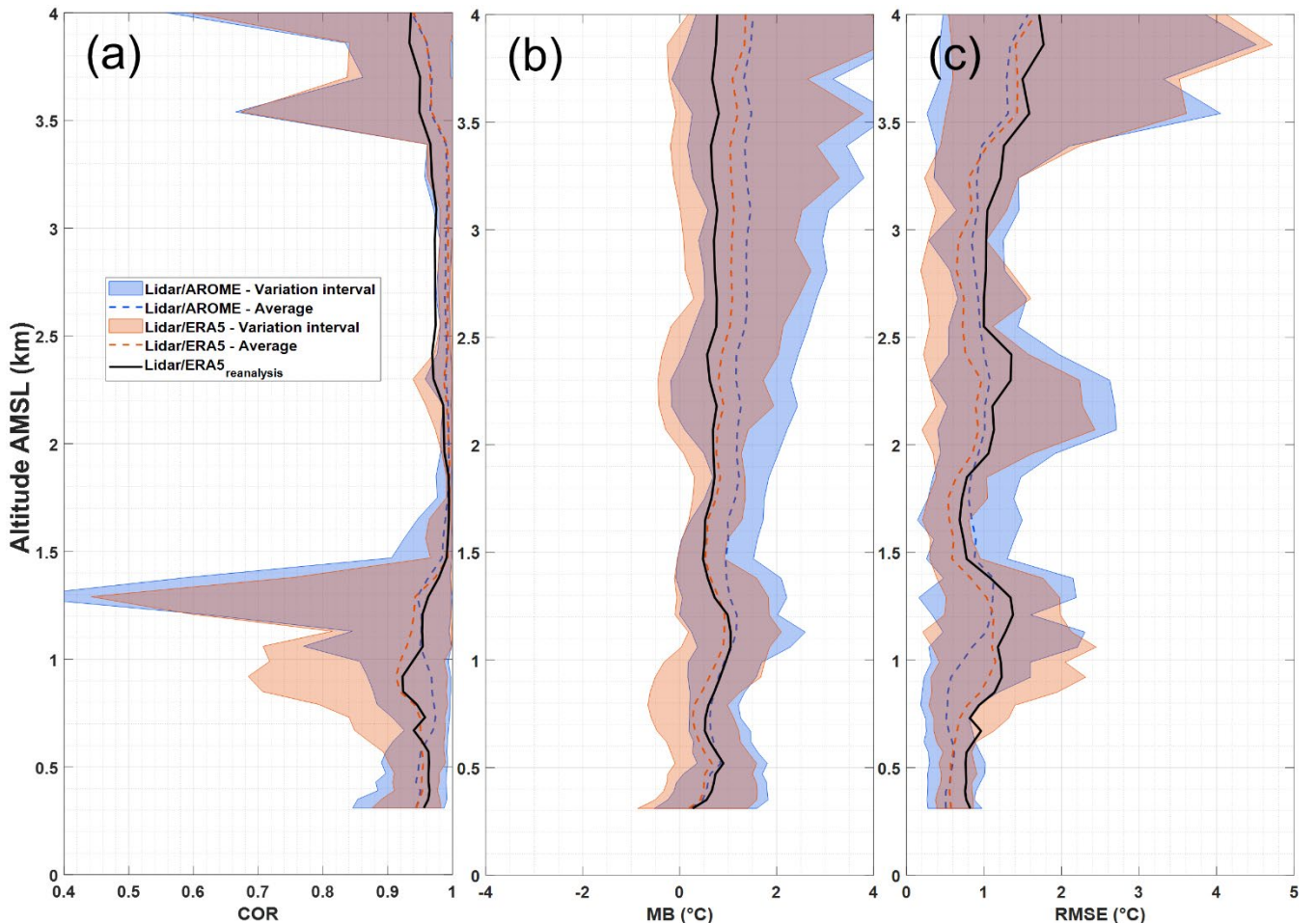




Figure 54: a) profiles of correlation coefficient (COR), b) mean bias (MB) and c) centred root mean square error (RMSE) between the lidar-derived temperature profiles and the corresponding model outputs. The coloured areas represent the variability of calculation for each forecast step.

Table 3: Correlation coefficient (COR), mean bias (MB) and centred root mean square error (RMSE) between lidar and models and their average into three altitude ranges. For AROME and ERA5 forecasts, the statistical indicators are calculated for 6 forecast step intervals of 3 hours.

Model Output	AROME forecast			ERA5 forecast			ERA5 reanalysis			
Altitude range (km)	0 – 1.5	1.5 – 3	3 – 4	0 – 1.5	1.5 – 3	3 – 4	0 – 1.5	1.5 – 3	3 – 4	
Forecast Step Interval ( hr)										
COR	1 – 3	0.97	0.99	0.99	0.96	0.99	0.99	0.96	0.98	0.95
	4 – 6	0.97	0.99	0.99	0.95	1.0	0.97			
	7 – 9	0.96	0.99	0.98	0.95	0.99	0.94			
	10 – 12	0.96	0.99	0.94	0.95	0.99	0.95			
	13 – 15	0.96	0.99	0.88	0.96	0.99	0.99			
	16 – 18	0.92	0.99	0.88	0.93	1.0	0.97			
MB (°C)	1 – 3	0.7	0.9	0.7	0.4	0.6	0.7	0.7	1.0	0.7
	4 – 6	0.5	0.8	0.6	0.5	0.8	1.3			
	7 – 9	0.4	1.2	1.7	0.8	0.8	1.6			
	10 – 12	0.9	1.7	2.8	0.5	0.7	0.8			
	13 – 15	1.5	1.8	3.1	0.0	0.6	0.7			
	16 – 18	1.0	1.3	1.6	0.4	1.0	1.4			
RMSE (°C)	1 – 3	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7	1.2	1.0	1.0	1.6
	4 – 6	0.7	0.7	0.8	0.8	0.5	1.5			
	7 – 9	0.7	0.8	1.4	0.8	0.7	1.5			
	10 – 12	0.7	0.9	2.2	0.7	0.7	1.2			
	13 – 15	0.7	1.1	2.2	0.8	0.8	1.2			
	16 – 18	0.7	1.1	1.6	0.9	0.6	1.5			

## 6 Conclusion and discussion

The WALI system, newly equipped with a PRR channel to measure the atmospheric temperature vertical profile, has been successfully deployed in late February 2019. This 6-day period is characterised by complex temperature patterns above the measurement site, enhanced by the arrival of a cold spell over western Europe. This cold spell comes late in the winter season, which is not common. The mechanism at the origin of the surge of Siberian air over Europe, namely atmospheric blocking, is well described in the literature, although some ongoing studies still ponder the inner workings of such blocking.

The lidar measurements during this period are calibrated and qualified using radiosoundings from the Trappes Météo-France station, 14 km west of the lidar location. This calibration leads to lidar temperature estimates with an error below 1 °C up to 3 km AMSL in daytime, and 6 km AMSL at night for a temporal resolution of 20 min and a vertical resolution between 15 m at ground level and 120 m at 6 km. Such capacities allow trustworthy and continuous temperature measurements in the PBL and the low troposphere that have been used for comparison with passive IASI spaceborne measurements commonly assimilated in models. Furthermore, they allow the assessment of the consistency with operational NWP models.

The IASI-lidar comparison results are in the same order of magnitude that was expected knowing the results of Pougatchev et al. (2009) in the free troposphere (MB ~ 0.6 °C), but show a strong difference of temperature estimates within the PBL, even greater than expected (>2 °C error). These differences can be explained by the weighting functions of the IASI instrument which are not peaking close to the surface but rather between 2 and 3 km AMSL (Prates et al. 2016). IASI radiances are assimilated in the NWP models, but with a low weighting function below 2-3 km (via the variance/covariance matrix of error) (Bormann et al. 2016). This explains the better agreement observed between the lidar-derived vertical profile of temperature and the model estimates. Indeed, regarding models, despite a positive bias (MB > 1 °C), forecasts for the same period match observations well (in average: COR > 0.9, RMSE ~1 °C). Nonetheless, some slight differences still have to be noted within the PBL, particularly around the PBL top. In this case, the difference between ERA5 forecasts and reanalysis shows no significant difference. The difficulty for IASI to sample temperature inversions around 1.5 km AMSL may still influence reanalysis temperature estimates around these particular inversions through the assimilation process, as model profiles tend to be smoother than observations compared with the lidar, which is associated with a higher vertical resolution.

In conclusion, this study demonstrates the complementarity between passive spaceborne sounders like IASI and ground-based PRR lidar such as WALI to monitor the lower atmospheric layers. The ability of WALI to continuously trace the diurnal cycle of the PBL allows to perform validation of level 2 products from spaceborne instruments like IASI as well as to assess the capacities of meteorological models to retrieve the atmospheric temperature; in particular during extreme events. This capacity could benefit future space missions such as IASI-NG (Crevoisier et al. 2014) and the new generation of numerical forecast models (Brousseau et al. 2016).

**Acknowledgments.** This work was supported by the Commissariat à l’Energie Atomique et aux énergies alternatives (CEA) and the Centre National d’Études Spatiales (CNES). The authors would like to thank Météo-France for the availability of the weather station and radiosounding data. The authors especially acknowledge the following contributors who provided the AROME forecast outputs: Thomas Rieutord (CNRM/GMEI), Zied Sassi (CNRM/GMAP) and especially Axel Roy (CNRM/GMEI). ECMWF data used in this study have been obtained from the Copernicus Climate Change Service Climate Data Store (<https://cds.climate.copernicus.eu/cdsapp#!/home>); the authors are grateful for the availability of ERA5 products and particularly acknowledge Paul Berrisford (ECMWF) for his help and explanations. The IASI data used in the paper have been obtained from the EUMETSAT website (<https://www.eumetsat.int/website/home/Data/Products/Atmosphere/index.html>).

## **Appendix A: Time-series of statistical indicators between lidar temperature retrievals and forecast operational products**

The computed values of the three indicators used in this study, namely the Correlation Coefficient (COR, Figure A1), the Mean Bias (MB, Figure A2) and the centred root mean square error (RMSE, Figure A3), are presented in Appendix A between the lidar dataset and the concomitant NWP model forecast products discussed in this work. For the two ERA5 products, the computation is made for the 18 available forecast steps. For the AROME output, the computation is made for 23 forecast steps.

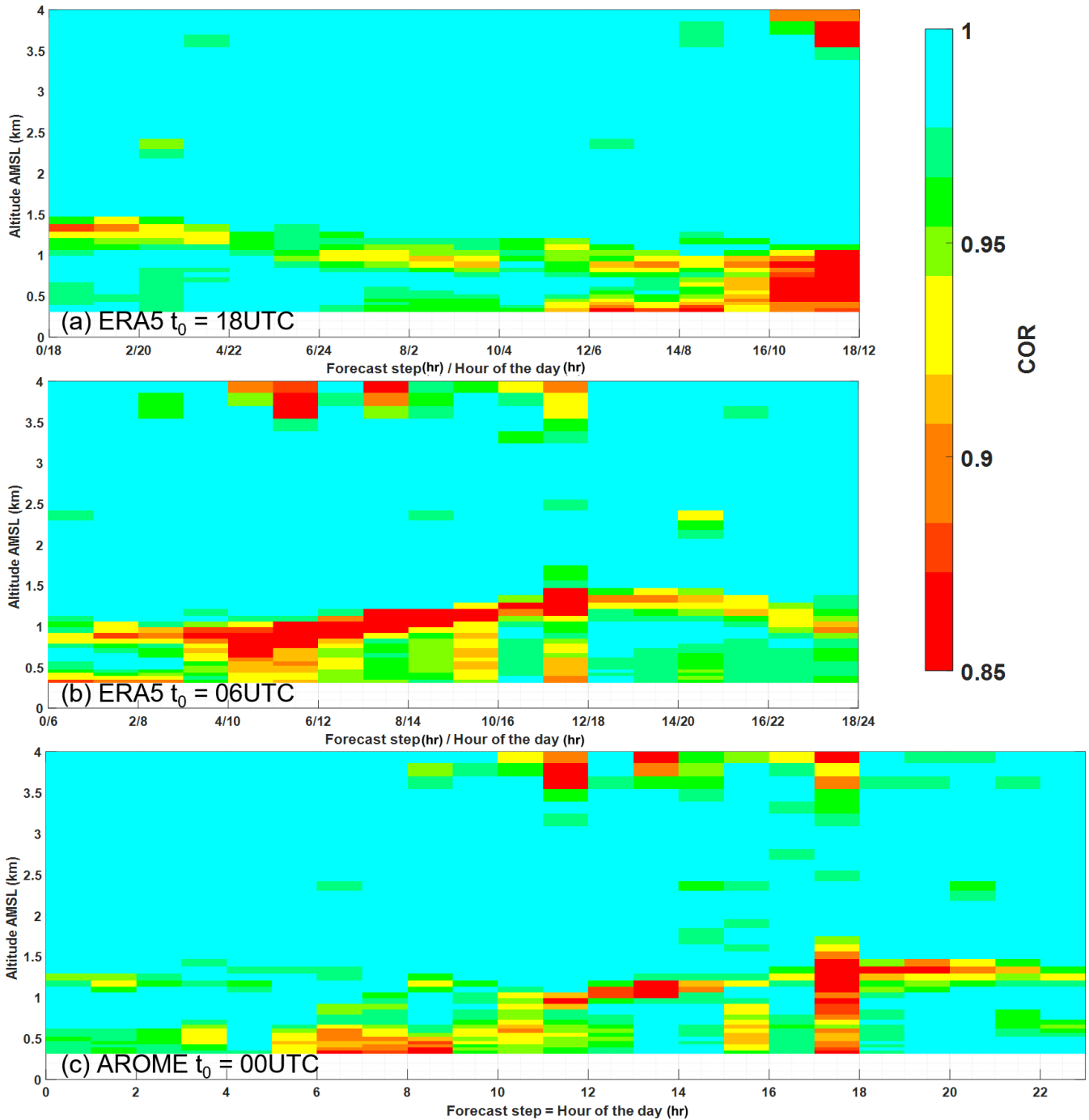


Figure A1: Time-series of correlation coefficient (COR) for the three forecast products (i.e. AROME  $t_0 = 0000$  UTC, ERA5  $t_0 = 0600$  UTC, and ERA5  $t_0 = 1800$  UTC, from bottom to top) represented in colour in function of altitude and forecast steps.

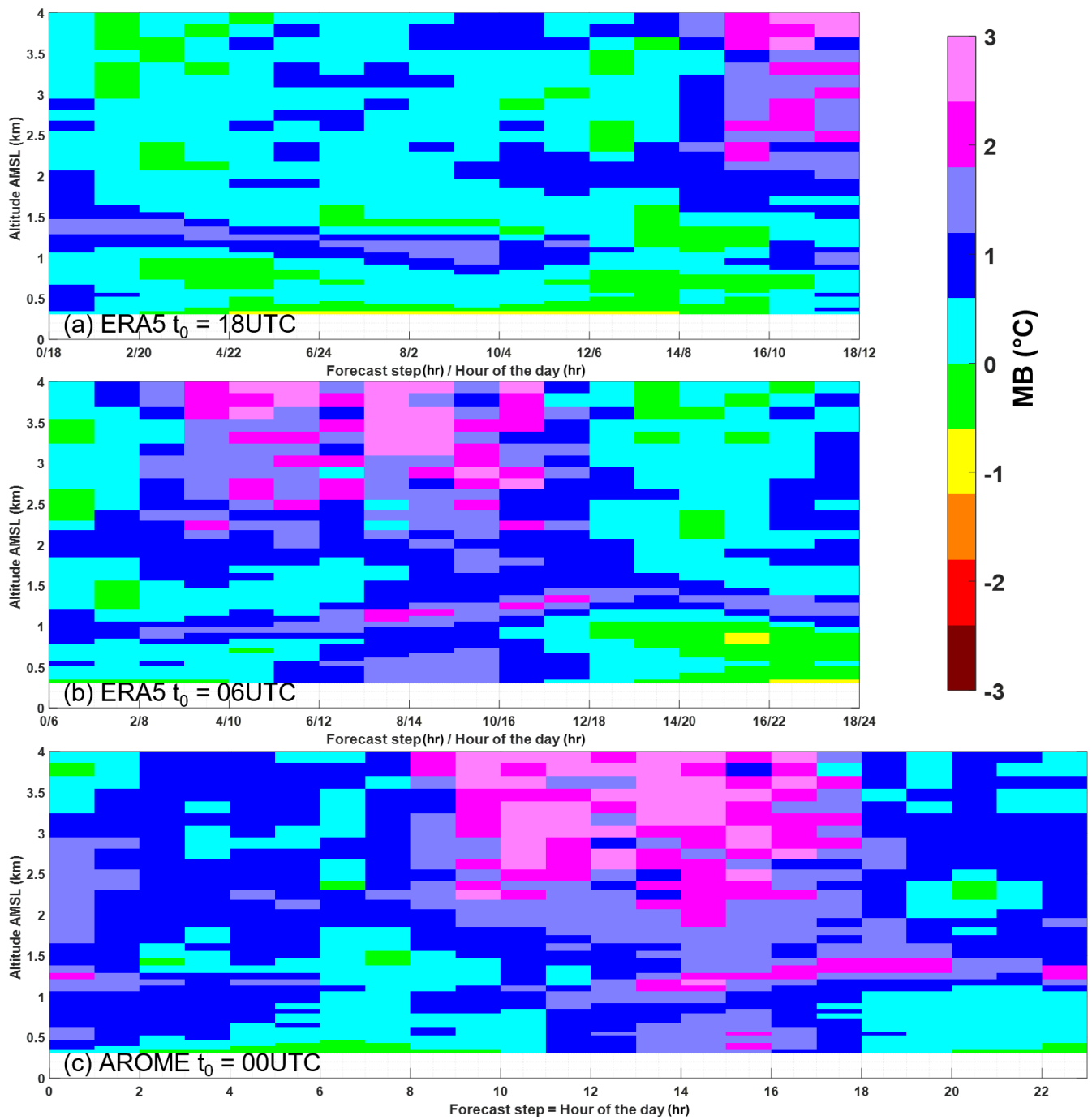


Figure A2: Same as Figure A1 but with the mean bias (MB) instead of the COR.

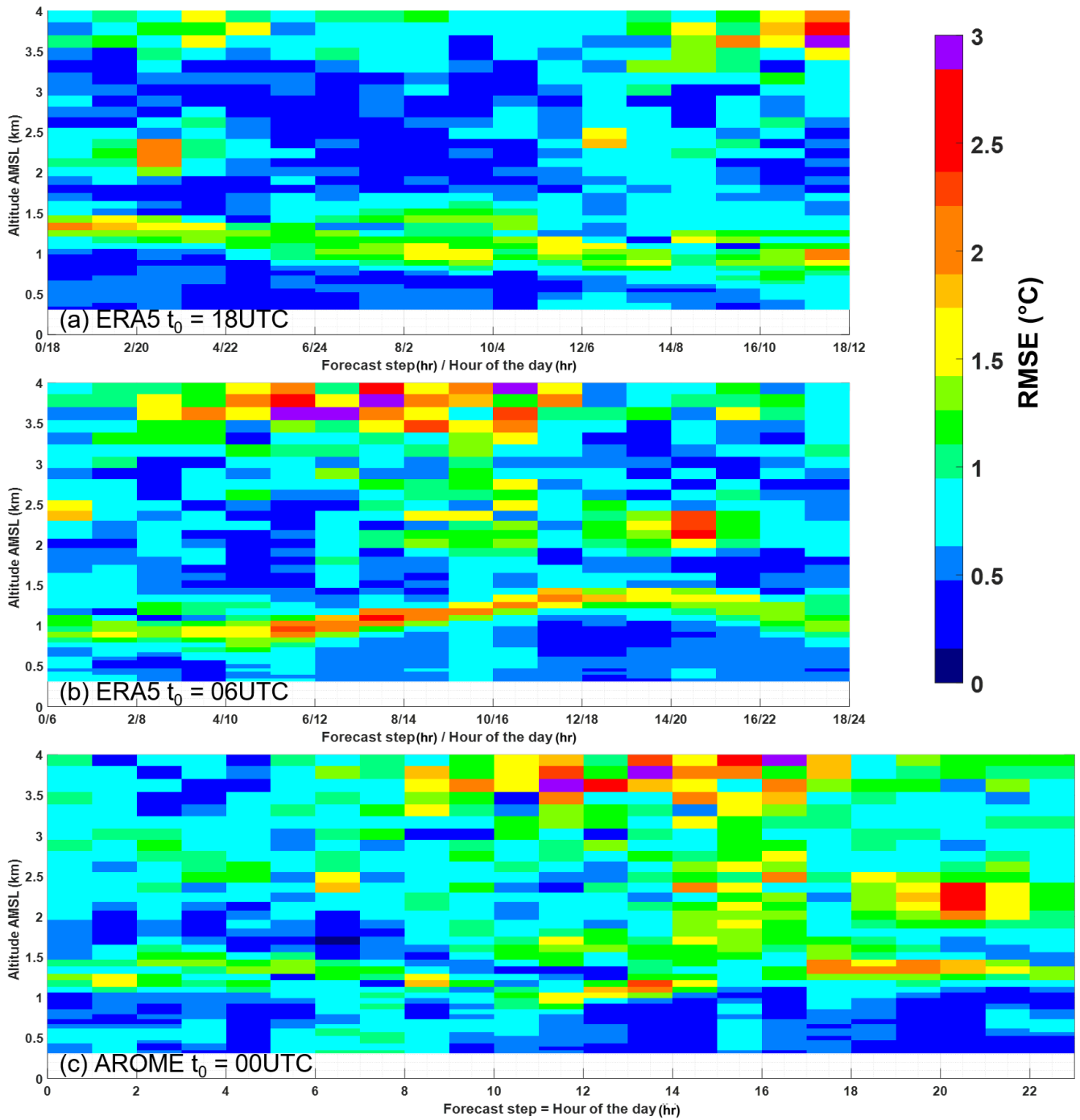


Figure A3: Same as Figure A1 but with the centred root mean square error (RMSE) instead of the COR.

### 4.3 Conclusion

Les premières mesures issues des canaux Raman rotationnels du lidar WALI ont permis le suivi continu de la température dans la basse troposphère, pendant 6 jours en février 2018. Ces observations peuvent se diviser en trois périodes distinctes de durée équivalente définies par la température de l'air. La première période (21/02 ~15h – 23/02 ~12h), par laquelle débute les observations, est typique d'une situation

hivernale dans la norme climatique à la latitude de Paris. La période qui suit (23/02 ~12h – 25/02 ~12h) est caractérisée par une masse d'air chaude advectée au-dessus de la couche limite. Des rétro-trajectoires calculées avec le modèle HYSPLIT montrent que cette masse d'air provient du bassin méditerranéen. En passant au-dessus des Alpes, son contenu en eau a chuté après des précipitations qui ont augmenté sa température par relâchement de chaleur latente. Durant cette seconde période, une forte inversion de température est présente au sommet de la couche limite. Enfin, cette masse d'air chaude est chassée par un flux de Nord-Est qui amène de l'air froid et sec, en provenance de Sibérie, jusqu'en Europe de l'Ouest (25/02 ~12h – 27/02 ~8h). Ce flux d'air froid est canalisé par une configuration de blocage météorologique de type Omega avec un puissant anticyclone stabilisé au Nord de la Scandinavie. Ce type de configuration avec un anticyclone très haut est peu fréquente. Elle est souvent déclenchée à la suite d'une perturbation du vortex polaire. Il en résulte souvent des vagues de froid dans des zones au climat océanique qui sont peu habituées à ces températures. La vague de froid de février 2018 est de faible envergure en France par rapport à des événements historiques comme l'hiver 1956, mais fait partie des plus tardives.

Cette série de mesure offre donc un éventail de température large et compressé dans le temps qui a motivé un exercice d'inter-comparaison entre les mesures à haute résolution spatiotemporelle du lidar WALI et les produits opérationnels IASI d'une part, et les prévisions/réanalyses de modèles opérationnels d'autre part. Dans un premier temps, les données acquises par lidar sont étalonnées à l'aide des radiosondages lancés depuis la station météorologique de Trappes, située à 14 km du laboratoire. Un bilan d'erreur a permis d'estimer la portée du lidar pour une incertitude inférieure au degré Celsius. Cette portée est de 3 km le jour et 6 km la nuit pour une résolution temporelle de 20 min et une résolution verticale variant de 15 m au niveau du sol à 120 m à 6 km.

Les résultats de la comparaison IASI-lidar sont du même ordre de grandeur que ce qui est attendu compte tenu des résultats de Pougatchev et al. (2009) dans la troposphère libre (MB ~ 0,6 °C). En revanche, dans la PBL, la différence est plus importante qu'attendue (erreur >2 °C). Ces différences peuvent s'expliquer par les fonctions de poids de l'instrument IASI qui optimisent la restitution de la température à des altitudes minimales de 2 à 3 km AMSL (Prates et al. 2016). Les radiances IASI sont assimilées dans les modèles de prévisions, mais avec une faible fonction de pondération en dessous de 2-3 km (via la matrice d'erreur de variance/covariance) (Bormann et al. 2016) ; ce sont surtout les radiosondages qui vont contraindre la modélisation dans cette gamme d'altitude. Ceci explique la meilleure concordance observée entre le profil vertical de température dérivé du lidar et les sorties des modèles dans la très basse troposphère. En effet, en ce qui concerne les modèles, malgré un biais positif (MB > 1 °C), les prévisions pour la même période

correspondent bien aux observations (en moyenne :  $COR > 0,9$ ,  $RMSE \sim 1$  °C). Néanmoins, de légères différences sont notées dans la couche limite, en particulier au niveau de son sommet. Dans ce cas, la ré-analyse ERA5 ne montre pas d'amélioration significative par rapport la prévision. Par ailleurs, les inversions de température modélisées sont moins marquées que celles observées par lidar entre 1 et 2 km d'altitude. Sachant que IASI n'est pas sensible à ces inversions, il faudrait s'assurer que l'assimilation ne tend pas à lisser ces inversions dans les modèles malgré sa pondération réduite sous 2-3 km.

Finalement, cette étude démontre la complémentarité entre les sondeurs passifs spatiaux comme IASI et les lidars Raman rotationnels au sol pour échantillonner la colonne atmosphérique en température. Un instrument comme le WALI trouve tout son sens pour des mesures dans la basse et moyenne troposphère où le sondeur IASI est moins performant. Ces premiers kilomètres d'atmosphère sont primordiaux pour les prévisions météorologiques car ils sont à l'origine de la majorité des échanges d'énergie verticaux et horizontaux. La capacité du WALI à échantillonner le cycle diurne de la PBL permet, i) de valider les produits de niveau 2 des instruments spatiaux comme IASI, ii) d'évaluer les capacités des modèles météorologiques à retracer la température atmosphérique, en particulier lors d'événements extrêmes, avec des gradients temporels rapides. Ce potentiel pourrait être mis à profit pour des calibrations / validations de futures missions spatiales telles que IASI-NG (Crevoisier et al. 2014) et la nouvelle génération de modèles de prévision météorologique (Brousseau et al. 2016).



# Chapitre 5 : Propriétés optiques des aérosols, lien avec l'humidité relative

<b>5.1</b>	<b>INTRODUCTION</b> .....	<b>135</b>
<b>5.2</b>	<b>SUIVI DES PROPRIETES OPTIQUES DES AEROSOLS</b> .....	<b>136</b>
5.2.1	IDENTIFICATION DE CLASSES D'AEROSOLS PAR LIDAR .....	136
5.2.2	CAS DES EPISODES DE POLLUTION AUX AEROSOLS.....	141
5.2.3	APPLICATION A L'AEROSOLS DE POLLUTION HIVERNAL EN MILIEU URBAIN – ARTICLE DE BARON ET AL., <i>ATMOSPHERIC CHEMISTRY AND PHYSICS</i> , 2020 .....	144
5.2.4	COMPLEMENTS ET CONCLUSION SUR L'ARTICLE .....	163
<b>5.3</b>	<b>EVOLUTION DES PROPRIETES OPTIQUES DES AEROSOLS EN FONCTION DE L'HUMIDITE RELATIVE</b> .....	<b>165</b>
5.3.1	INTERET DE LA MESURE SIMULTANEE DE LA TEMPERATURE ET DU RAPPORT DE MELANGE DE VAPEUR D'EAU PAR LIDAR .....	165
5.3.2	HUMIDITE RELATIVE MESUREE PAR LIDAR .....	166
5.3.2.1	<i>Définition de l'humidité relative</i> .....	166
5.3.2.2	<i>Erreur sur la mesure de l'humidité relative par lidar</i> .....	168
5.3.3	APPLICATION – CAMPAGNE DE MESURE L – WAIVE.....	169
5.3.3.1	<i>Présentation de la campagne</i> .....	169
5.3.3.2	<i>Premiers résultats</i> .....	172
5.3.3.3	<i>Cohérence avec les observations aéroportées</i> .....	174
5.3.3.4	<i>Hygroscopicité des aérosols</i> .....	176
5.2.4	ENJEUX ET PERSPECTIVES.....	178
<b>5.3</b>	<b>CONCLUSION</b> .....	<b>ERREUR ! SIGNET NON DEFINI.</b>

## 5.1 Introduction

Outre la mesure de la température atmosphérique, la valeur ajoutée d'un système lidar polyvalent comme le WALI réside dans le couplage des différentes voies d'acquisition. Une telle synergie permet d'étudier des processus à fine échelle mêlant les propriétés des aérosols avec des paramètres météorologiques, et en premier lieu l'humidité relative. Les approches par prélèvement *in situ* pour l'étude des cycles couplés entre aérosols et vapeur d'eau sont parfois rendus difficile par des méthodes invasives. Par exemple, de nombreux appareils de mesure comme les néphélomètres, aethalomètres, granulomètres travaillent souvent dans des modes de fonctionnement où l'hygrométrie à l'entrée de la cavité de mesure est contrôlée et donc non représentative du milieu atmosphérique. L'approche par télédétection offre la possibilité de mesurer l'évolution des propriétés optiques des particules en fonction de l'évolution des paramètres d'état du milieu de manière non invasive. Cette approche n'est pas sans réserve puisque des évaluations quantitatives de la composition chimique et de la granulométrie de l'aérosol sont souvent nécessaires et difficilement accessibles de manière résolue dans la colonne d'air (a fortiori par lidar). Toutefois, un système tel que WALI permet un suivi continu des propriétés optiques des aérosols et de l'humidité relative, par le couplage entre les canaux température et vapeur d'eau, pour retracer les variabilités liées au cycle journalier et mieux comprendre les cycles couplés des aérosols et de la vapeur d'eau.

Pour comprendre ces interactions, il est au préalable nécessaire de restituer les propriétés optiques des aérosols de manière continue. Dans ce chapitre sont présentés les résultats obtenus et publiés sur le suivi des propriétés optiques des aérosols urbains pendant deux événements de pollution intense en région parisienne. Auparavant, les valeurs typiques décrites dans la littérature pour le ratio lidar (LR) et le ratio de dépolarisation linéaire particulaire (PDR) sont exposées pour les quatre grandes classes d'aérosols le plus fréquemment rencontrés dans la troposphère. L'étude de l'évolution des propriétés optiques des aérosols avec l'humidité relative, finalité de cette thèse, est sous forme de résultats préliminaires et de perspectives. Il sera néanmoins montré comment retrouver l'humidité relative à partir du lidar WALI et avec quelle précision escomptée. Des exemples seront présentés sur la campagne L-WAIVE du projet ANR WAVIL à laquelle j'ai participé. Il est à noter que les données acquises pendant ce travail de thèse, au cours de plusieurs campagnes de mesures, permettront d'aboutir à terme à des résultats scientifiques concernant les cycles couplés des aérosols, de la vapeur d'eau et des nuages.

## 5.2 Suivi des propriétés optiques des aérosols

Identifiés comme la source majeure d'incertitudes pour les projections climatiques (IPCC, 2001, 2007, 2013), les aérosols sont depuis plusieurs décennies le sujet de nombreuses études scientifiques impliquant leur mesure (par exemple, Bedoya-Velásquez et al., 2018; Chazette et Lioussé, 2001; Dubovik et King, 2000; Hamonou et al., 1997; McMurry, 2000) ou leur modélisation (par exemple, Bocquet et al., 2015; Boucher et Anderson, 1995; Haywood et Boucher, 2000; Kim et al., 2015). Les possibilités de suivi des aérosols par lidar de manière résolue dans la colonne atmosphérique ne sont pas nouvelles ; elles ont débuté avec l'observation de la stratosphère (par exemple, Chazette et al., 1995; Reagan et al., 1989) et ont motivé la création de réseaux de mesure pour un suivi à l'échelle planétaire. Les plus emblématiques sont le Network for the Detection of Atmospheric Composition Change (NDACC) dont les observations ont commencé dans la stratosphère en 1991 pour descendre actuellement vers la troposphère (Carswell et al. 1991; Hauchecorne, Chanin, et Keckhut 1991; Duflot et al. 2017), le Micro-Pulse Lidar NETwork (MPLNET) déployé majoritairement en Amérique du Nord (Berkoff et al. 2004) et le European Aerosol Research Lidar NETwork (EARLINET), développé en Europe (Pappalardo et al. 2014). En complément de la surveillance globale, apanage des capteurs spatiaux, la qualité de mesure des instruments disposés au sol permet d'étudier précisément les propriétés optiques des aérosols de la basse et moyenne troposphère et les processus associés (transport, vieillissement, précipitations).

### 5.2.1 Identification de classes d'aérosols par lidar

Pour caractériser une espèce d'aérosol, le ratio lidar (LR, Fernald et al. (1972)) et le ratio de dépolarisation linéaire particulière (PDR, Schotland et al. (1971)) sont deux paramètres intensifs souvent utilisés conjointement, parmi d'autres (Burton et al. 2012). Dans cette section, ces paramètres sont discutés pour les quatre grandes classes d'aérosols les plus présentes dans la troposphère, et qui ont par exemple été étudiées durant le programme international Chemistry – Aerosol Mediterranean Experiment (ChArMEx), où une spéciation par lidar Raman a été effectuée avec succès par une première version de l'instrument WALI (Chazette, Totems, Ancellet, et al. 2016).

En terme d'émissions, les embruns à l'interface océan-atmosphère (70% de la surface de la Terre) sont la première source d'aérosols avec 1400 à 6800 Tg/an (IPCC, 2013). Des valeurs de LR et PDR pour les aérosols marins sont listés dans le Tableau 7. Ces aérosols naturels présentent classiquement un LR faible autour de 25 sr et un PDR bien inférieur à 10 % car généralement sphériques.

**Tableau 7 : Propriétés optiques des aérosols mesurés par lidar. Restriction aux aérosols marins.** Dans ce tableau, AERONET correspond au réseau international de photomètre solaire (« Aerosol Robotic Network »). SAMUM (« SAharian Mineral dUst experiMent ») et INDOEX (« the INDIan Ocean EXperiment ») les acronymes de campagnes de mesures internationales. Et SODA (« Synergized Optical Depth of Aerosols ») est un produit mixte CALIPSO/CLOUDSAT fournissant l'épaisseur optique des aérosols au-dessus des océans. N.B : Pour Burton et al. (2012), les valeurs sont respectivement les 25<sup>e</sup> – 75<sup>e</sup> (5<sup>e</sup> – 95<sup>e</sup>) percentiles. La même notation pour les autres références correspond à un intervalle (minimum – maximum).

<i>Classe d'aérosol</i>	Site / campagne	Instrument(s)	Longueur d'onde (nm)	LR (sr)	PDR (%)	Référence
<i>Aérosols marins</i>	Réseau AERONET, global	Photomètre solaire	550	28 ± 5	–	Cattrall et al. (2005)
	Global	CALIOP / SODA	532	32 ± 17	–	Dawson et al. (2015)
	Açores, Portugal	Lidar Rayleigh-Mie / Model	532	20 – 26	–	Flamant et al. (1998)
	Amérique du Nord	HSRL	532	15 – 25	< 10	Burton et al. (2012)
	Océan indien / INDOEX	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	532	23 ± 5	–	Müller et al. (2007)
	Cap Vert / SAMUM	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	24 ± 6	2 ± 1	Groß et al. (2011)
	Japon	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	36 ± 19	8 ± 4	Hara et al. (2017)
	Baléares / ChArMeX	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	25 ± 6	~ 0	Chazette et al. (2016)
	Gibraltar / SUSIE	Lidar Rayleigh-Mie aéroporté	355	26 ± 2	~ 1	Chazette (2020)

On trouve ensuite les poussières désertiques (« mineral dust », « desert dust » ou « dust » en anglais dans la littérature) provenant majoritairement des zones arides avec l'Afrique du Nord (Sahara) comme première zone contributrice (55 %) des ~1536 Tg/an (Ginoux et al. 2012) émis à l'échelle globale. Dans le Tableau 8 les propriétés de ces aérosols sont reportés avec des LR variables, typiquement de 30 à 80 sr, à 355 nm (Papayannis et al. 2008), du fait de la grande variété des minéraux selon les différentes source. Les poussières désertiques sont souvent associées à une forte dépolarisation avec des PDR supérieur à 15 %. Il est toutefois à noter que des valeurs inférieures peuvent être mesurées (Chazette 2020; Papayannis et al. 2008), de l'ordre de la dizaine de pourcents. Lorsque ces aérosols sont mélangés, avec de la pollution ou des aérosols marins par exemple, les valeurs de LR et PDR sont susceptibles d'évoluer (exemples dans le Tableau 8).

**Tableau 8 : Comme le Tableau 7, pour les poussières désertiques, pures ou mélangées à des aérosols d'autre origines (aérosols de feu de biomasse ou pollution, par exemple).**

<i>Classe d'aérosol</i>	Site / campagne	Instrument(s)	Longueur d'onde (nm)	LR (sr)	PDR (%)	Référence
<i>Poussière désertique pure (« pure dust »)</i>	Réseau AERONET, global	Photomètre solaire	550	42 ± 4	–	Cattrall et al. (2005)
	Amérique du Nord	HSRL	532	44 – 51 (41 – 57)	31 – 33 (30 – 35)	Burton et al. (2012)
	Sahel, Moyen Orient, Inde	CALIOP / AERONET	532	50, 39, 44	–	Schuster et al. (2012)
	Chypre	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	532	34 – 39	28 – 35	Mamouri et al. (2013)
	Maroc et Cap Vert / SAMUM	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	58 ± 7	25 ± 3	Groß et al. (2011) Müller et al. (2012)
	Europe, EARLINET	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355 / 532	30 – 80	10 – 25	Papayannis et al. (2008)
	Thessalonique, Grèce	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	57 ± 29	–	Amiridis et al. (2005)
	Maldives / INDOEX	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	38 ± 5	–	Müller et al. (2007)
	Pékin, Chine	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	35 ± 5	–	Müller et al. (2007)
	Tokyo, Japon	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	49 ± 9	~ 20	Murayama et al. (2004)
	Péninsule Ibérique	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	40 – 55	19 – 31	Fernández et al. (2019)
	Niamey, Niger	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	~ 50	–	Chazette et al. (2007)
	Baléares / ChArMeX	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	45 ± 6	~ 20	Chazette et al. (2016)
	Kazan, Russie	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	43 ± 14	23 ± 2	Dieudonné et al. (2015)
	Omsk, Russie	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	50 ± 13	17 ± 2	Dieudonné et al. (2015)
Paris, France	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	50 ± 15	~ 20	Chazette et al. (2017)	
Gibraltar / SUSIE	Lidar Rayleigh-Mie aéroporté	355	45 ± 10	10 – 15	Chazette (2020)	
<i>Poussière désertique mélangées</i>	Amérique du Nord	HSRL	532	30 – 42 (15 – 63)	13 – 20 (10 – 28)	Burton et al. (2012)
	Maroc et Cap Vert / SAMUM	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	75 ± 9	18 ± 3	Groß et al. (2011) Müller et al. (2012)
	Niamey, Niger	Lidar aéroporté	355	~ 67	–	Chazette et al. (2007)
	Baléares / HyMeX	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	47 – 63	16 – 19	Chazette et al. (2014)
	Paris, France	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	40 ± 10	4 – 8	Chazette et al. (2017)
	Kazan, Russie	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	75 ± 9	13 ± 3	Dieudonné et al. (2015)

Un ordre de grandeur en dessous des émissions d'aérosols naturels, on retrouve les aérosols de pollution et les aérosols de feux de biomasse. Si ces derniers peuvent parfois provenir de feux déclarés de manières naturelles (foudre), ce type d'aérosols est souvent imputable aux activités anthropiques (déforestation, feux de brousse, écobuage, accident ou négligence). Ces deux classes d'aérosols sont émises à hauteur de quelques centaines de Tg/an (IPCC, 2013) et se caractérisent en général par leur capacité à absorber le rayonnement. Cela se traduit par des valeurs de LR plus élevées (cf. Tableau 9 et Tableau 10, souvent supérieures à 70 sr). Le vieillissement de ces aérosols lors de leur transport dans l'atmosphère a été étudié (Liousse et al., 1995; Capes et al., 2008; Cubison et al., 2011) et il résulte souvent en une augmentation du ratio lidar (Alados-Arboledas et al. 2011). Le PDR de ces particules issues majoritairement de combustions et processus industriels est variable mais généralement inférieur à la dizaine de pourcent. Ceci est principalement dû à la sphéricité de ces aérosols hydrophiles.

**Tableau 9 : Comme le Tableau 8 pour les aérosols de feux de biomasse (fraichement émis ou vieillis).**

<i>Classe d'aérosol</i>	Site / campagne	Instrument(s)	Longueur d'onde (nm)	LR (sr)	PDR (%)	Référence
<i>Aérosols de combustion « récents »</i>	Amérique du Nord	HSRL	532	34 – 46 (24 – 54)	3 – 6 (2 – 8)	Burton et al. (2012)
	Goa, Inde / INDOEX	Lidar / Photomètre	523	33 ± 10	–	(Chazette 2003)
	Bucarest, Roumanie	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	73 ± 12	–	Nicolae et al. (2013)
	Bucarest, Roumanie	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	43 ± 7	–	Nicolae et al. (2013)
<i>Aérosols de combustion « vieillis »</i>	Réseau AERONET, global	Photomètre solaire	550	60 ± 8	–	Cattrall et al. (2005)
	Amérique du Nord	HSRL	532	55 – 73 (46 – 87)	4 – 9 (2 – 16)	Burton et al. (2012)
	Maroc et Cap Vert / SAMUM	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	87 ± 17	5 ± 2	Tesche et al. (2011)
	Tokyo, Japon	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	~ 40	5 – 8	Murayama et al. (2004)
	Leipzig, Allemagne	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355 / 532	21 – 67	1,5 – 3	Müller et al. (2005)
	Thessalonique, Grèce	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	39 – 94	–	Amiridis et al. (2009)
	Bucarest, Roumanie	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	32 – 48	–	Nicolae et al. (2013)
	Hentis Bay, Namibie	Lidar / Photomètre	532 / 355	~ 63	< 5	Chazette et al. (2019)

Niamey, Niger	Lidar aéroporté	355	~ 125	–	Chazette et al. (2007)
Paris, France	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	50 ± 15	~2,5	Chazette et al. (2017)
Kazan, Russie	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	107 ± 14	4 ± 2	Dieudonné et al. (2015)
Omsk, Russie	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	76 ± 10	4 ± 2	Dieudonné et al. (2015)

Tableau 10 : Comme le Tableau 8 pour les aérosols de pollution urbaine.

<i>Classe d'aérosol</i>	Site / campagne	Instrument(s)	Longueur d'onde (nm)	LR (sr)	PDR (%)	Référence
<i>Aérosol de pollution urbaine</i>	Réseau AERONET, global	Photomètre solaire	550	71 ± 10	–	Cattrall et al. (2005)
	Amérique du Nord	HSRL	532	52 – 69 (42 – 80)	3 – 8 (2 – 11)	Burton et al. (2012)
	Vallée du Pô, Italie	CALIOP / MODIS	532	83 ± 25	–	Royer et al. (2010)
	Pékin, Chine	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	532	38 ± 7	–	Tesche et al. (2007)
	Europe centrale, EARLINET	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355 / 532	58 ± 12	–	Müller et al. (2007) Mattis et al. (2004)
	INDOEX	Lidar multi-angles / méthode variationnelle	523	~ 66	–	Sicard et al. (2002)
	Omsk, Russie	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	92 ± 18	3 ± 1	Dieudonné et al. (2015)
	Paris, France / LISAIR	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	83 ± 22	–	Raut et Chazette (2007)
	Baléares / ChArMeX	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	66 ± 6	~ 2	Chazette et al. (2016)
	Toulon, France	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	50 ± 10	2 – 4	Chazette et al. (2019b)
	Paris, France / feu industriel	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	50 ± 10	~ 1 ± 0,1	Shang et al. (2018)
	Paris, France	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	83 ± 25	–	Royer et al. (2011)
	Paris, France	Lidar Raman-N <sub>2</sub>	355	72 ± 15 56 ± 15	10 ± 3 5 ± 2	Baron et al. (2020)

Bien qu'il puisse subsister des ambiguïtés pour différencier ces grandes classes d'aérosols, le lidar est un outil permettant d'obtenir un *a priori* assez juste de la nature des aérosols présents dans la colonne atmosphérique (Groß et al., 2011; Burton et al., 2012; Chazette et al., 2016).

Pour les observations lidars depuis l'espace, les algorithmes d'inversion utilisés déduisent une classe d'aérosols *a priori*, par des considérations sur la dépolarisation et des ratios de canaux à différentes longueurs d'ondes. Ensuite, suivant la classe d'aérosols, le ratio lidar est inféré en tirant valeurs publiées dans la littérature. Pour le lidar CALIOP (Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization) de la mission CALIPSO (Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation) et le lidar CATS (Cloud-Aerosol Transport System) à bord de la station spatiale internationale, les valeurs sont données dans le Tableau 11.

**Tableau 11 : Ratio lidar utilisés pour les observations spatiales des lidar CALIOP / CALIPSO et CATS / ISS (tableau tiré de Chazette et al., 2019a).**

Classes des aérosols CALIOP / CATS	Ratio lidar (sr) à 532 nm
Polluted continental or smoke / Polluted continental	70/65
Clean continental / Clean-background	53/55
Clean marine / Marine	23/25
Dust / Dust	44/45
Polluted dust / Dust mixture	55/35
Elevated smoke / Smoke	70/70
Dusty marine / Marine mixture	37/45

### 5.2.2 Cas des épisodes de pollution aux aérosols

Les aérosols de pollution sont par définition émis par les activités humaines (chauffage, trafic, industries, ...) et par conséquent au plus proche de nos lieux de vie. Un épisode de pollution a donc communément une envergure locale ou régionale, bien que de vastes brouillards de pollution persistent en Chine (Chen et Xie 2014), en Asie du Sud-Est (Reid et al. 2013) où sur le sous-continent Indien (Lelieveld et al. 2001). Les aérosols de pollution sont en général cantonnés à la couche limite atmosphérique (CLA), qui selon son développement permet ou non une dilution des émissions. En France, un régime majoritairement océanique et des normes environnementales rigoureuses ne favorisent pas une occurrence fréquente d'épisodes de pollution. Bien que des épisodes (souvent printaniers) puissent s'étendre au-delà de l'échelle régionale (Chazette et Royer 2017), de tels évènements sont souvent restreints aux grands centres urbains comme la région Île-de-France (Menut et al. 2000) ou la région des Hauts de France (Potier et al. 2019). Les zones dont la géographie favorise une accumulation des polluants comme les vallées alpines (Chazette et al. 2005;



Jaffrezo, Aymoz, et Cozic 2005) ou la ville de Grenoble (Largeron et Staquet 2016) sont aussi sujettes à une occurrence accrue d'épisodes de pollution aux particules.

Un épisode de pollution est le résultat de processus complexes impliquant des émissions primaires locales, des transformations physico-chimiques, des phénomènes de transport (import de pollution par exemple) avec une dépendance aux facteurs météorologiques très marquée. Cette combinaison multi-facteurs rend difficile la prédiction d'épisodes de pollution. Leur occurrence est sujette à une certaine saisonnalité, avec l'hiver (Bessagnet et al. 2005) et le printemps (Chazette et Royer 2017) beaucoup plus marqués par les épisodes de pollution aux particules. Toutefois, certains épisodes peuvent émerger en été (Hodzic et al. 2006) en situation de canicule comme en 2003, via des advections de masses d'air ayant séjourné au-dessus de sites d'émission étendus. En hiver, des conditions anticycloniques et un fort refroidissement radiatif de la surface mènent à une forte inversion de température dans les basses couches de l'atmosphère, entravant le développement de la CLA. Associés à des températures proches de 0°C qui entraînent une forte utilisation du chauffage résidentiel dans un environnement densément peuplé, les ingrédients d'un épisode de pollution aux aérosols sont rassemblés et font courir un risque sanitaire à la population (Hogg et Van Eeden 2009). Dans le chapitre précédent, la situation hivernale décrite en termes de champs de température n'a pas donné lieu à un épisode de pollution malgré des températures négatives, la présence d'un anticyclone et un flux de Nord-Est souvent porteur de pollution en provenance de la Ruhr. Ceci s'explique par l'advection d'une masse d'air subpolaire extrêmement froide qui a conduit à un gradient vertical de température négatif, sans inversion thermique, dans la basse et moyenne troposphère. De plus, la position périphérique de la région parisienne vis-à-vis du centre anticyclonique a permis de maintenir un champ de vent non nul (supérieur à 4 ms<sup>-1</sup> d'après les ré-analyses du centre européen ERA5) ne permettant pas une accumulation des émissions d'aérosols.

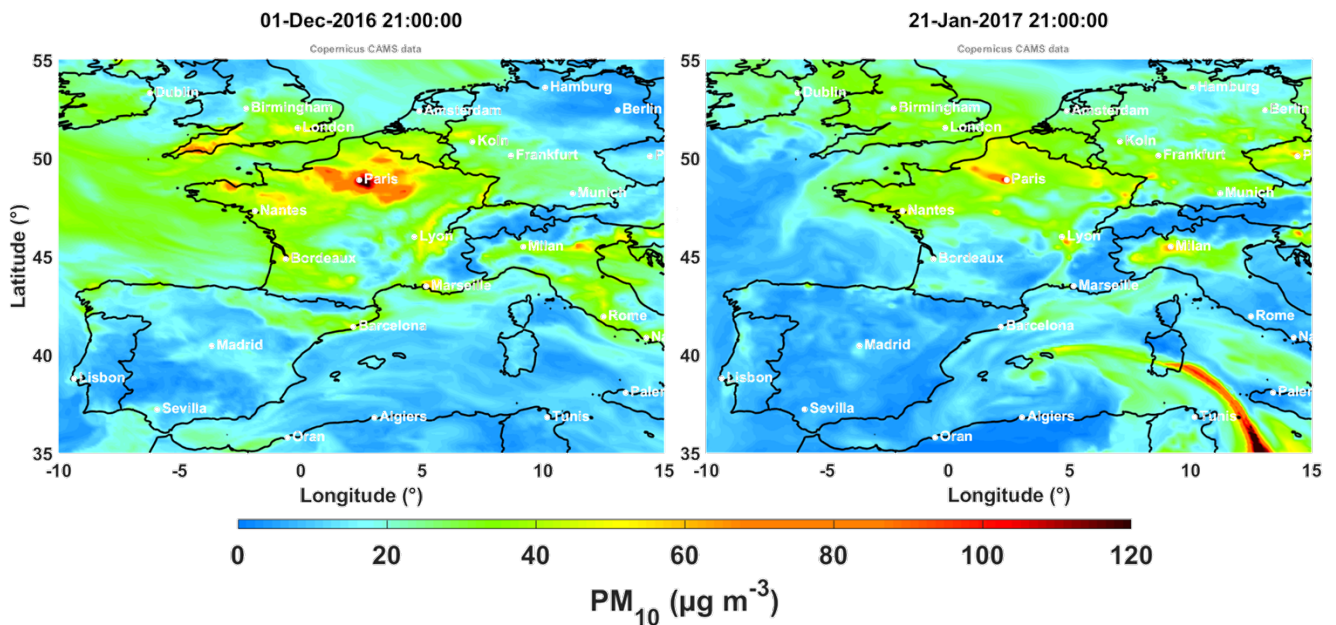


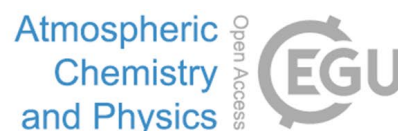
Figure 55 : Cartes des champs de PM<sub>10</sub> modélisés en Europe de l'Ouest pour les 1<sup>er</sup> décembre 2016 (gauche) et 21 janvier 2017 (droite), les deux jours les plus pollués de l'hiver 2016 – 2017. Les données sont issues des ré-analyses du Copernicus Atmospheric Monitoring Service utilisant le modèle de chimie-transport CHIMERE (Menut et al. 2013).

Au contraire, les deux épisodes majeurs ayant eu lieu durant l'hiver 2016-2017, qui sont au cœur de l'article inséré dans la section suivante, sont survenus avec des conditions anticycloniques différentes associées à des vents quasi nuls ( $< 2 \text{ ms}^{-1}$ ). Ces circonstances ont conduit à deux des plus intenses événements hivernaux de pollution aux particules en Île-de-France de la décennie 2007 – 2017. Sur la Figure 55, la modélisation méso-échelle, via le modèle de chimie-transport CHIMERE (Menut et al. 2013), permet de représenter spatialement l'étendue de chacun de ces deux épisodes. On y voit clairement des valeurs de concentration en particules avec un diamètre aérodynamique inférieur à dix microns (PM<sub>10</sub>) extrêmement élevées au niveau de Paris, en particulier en décembre sur cette figure.

La rareté de tels épisodes ne favorise pas leur étude. Ceci se traduit dans la littérature scientifique par une documentation parcellaire de tels événements, en particulier en ce qui concerne les mesures par lidar Raman, qui ne sont pas publiées jusqu'ici à ma connaissance. Le travail que j'ai mené et qui est présenté dans la section suivante a donc été motivé par l'originalité du suivi des propriétés des aérosols en hiver sur Paris. Les mesures lidar apportent une dimension supplémentaire aux prélèvements *in situ* plusieurs fois documentés (Crippa et al. 2013; Bressi et al. 2013) et permettent d'établir un lien entre propriétés optiques des aérosols de la CLA et mesure de concentration massique au sol (par exemple : Raut and Chazette, 2009a).

### 5.2.3 Application à l'aérosols de pollution hivernal en milieu urbain – article de Baron et al., *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2020

Atmos. Chem. Phys., 20, 6749–6768, 2020  
https://doi.org/10.5194/acp-20-6749-2020  
© Author(s) 2020. This work is distributed under  
the Creative Commons Attribution 4.0 License.



## Remote sensing of two exceptional winter aerosol pollution events and representativeness of ground-based measurements

Alexandre Baron, Patrick Chazette, and Julien Totems

Université Paris-Saclay, CNRS, CEA, UVSQ, Laboratoire des sciences du climat et de l'environnement, 91191,  
Gif-sur-Yvette, France

**Correspondence:** Alexandre Baron (alexandre.baron@lsce.ipsl.fr)

Received: 16 May 2019 – Discussion started: 6 August 2019  
Revised: 18 April 2020 – Accepted: 5 May 2020 – Published: 9 June 2020

**Abstract.** Two intense winter aerosol pollution events, which took place in winter 2016–2017 in Paris, were monitored using a ground-based N<sub>2</sub>-Raman lidar, in the framework of WASLIP (Winter Aerosol Survey by Lidar In Paris), a dedicated field campaign that was carried out in this area from 1 November 2016 to 31 January 2017. The data analysis uses the synergy between ground-based and spaceborne lidar observations and data from the air quality monitoring network Airparif. The first severe aerosol pollution event began on 30 November 2016 and ended on 2 December, concerning a circular area of  $\sim 250$  km in diameter around Paris. The maximum PM<sub>10</sub> was  $121 \pm 63 \mu\text{g m}^{-3}$  (regional spatial average  $\pm$  SD) for the Airparif ground-based PM monitoring stations, and the aerosol extinction coefficient (AEC) ranged from 0.2 to  $1 \text{ km}^{-1}$ . The second event took place from 20 to 23 January which covered all of the northwestern Europe, with maxima of PM<sub>10</sub> around  $156 \pm 33 \mu\text{g m}^{-3}$  and AEC between 0.6 and  $1 \text{ km}^{-1}$ , within the winter atmospheric boundary layer. Although these two major aerosol pollution events did not occur under identical anticyclonic weather conditions, they share very low planetary boundary layer (PBL) heights, down to 300 m above ground level. Moreover, they are associated with significantly different aerosol lidar ratios:  $72 \pm 15$  and  $56 \pm 15$  sr, respectively in December and January. Such results are consistent with available spaceborne lidar data,  $70 \pm 25$  sr from CALIOP (Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observations), and values found in the literature. During these two events, the continuous temporal evolution of the aerosol extinction coefficient allows us to investigate the representativeness of optical parameters found in the planetary boundary layer to assess surface aerosol concentration. No one-to-one relationship be-

tween the aerosol optical thickness (AOT) and PM<sub>2.5</sub> values stands out within our study. In contrast, the maximum aerosol extinction coefficient found within the planetary boundary layer correlates well with PM<sub>2.5</sub> at the ground ( $R^2 \sim 0.75$ , specific extinction cross section of  $9.4 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ ) for these polluted events. Thus this lidar-derived aerosol extinction coefficient is identified as a consistent variable to monitor the pollution during winter events.

### 1 Introduction

According to the report of the Organization for Economic Co-operation and Development (OECD), particulate matter (PM) is one of the main anthropogenic factors affecting human health and agriculture (OECD, 2016). Indirectly, this pollution induces substantial economic tolls: the same report claims that global healthcare costs related to air pollution rose to USD 21 billion in 2015 and projections reach up to USD 176 billion by 2060. Furthermore, aerosols are responsible for a significant decrease in life expectancy in large urban and industrial areas (IIASA, 2000). Whereas they represent a small portion of the cumulative exposure of an urban dweller, severe aerosol pollution events are known for their important short-term impact on human health and especially excess mortality in at-risk populations (Hogg and Van Eeden, 2009). Once advected in the atmosphere, their effects on health and climate (IPCC, 2013) extend from regional to global scales.

Places where inhabitants are the most concerned and vulnerable to particulate pollution are megacities (Molina and Molina, 2004). Thus, several studies were performed in such

conurbations in order to investigate the aerosol impacts on air quality and climate, such as in Mexico in 2016 with the Megacity Initiative: Local and Global Research Observations (MILAGRO, Molina et al., 2010) or in California during California Nexus (CalNex, e.g. Hersey et al., 2013). International field experiments were also carried out in Europe as well as in the United Kingdom, with the M25 (ring road around London) experiment (McMeeking et al., 2012), or in southern France with the Expérience sur Site pour Contraindre les Modèles de Pollution atmosphérique et de Transport d'Emissions (ESCOMPTE, Cros et al., 2004). Nevertheless, air quality remains a great challenge to resolve in the future as the European Commission estimates that 90 % of EU citizens are regularly exposed to air pollutant levels above the World Health Organization (WHO) guidelines (European Commission, 2015).

Being one of the densest urban areas in Europe, with more than 18 % of the French population concentrated in 2.2 % of its metropolitan territory (Pereira et al., 2013; Ile de France Prefecture, 2017), the Paris megacity (Paris city limits extended to all its suburbs in the Île-de-France region) is often concerned by air pollution issues. Several field campaigns have been conducted in the Paris area: the Etude et Simulation de la Qualité de l'air en Île-de-France project (ESQUIF; Vautard et al., 2003; Chazette et al., 2005; Hodzic et al., 2006), Lidar pour la Surveillance de L'AIR (LISAIR; Raut and Chazette, 2007), and the “Megacities: Emissions, urban, regional and Global Atmospheric POLLution and climate effects, and Integrated tools for assessment and mitigation” project (MEGAPOLI; e.g. Von Der Weiden-Reinmüller et al., 2014; Freney et al., 2014). These campaigns allowed us to assess the environmental impacts of the Paris megacity (Skylakou et al., 2014) mainly during summer and improved the predictability (Beekmann, 2003; Tombette et al., 2009; Royer et al., 2011b) and the source apportionment of aerosol pollution events (Sciare et al., 2010; Crippa et al., 2013a; Bressi et al., 2013, 2014; Pikridas et al., 2015). So far, existing studies of winter aerosol pollution events (APEs) in Paris were mainly derived from modelling (Bessagnet et al., 2005; Crippa et al., 2013b; Beekmann et al., 2015). They demonstrate that in weather-blocking conditions and with a cold surface, the PBL height is low, and therefore the vertical dispersion of pollution is poor, resulting in forecast uncertainties (e.g. Steeneveld, 2011).

The use of in situ sounding or lidar remote sensing techniques which enable a high vertical resolution can provide valuable data to air pollution models. Establishing a relationship between particle concentration at ground level and optical observations within the PBL may enhance the predictability of air pollution peaks and improve the assessment of air quality on a continental scale (Wang et al., 2013). Many authors seek to derive such a relationship between  $PM_{2.5}$  and optical observations, mainly performed from satellites, as shown in the recent review study of Chu et al. (2016).

Hence, the main purpose of this paper is to describe the meteorological conditions that prevail during the two significant winter APEs, to characterize observed APEs using in situ and remote sensing data, and finally to investigate the link between ground-based aerosol concentrations and optical properties of particles trapped within the winter PBL. This study is based on a specific field campaign performed during the most severe winter APEs that occurred in the Paris area since 2009. The need for such a study to enhance the accuracy of  $PM_{2.5}$  assessment using surface aerosol extinction is clearly identified in the conclusion of Toth et al. (2014), opening the way for more accurate assessments of air quality on a global scale with the upcoming new generation of both ground-based (e.g. ref EARLINET, Pappalardo et al., 2014) and spaceborne lidar, such as those carried on board ADM-Aeolus (Flamant et al., 2008), and further the European spaceborne mission EarthCARE (Illingworth et al., 2015).

To draw a relationship between surface concentration of aerosol and their optical properties within the PBL, the following approach is used in this paper: (i) lidar measurements are inverted in order to retrieve aerosol optical properties, such as the lidar ratio (LR) and the aerosol extinction coefficient (AEC), (ii) the linear particle depolarization ratio (LPDR) is then assessed and used along with the LR to identify the aerosol typing, (iii) the meteorological situation is examined to identify the origin of pollution aerosol over the Paris area, (iv) spaceborne observations are used when available to corroborate the meteorological analysis and give a regional view of the pollution plume, and (v) the link between the aerosol optical properties within the PBL and the ground-based particulate matter is studied.

Section 2 presents the instrumentation and datasets involved in the study. Passive and active remote sensing measurements are mainly used, completed by meteorological model outputs and the dataset of the Airparif air quality measuring network. We highlight the most polluted winter days of the past decade in Sect. 3 from archived ground-based  $PM_{10}$  measurements and analyse the associated weather situations. In Sect. 4 we analyse in depth the measurements performed during winter 2016/2017, which included those of a  $N_2$ -Raman ground-based lidar. This period was associated with two exceptional APEs whose characteristics are described in Sect. 5: we take advantage of the entire lidar dataset of these APEs. It covers a wide range of aerosol load, from pollution-free days to severely polluted days. These data are analysed in terms of correlation between ground level and aerosol optical properties within the PBL using Airparif PM measurements and lidar vertical profiles, respectively. Finally, Sect. 6 concludes this paper by summarizing the main results.

## 2 Methodology and tools

This section presents the instruments and tools used during and following the field campaign held from November 2016 to the end of January 2017.

### 2.1 Ground-based lidar measurements and analysis

In the framework of the WASLIP campaign, the compact 355 nm Lidar for Automatic Atmospheric Surveys Using Raman Scattering (LAASURS) was deployed close to the centre of Paris at the QualAir station (<http://qualair.aero.jussieu.fr/>, last access: 5 June 2020) located on the rooftop of the Paris Sorbonne University Jussieu Campus (48°50'50" N, 2°21'20" E), ~100 m above mean sea level (AMSL). This experimental site is part of the OSU Ecce Terra (<http://ecceterra.sorbonne-universite.fr/fr/index.html>, last access: 5 June 2020) and has been set up by the Laboratoire d'Etudes du Rayonnement et de la Matière en Astrophysique et Atmosphères (LERMA) and Laboratoire Atmosphères, Milieux, Observations Spatiales (LATMOS) essentially for atmospheric studies. The LAASURS has been successfully involved in former field campaigns such as in Chazette and Totems (2017) and Dieudonné et al. (2015, 2017), and it is extensively described in Royer et al. (2011a).

#### 2.1.1 Technical characteristics

The LAASURS has been developed at LSCE for ground-based or airborne aerosol remote sensing in the field. The reception is composed of three channels, two using elastic scattering filtered at  $354.7 \pm 0.1$  nm and separated into parallel and perpendicular polarizations of light with respect to the laser emission, as well as a third channel using the inelastic nitrogen vibrational Raman scattering induced by the laser and filtered at  $387.6 \pm 0.1$  nm (Chazette et al., 2016). The three channels provide measurements from their short overlap distance of ~150 m up to 20 km. The overlap factor is calculated during night-time using a horizontal line of sight as described in Chazette et al. (2007) assuming a homogeneous layer of aerosols from the emission to 1.5 km horizontal distance. In the lowermost 150 m, the uncertainties induced by the overlap factor do not permit assessment of aerosol optical properties with a sufficient level of confidence. The emission is provided by an Ultra<sup>®</sup> Nd:YAG laser manufactured by Quantel delivering 6–7 ns pulses of 30 mJ at a 20 Hz frequency. The initial vertical and temporal resolutions of the lidar are respectively 0.75 m and 50 s (1000 laser shots averaged). More characteristics are given in Table 1 and the casing enclosing the lidar is presented in Fig. 1.

#### 2.1.2 Inversion of lidar profiles

To obtain a sufficient signal-to-noise ratio (SNR;  $\text{SNR} > 10$ , Royer et al., 2011a) from the N<sub>2</sub>-Raman channel during daytime, the vertical resolution is set to 15 m and lidar profiles

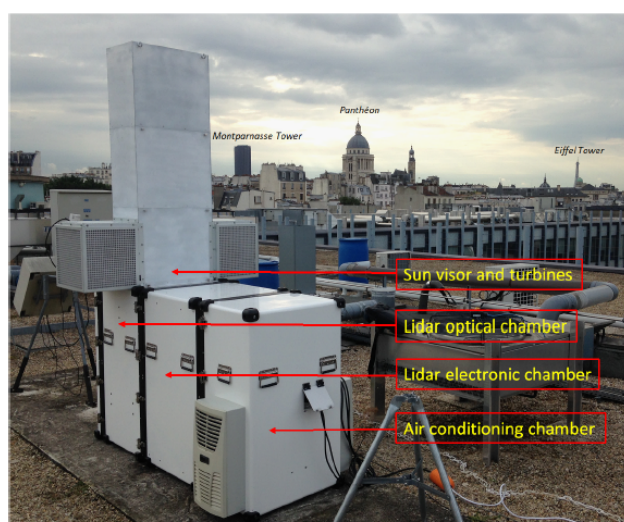
are averaged over 10 min. Two methods can be used to retrieve the aerosol optical parameters: (i) a synergy between the elastic channels and a sun photometer as in Chazette (2003), Pahlow et al. (2006), Raut and Chazette (2007), and Cuesta et al. (2008) or (ii) the use of a N<sub>2</sub>-Raman channel as described in Russo et al. (2006), Ansmann et al. (2008), or Royer et al. (2011a). In this work, the presence of the N<sub>2</sub>-Raman channel of the LAASURS makes it preferable to use the second approach detailed by Royer et al. (2011a) and Chazette and Royer (2017). Readers can refer to these articles. During daytime, the lidar-derived AOT is checked against the one measured by the sun photometer of the AERONET Paris site at concomitant times. The AOTs, combined with the elastic channel, lead to the retrieval of the aerosol extinction and backscatter coefficient profiles (AEC and ABC, respectively) and to their ratio, also called the lidar ratio (LR). In the inversion process, the extrapolation of AOT measurements from the N<sub>2</sub>-Raman wavelength to the elastic wavelength assumes a constant Ångström exponent with height for the particles in the atmospheric column; furthermore a mean value of the Ångström exponent is taken for each APE. The Ångström exponent is derived from the AEROSOL ROBOTIC NETWORK database (AERONET, <http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>, last access: 5 June 2020) for the Paris site. The assumption of a constant exponent in altitude is consistent as all aerosols are concentrated in a well-mixed shallow PBL. In addition, AERONET data show a temporal variability during each APE below  $\pm 0.5$ . The LR may vary as well in the atmospheric column since different types of aerosols can be present. However, in the particular case of this work, with most of the particles trapped close to ground level in a winter PBL, the assumption of an equivalent LR for the entire column is justified. When the aerosol load is sufficient (ABC 5% above the molecular backscatter coefficient), the linear particulate depolarization ratio (LPDR) is computed as in Chazette et al. (2012b).

#### 2.1.3 Uncertainties

The different sources of uncertainties for our lidar system are discussed in Royer et al. (2011a) where the authors used a Monte Carlo method applied to the direct-inverse model of the lidar to obtain its error budget. These uncertainties are strongly dependent on the SNR. The SNR encountered in these measurements (signal originating from the lower troposphere: altitude < 2–3 km a.m.s.l.) remains greater than 10. In these conditions, the relative uncertainty on the N<sub>2</sub>-Raman-derived AOT is less than 2%. The relative uncertainties on the LR and AEC vary from 7% and 3%, respectively, for AOT greater than 0.5. They increase to 23% and 13%, respectively, for AOT ~ 0.1 (see Table 2 in Royer et al., 2011a). We can consider a standard deviation of 10 sr on the LR for AOT 0.2. The constant Ångström exponent assumption with an input incertitude of  $\pm 0.5$  will induce uncertainties of 4% on the LR and 1.5% on the AEC as calculated by Royer

**Table 1.** LAASURS characteristics.

Emission wavelength	354.7 nm
Laser energy	30 mJ
Pulse duration	6–7 ns
Shooting frequency	20 Hz
Emission lens diameter	∅ 50 mm
Reception lens diameter	∅ 150 mm
Field of view	2 × 0.67 mrad
Complete overlap distance	150 to 200 m
Elastic channels wavelength	354.7 ± 0.1 nm
Raman N <sub>2</sub> channel wavelength	387.6 ± 0.1 nm
Detector	Photomultiplier
Acquisition mode	Analog and photon count
Acquisition frequency	200 MHz
Spatial resolution	0.75 to 15 m

**Figure 1.** LAASURS system on the Paris Sorbonne University rooftop.

et al. (2011a). Relative uncertainties on the LPDR retrieval are discussed in Dieudonné et al. (2015, 2017) and are of the same magnitude as those associated with the LR. For small LPDR values (< 5 %), the absolute error is between 1 % and 2 %.

## 2.2 Spaceborne instruments

### 2.2.1 MODIS

On board both Terra and Aqua satellites, the Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) (Salomonson et al., 1989; King et al., 1992; Remer et al., 2005) is composed of 36 spectral bands ranging from 400 to 1440 nm. Its swath is 110° (2330 km) and the resolution at ground level varies from 250 m to 1000 m, depending on the band used. Here we use the AOT at 550 nm included in the Collection 6 (C6) Deep Blue aerosol products MOD04\_L2 and

MYD04\_L2 (Levy et al., 2013). The predicted uncertainty over land on the AOT at 550 nm remains as in Collection 5 (C5):  $\pm 0.05 + 0.15$  AOT (Levy et al., 2010).

### 2.2.2 CALIOP

Launched in April 2006 to be part of the A-Train (Stephens et al., 2002), the Cloud Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observations (CALIPSO) is a satellite carrying a backscatter lidar for atmospheric observation purposes. The spaceborne Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization (CALIOP) is composed of a diode-pumped Nd:YAG laser emitting 110 mJ linearly polarized pulses at a repetition rate of 20.25 Hz at both 1064 and 532 nm wavelengths (Winker et al., 2003). Horizontal and vertical resolutions are respectively 333 and 30 to 60 m. Here we take advantage of its level 2 V4.20 operational products (Mamouri et al., 2009) when the CALIPSO track passes above the Paris area (within 200 km).

### 2.2.3 CATS

The spaceborne lidar Cloud-Aerosol Transport System (CATS, <https://cats.gsfc.nasa.gov/>, last access: 5 June 2020) was operating on board the International Space Station (ISS) from January 2015 to October 2017. CATS has been recently evaluated by ground-based lidar measurements from the EARLINET network (Proestakis et al., 2019). The data used in this work come from the mode 7.2 HSRL Demo of the CATS mission. Namely, this acquisition mode uses the backscattered light emitted at 532 and 1064 nm and the depolarization of the 1064 nm channel. In this study, we use the operational product of version L2O\_V3-00 (NASA, 2017) with aerosol typing based on lidar ratio considerations. It comes as a complement to CALIOP data, strengthening the credibility of their concomitant results.

Note that CALIOP and CATS have a different typology for aerosol subtyping and associated lidar ratio. In Kim et al. (2018) readers can find the selection algorithm used for CALIOP data version 4 and in Yorks et al. (2015) the theoretical basis of the CATS algorithm. For the *polluted continental/smoke* aerosol subtype, CALIOP and CATS give a LR of  $70 \pm 25$  and  $65$  sr, respectively.

## 2.3 Ground-based networks and model outputs

### 2.3.1 AERONET

The AERosol RObotic NETwork (AERONET, <https://aeronet.gsfc.nasa.gov/>, last access: 5 June 2020) is a global network of automatic sun photometers (Holben et al., 1998). The sun and sky scanning provide long-term and continuous monitoring of aerosol optical, microphysical, and radiative properties. The current processing algorithms are in their third version and composed of three quality levels: 1.0 (un-screened), 1.5 (cloud-screened and quality controlled), and

2.0 (quality-assured). The uncertainty on AOT is 0.01 for wavelengths  $\lambda > 440$  nm (Holben et al., 1998) and up to 0.02 for other wavelengths (Dubovik et al., 2000), but additional bias may appear in the presence of thin unscreened cirrus (Chew et al., 2011). To prevent this, we use level 2.0 products and we highlight the presence of clouds in lidar vertical profiles.

### 2.3.2 Airparif

Airparif's mission is to monitor the air quality in the region of Paris and to inform citizens and authorities if regulatory thresholds on gaseous or PM pollution are exceeded. These thresholds are taken from two EU directives (no. 2008/50/CE and 2004/107/CE) transposed into French law. We consider the annual average limits for PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub> (40 and 25  $\mu\text{g m}^{-3}$ , respectively) as well as the information and the alert thresholds for PM<sub>10</sub> (50 and 80  $\mu\text{g m}^{-3}$ , respectively).

The ground-based stations included in the Airparif network are divided into two main categories: the traffic and the background stations. Then, the background stations are split in three subtypes: urban, suburban, and rural stations according to their geographical location in the Paris region. Here, only these background stations are considered for the winter months of December, January, and February. Fourteen stations measure PM<sub>10</sub> whereas only nine measure PM<sub>2.5</sub> in 2017; these numbers have varied over the past years and are taken into account when calculating uncertainties on the spatial average. Only dry PM is measured using a tapered element oscillating microbalance (TEOM), as the sampling is performed through a warmed inlet. On a daily average, the uncertainty associated with this measure is within 9%–16% for PM<sub>2.5</sub> and 9%–21.6% for PM<sub>10</sub> over the studied period (<http://www.airparif.asso.fr/telechargement/telechargement-statistique>, last access: 5 June 2020).

### 2.3.3 ECMWF ERA5 reanalysis

Used for a better understanding of the weather situation from a synoptic point of view, the meteorological data in this paper come from the European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF) and more precisely their fifth generation of atmospheric reanalyses of the global climate: ERA5 (ECMWF, 2017). We use reanalyses with a spatial resolution of 0.25° latitude  $\times$  0.25° longitude on 37 pressure levels, which are produced every hour.

## 3 Major winter pollution events of the past decade (2007–2017)

### 3.1 Identification from ground-level in situ sampling

The time series of PM<sub>10</sub> between December 2007 and February 2018 (<http://www.airparif.asso.fr/en>, last access: 5 June 2020) over the Île-de-France region are investigated.

The identification of the main APEs is performed in three steps: (i) as legal thresholds for population information and alert are based on daily mean PM values, a daily average is computed for each background station; (ii) we select the days during which at least one background station exceeds the PM<sub>10</sub> information threshold of 50  $\mu\text{g m}^{-3}$  or the alert threshold of 80  $\mu\text{g m}^{-3}$ . (iii) To single out the most polluted regional-scale events of the past decade, we compute spatial averages over all the background stations and select the days with a mean PM<sub>10</sub> above 80  $\mu\text{g m}^{-3}$ . Even though the network of ground-based stations is designed to be the most representative of the regional air quality, the spatial resolution remains coarse and the average could be not representative of all areas of the Paris region.

Figure 2 gives the histogram for APEs exceeding the information threshold during the 11 winters from 2007/2008 to 2017/2018. The light (dark) colours represent the occurrence of days with at least one station exceeding 50  $\mu\text{g m}^{-3}$  (80  $\mu\text{g m}^{-3}$ ). Such a selection yields an overview of polluted days in winter during the last decade. Among these 11 winters (Fig. 2), we count 136 (27) d with at least one station exceeding the information (alert) threshold. Figure 2 also shows a slight improvement of the air quality in the Paris metropolitan area in winter over the last decade. The frequency of pollution threshold overruns tends to decrease over the years. Yet, winter 2016/2017 stands out with a large number of threshold exceedances, opposite to the previous and following winters, i.e. 2015/2016 and 2017/2018, that present few threshold exceedances. This multi-annual variability is related to the prevailing meteorological conditions, namely the occurrence of strong and persisting anticyclonic situations. Indeed, despite a general trend in emissions to decline in the Paris region, there are still noteworthy episodes of pollution. When a strong high-pressure system sets in over a long period of time, it prevents air mass advection, blocking the weather situation. Thus, the pollution still emitted, even if it is less than in the past, remains blocked by the high-pressure system and ends up exceeding the health thresholds (Menut et al., 1999a; Vautard et al., 2003; Chazette and Royer, 2017).

When considering the spatial averaging, 8 d of aerosol pollution is highlighted, split into the four different episodes presented in Table 2. The first two episodes (during winter 2007/2008 and winter 2008/2009) seem to have been the most severe: each time, the daily spatial average surpassed 110  $\mu\text{g m}^{-3}$  in Metropolitan Paris during 2 consecutive days. During the winter of 2016/2017, we count 2 extremely polluted days belonging to two distinct APEs. Both are sampled by the ground-based lidar. As will be presented in Sect. 4, they share significant AEC levels and shallow PBLs. The first event begins on 30 November 2016 and ends on 2 December late in the evening. The second event takes place in January 2017: it begins on 20 January and ends during the night of 23–24 January, with a peak on 22 January. According to ERA5 reanalyses, the meteorological patterns (see Sect. 3.2)

are similar over the 8 d: surface pressure above 1015 hPa, temperature close to 0 °C, relative humidity around 80 %, and very low wind speed ( $< 3 \text{ m s}^{-1}$ ) within the PBL (Table 2).

### 3.2 Favourable weather conditions

Over the Paris area, APEs occur when weather conditions favour northeast advection in the lower and middle troposphere towards the Île-de-France region (e.g. Chazette and Royer, 2017), or in presence of a weather-blocking situation (e.g. Menut et al., 1999a; Bessagnet et al., 2005; Petit et al., 2017), particularly in winter.

#### 3.2.1 Synoptic situation

The analysis of large-scale meteorological patterns before and during each of the four aforementioned events helps to understand how a severe APE can settle in. The common denominator is the perturbation of the usual oceanic wind regime by a high-pressure system. APEs of 2007, 2009, and 2017 share a similar establishment process: a high-pressure system descending from high latitudes blows air from eastern Europe and settles above central Europe during a few days. While this meteorological episode lasts, the Azores anticyclone combines with the existing high in central Europe to form a vast high-pressure system with very little wind, as shown in Fig. 3b. A low-pressure system coming from the south for 2009 and 2017, or the west for 2007, finally weakens the high and ends meteorological conditions favourable to an APE.

Figure 3a shows the weather situation that occurred in early December 2016 at the 975 hPa level (within the PBL). It slightly differs from the other three major APEs in terms of location and orientation of its high-pressure system. Centred between Ireland and England, this transient but strong anticyclone blocks air masses of the Paris area and more broadly northern France and southern England, thus nullifying winds. During the night from 2 to 3 December, the deep low off the coast of Portugal weakens the high, making it go back to high latitudes. Located at the edge of the remaining high, the Paris area sees the return of winds and a dilution of its air pollution after 3 December 2016.

#### 3.2.2 Local winds

At ground level, ERA5 reanalyses from ECMWF show how wind patterns behave in Paris during an APE. We consider the single grid point of  $0.25^\circ \times 0.25^\circ$  which includes central Paris ( $48.875^\circ \text{ N}$ ,  $2.375^\circ \text{ E}$ ). Figure 4 displays the hourly wind speed of the 4 d comprising the APE of December 2016. We note that 2 d before the event (28 and 29 November), winds are above  $4 \text{ m s}^{-1}$  and coming from the northeast (Fig. 4), whereas for the 2 polluted days on 30 November and 1 December, winds remain below  $3 \text{ m s}^{-1}$  and have no privileged direction.

Likewise, for the three cases of 2007 (a), 2009 (b), and 2017(c), whose wind roses at ground level are shown in Fig. 5, winds are stronger on days before PM levels rise and remain below  $3 \text{ m s}^{-1}$  when high aerosol concentrations are observed. Each time, the establishment of the high-pressure system brings in air masses from the east (a), or northeast (b and c). Once settled above central Europe, between 45 and  $50^\circ \text{ N}$ , the high largely weakens wind speed (c) or completely nullifies it (a and b). We note that in the case of January 2017, winds keep a privileged direction according to reanalyses, as the Paris region remains at the edge of the high. Still, those winds from the northeast do not permit any dilution of an aerosol load covering northern France, Benelux, and western Germany, as shown by ensemble reanalyses of chemical transport models available on the CAMS website (<https://atmosphere.copernicus.eu/>, last access: 5 June 2020).

## 4 Lidar-derived aerosol optical properties

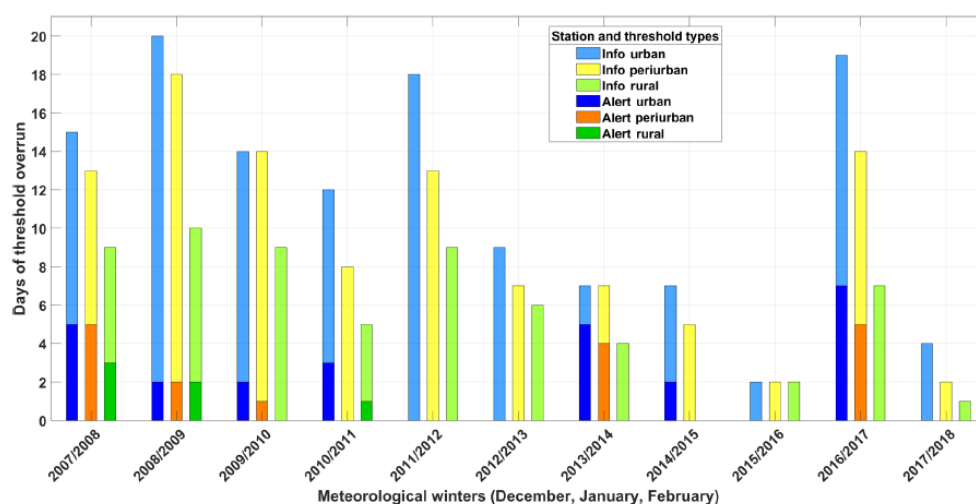
### 4.1 AEC and AOT

Figure 6 shows the temporal evolution of the vertical profiles of the AEC during the two pollution events. The AEC is a good proxy for the aerosol load found in the atmospheric column. As shown in Fig. 6a, before 30 November, the sky is rather aerosol-free and the PBL height reaches approximately 700 m above ground level (a.g.l.) with AEC lower than  $0.3 \text{ km}^{-1}$ . From 30 November, the AEC significantly increases with a maximum value close to  $0.5 \text{ km}^{-1}$ . In the evening and the following night, aerosols are trapped within the first 400 m a.g.l. and the AEC reaches values close to  $1 \text{ km}^{-1}$  at 12:00 UTC on 1 December. The PBL remains constrained to  $400 \pm 50 \text{ m a.g.l.}$  until the end of the pollution event on 2 December.

Figure 6b shows a sharp variation in the PBL top between 21 and 22 January, where it decreases from 700 to less than 300 m a.g.l. This decrease is closely linked to the installation of an anticyclonic system over most of western Europe (see Sect. 3.2). The AEC remains of the same order of magnitude as during the first pollution event. The two pollution events share a drastic PBL thickness abatement and high AEC values, but the first event appears more suddenly.

The lidar-derived AOT ( $\text{AOT}_{\text{lid}}$ ) is obtained at 355 nm by integrating the AEC profiles, while the AERONET-derived AOT ( $\text{AOT}_{\text{phot}}$ ) is computed from  $\text{AOT}_{\text{phot}}$  at 440 to 355 nm using the Ångström law (Ångström, 1964). As shown in Figs. 7a and 8a, the lidar-derived AOT matches the sun-photometer-derived AOT except for 1 December (Fig. 7a) and 21–22 January (Fig. 8b). These discrepancies are mainly due to the presence of middle- and high-altitude clouds identified on lidar vertical profiles (white bands in Figs. 6b and 8a), which may bias the AERONET operational products (Chew et al., 2011). As far as lidar data are not disturbed these profiles are kept in the figure. For the two winter pollu-





**Figure 2.** Diagram representing the number of days comprising at least one station where a threshold is exceeded (light colours for information and dark colours for alert) for each winter of the past decade. The stations taken into account are only background ones. The station typing (urban, light–deep blue; suburban, yellow–orange; and rural, light–deep green) is conserved to appreciate the spatial extent of a typical polluted day.

**Table 2.** The 8 most severely polluted winter days of the past decade. For each day we give both  $\text{PM}_{2.5}$  and  $\text{PM}_{10}$  measured at ground level (Airparif network) in the format max/mean/min, where max and min are the hourly maximum and minimum value measured at a given background station during the day and Mean is the daily average over all background stations. Meteorological parameters (ECMWF ERA5) at ground level are also given: pressure ( $P$ ), temperature ( $T$ ), relative humidity (RH), wind speed (WS), and wind direction (WD) with the standard deviation associated with the daily average.

Winter	2007/2008				2008/2009		2016/2017	
	21 Dec	22 Dec	23 Dec	24 Dec	10 Jan	11 Jan	1 Dec	22 Jan
$\text{PM}_{10}$ ( $\mu\text{g m}^{-3}$ )	151/82/35	204/88/26	215/131/86	182/121/58	223/111/60	238/123/68	241/97/24	171/82/39
$\text{PM}_{2.5}$ ( $\mu\text{g m}^{-3}$ )	–	–	–	–	176/100/54	208/120/55	159/64/19	156/64/32
$P$ (hPa)	$1016 \pm 1$	$1015 \pm 1$	$1018 \pm 1$	$1017 \pm 1$	$1017 \pm 1$	$1019 \pm 1$	$1019 \pm 2$	$1015 \pm 1$
$T$ ( $^{\circ}\text{C}$ )	$-1.7 \pm 3.2$	$-0.8 \pm 3.5$	$0.1 \pm 3.2$	$-0.7 \pm 3.5$	$-6.9 \pm 3.5$	$-3.8 \pm 4.8$	$-0.7 \pm 3.5$	$-3.2 \pm 3.4$
RH (%)	$83 \pm 9$	$81 \pm 9$	$85 \pm 9$	$87 \pm 9$	$86 \pm 8$	$82 \pm 12$	$84 \pm 11$	$83 \pm 9$
WS ( $\text{m s}^{-1}$ )	$2.3 \pm 0.2$	$2.1 \pm 0.4$	$1.3 \pm 0.8$	$2.2 \pm 0.6$	$1.4 \pm 0.8$	$2.8 \pm 0.5$	$1.6 \pm 0.8$	$1.8 \pm 0.4$
WD ( $^{\circ}$ )	$126 \pm 10$	$155 \pm 22$	$217 \pm 97$	$180 \pm 12$	$140 \pm 92$	$180 \pm 8$	$274 \pm 27$	$99 \pm 15$

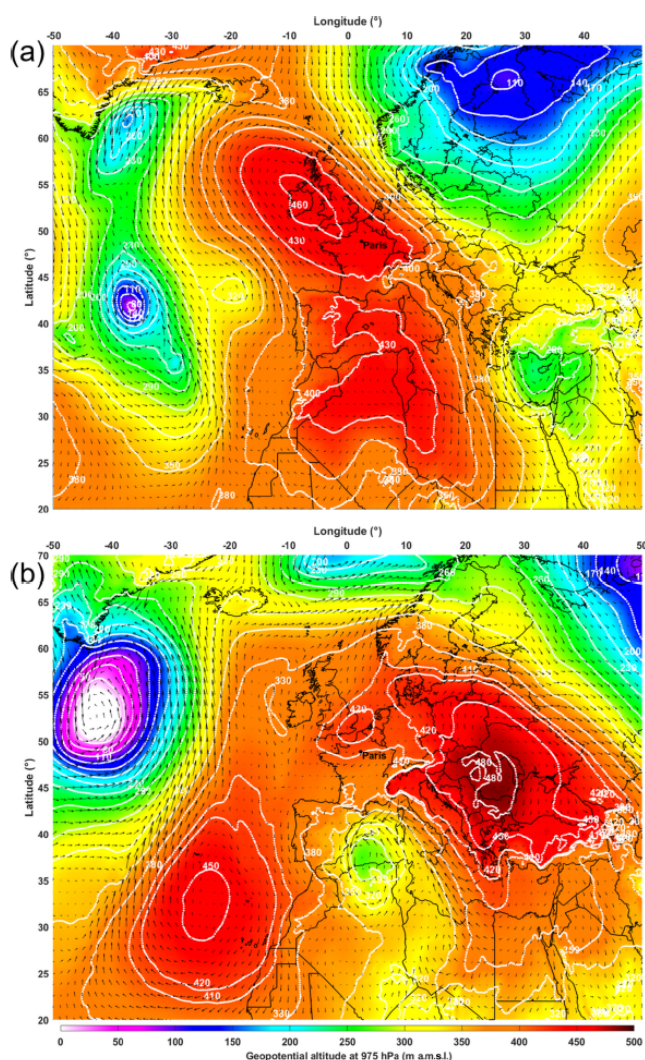
tion events of 2016/2017, the AOT at 355 nm remains below 0.5. Note that for 1 December 2016 (22 January 2017), when comparing the MODIS-derived AOT at 550 nm of  $0.12 \pm 0.07$  ( $0.15 \pm 0.07$ ) with the  $\text{AOT}_{\text{phot}}$  of  $0.16 \pm 0.06$  ( $0.11 \pm 0.03$ ) at the same wavelength, their difference of 0.04 is within the error bars. All the available values of AOT are summarized in Table 3. For early events in the decade, cloud cover made the availability of AERONET and MODIS level 2 products very rare; only one value from MODIS on 22 December 2007 with  $\text{AOT} = 0.16 \pm 0.07$  is available. An example of the AOT field as derived from MODIS is given in Fig. 9 on 21 January 2017. This highlights the horizontal extent of the pollution plume when observations are not contaminated by clouds. The AOT field appears to be homogeneous within its spatial extension. It is therefore likely that the conclusions deduced

from the observations on Paris may be generalized to a larger spatial scale.

## 4.2 Lidar ratio

It is well established that the LR varies with the types of aerosols present in the atmospheric column (Müller et al., 2007; Omar et al., 2009; Amiridis et al., 2011; Chazette et al., 2016). Figures 7a and 8a show the temporal evolution of LR derived from the  $\text{N}_2$ -Raman ground-based lidar for the two APEs of the winter of 2016/2017.

The LR is quite variable for the December APE, with values ranging from  $\sim 30$  to  $\sim 90$  sr and a mean value of  $59 \pm 18$  sr. This temporal variation traces a diurnal evolution with smaller particle size during night time, as highlighted in Fig. 7b, when the  $\text{PM}_{2.5}$ -to- $\text{PM}_{10}$  ratio slightly increases



**Figure 3.** (a) Weather situation on 1 December 2016 at 12:00 UTC and (b) on 22 January 2017 at 12:00 UTC taken from ECMWF ERA-5 reanalysis. The geopotential altitude (white lines) and the wind direction and velocity (black arrows) are given at a 975 hPa level. Maximum wind speed is  $27.8 \text{ m s}^{-1}$  ( $31.6 \text{ m s}^{-1}$ ) at  $57.75^\circ \text{ N}$   $28.25^\circ \text{ W}$  ( $62.25^\circ \text{ N}$ ,  $39.5^\circ \text{ W}$ ) in the top (bottom) map. Minimum wind speed is  $0.02 \text{ m s}^{-1}$  ( $0.03 \text{ m s}^{-1}$ ) at  $50.5^\circ \text{ N}$ ,  $6.5^\circ \text{ E}$  ( $46.25^\circ \text{ N}$ ,  $7.75^\circ \text{ E}$ ) in the top (bottom) map.

during the night (e.g. from 0.4 to 0.6 during the first night, 28 November). This increase may be explained by the diurnal variation in aerosol production in an urban area (Airparif, 2014). Indeed, mechanical processes inducing abrasion (tires, breaks, etc.) linked to human activity and resuspension processes, which are the main source of coarse particles with aerodynamic diameters larger than  $2.5 \mu\text{m}$ , decrease during the night. Resuspension during daytime was highlighted as a possible cause of discrepancies between model and observation during the ESQUIF project in the Paris surroundings (Hodzic et al., 2004, 2006). This could be the un-

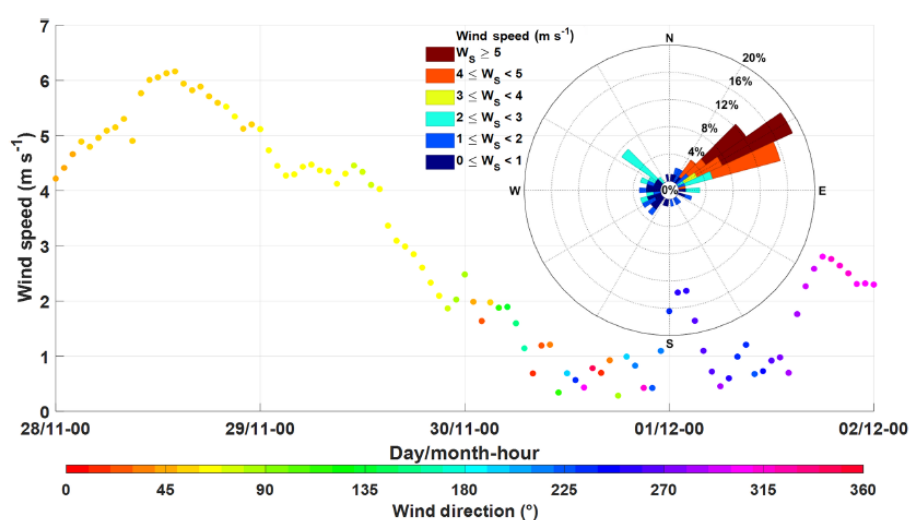
derlying cause of the diurnal variations in both the LR and the  $\text{PM}_{2.5}$ -to- $\text{PM}_{10}$  ratio. The fine fraction of AOT given by the AERONET operational product is also plotted in Fig. 7b (available only during daytime). It agrees with an increase in LR when the load of smaller particle increases from one day to the next.

For the APE in January, the LR is pretty much constant over time, ranging between 40 and 50 sr, with a mean value of  $45 \pm 7 \text{ sr}$  (Fig. 8a). This period is associated with almost constant values of the fine fraction of aerosol ( $94 \pm 2\%$ ) and a ratio of  $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{10}$  of  $0.77 \pm 0.06$  (Fig. 8b).

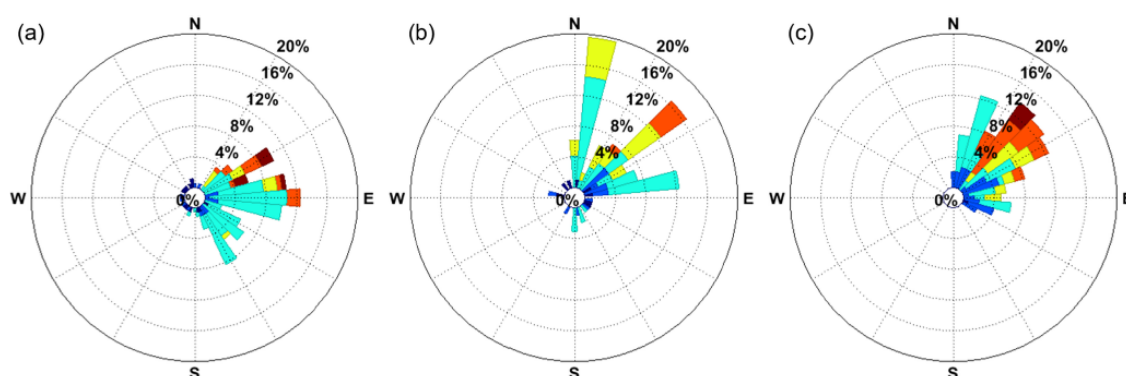
When only the most polluted days are considered, i.e. 1 December and 22 January, the LR increases to  $74 \pm 16$  and  $56 \pm 15 \text{ sr}$ , respectively. The presence of smaller particles may be suspected during the first pollution event (sun-photometer-derived visible Ångström exponent of  $1.5 \pm 0.1$  compared to  $1.1 \pm 0.3$  for the second event; see Table 3), likely due to specific meteorological circulation (see Sect. 3.2) and the presence of younger aerosols. LPDRs also corroborate this assumption (Table 3) with higher values in December than in January, whether it is from CALIOP data at 532 nm (9 % versus 6 %) or the ground-based lidar data at 355 nm (10 % versus 5 %).

Figure 9 shows the CALIOP and CATS ground tracks for the January APE. Within a 24 h time interval, their tracks are crossing in the middle of France, along a south–north axis for CALIOP and a west–east axis for CATS. The distances between the ground-based lidar and the spaceborne lidar ground tracks are substantial ( $\sim 200 \text{ km}$  for CATS, the farthest track). However, according to ensemble reanalyses of chemical transport models available on the CAMS website (<https://atmosphere.copernicus.eu/>, last access: 5 June 2020) and given the meteorological conditions discussed above, the pollution plume seen by MODIS (AOT > 0.1 in light blue south of Paris) seems to originate from the spreading of the urban haze. The distance separating the ground-based lidar and the farthest ground track is inferior to the characteristic size of the dispersed plume. Thus, it can be assumed that the spaceborne and ground-based lidars measured the same type of aerosol and that their data are comparable.

For the nocturnal orbit on 30 November–1 December, the CATS operational product types aerosols as “polluted continental” corresponding to a LR of 65 sr at 532 nm (see Fig. 8a). For the following night, the LR set by CALIOP is  $70 \pm 25 \text{ sr}$ , corresponding to the “polluted continental/smoke” aerosol type, which is coherent with the CATS operational product (Table 3). The LR given by the two spaceborne lidars matches the values derived from the ground-based lidar, although it is not the same wavelength. Note that Müller et al. (2007) show that the difference in the LR between 355 and 532 nm is in the range of 10 % for urban haze aerosols. Our results are consistent with the ones of these authors for urban haze in central Europe and North America showing lidar-derived LR at 355 nm of  $58 \pm 12 \text{ sr}$  and  $53 \pm 10 \text{ sr}$ , respectively. The aerosol typing derived from CATS at



**Figure 4.** Wind rose and temporal evolution of wind intensity and direction at 10 m from ERA5 during 4 d of the 2016 APE. The coloured scale for wind speed ( $W_s$ ) refers to the wind rose.



**Figure 5.** Wind roses compiling ERA5 data for 7 (a), 4 (b), and 6 (c) days respectively for the 2007, 2009, and 2017 pollution episodes. The colour code is the same as in Fig. 4.

03:00 UTC on 20 January and CALIOP at 02:00 UTC on 21 January is identical to the one previously retrieved for the event of December (Table 3, Fig. 7a) although the LR retrieved from the ground-based lidar decreases. Such a discrepancy is not significant when considering the expected uncertainty on the LR given by CALIOP (25 sr).

## 5 In situ ground-based measurements versus lidar inversed data

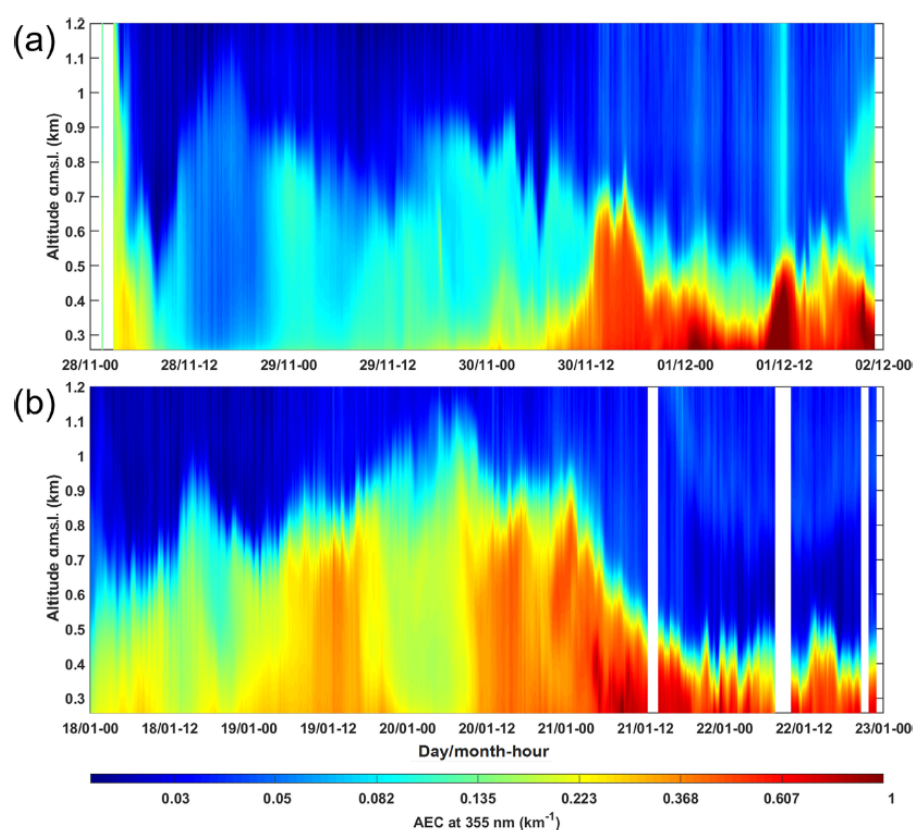
### 5.1 $PM_{10}$ and $PM_{2.5}$ at ground level

The temporal evolutions of surface PM during the two particulate pollution events of winter 2016–2017 are analysed. Figure 10 displays both  $PM_{2.5}$  and  $PM_{10}$  during the APEs of December 2016 and January 2017. Only the background stations (BS) are taken into account. For  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$ , an hourly average is calculated over all these stations in the

**Table 3.** Optical properties encountered during the two most polluted days of the winter 2016/2017.

Date		2016 APE	2017 APE
AOT	AERONET <sub>355 nm</sub>	$0.32 \pm 0.1$	$0.18 \pm 0.02$
	AERONET <sub>550 nm</sub>	$0.16 \pm 0.06$	$0.11 \pm 0.03$
	MODIS <sub>550 nm</sub>	$0.12 \pm 0.07$	$0.15 \pm 0.07$
	LAASURS <sub>335 nm</sub>	$0.23 \pm 0.09$	$0.15 \pm 0.03$
$\hat{a}$	AERONET <sub>340 nm</sub> 675 nm	$1.5 \pm 0.1$	$1.1 \pm 0.3$
LR (sr)	CALIOP <sub>532 nm</sub>	$70 \pm 25^a$	$70 \pm 25^c$
	CATS <sub>532 nm</sub>	$65^b$	$65^d$
	LAASURS <sub>355 nm</sub>	$72 \pm 15$	$56 \pm 15$
LPDR %	CALIOP <sub>532 nm</sub>	$0.09^b$	$0.06^c$
	LAASURS <sub>355 nm</sub>	$0.10 \pm 0.03$	$0.05 \pm 0.02$

<sup>a</sup> Data on 29 November 2016. <sup>b</sup> Data on 30 November 2016. <sup>c</sup> Data on 21 January 2017. <sup>d</sup> Data on 20 January 2017.



**Figure 6.** Temporal evolution of the aerosol extinction coefficient (AEC) at 355 nm as a function of time and altitude for the two cases discussed (a) in late 2016 and (b) in January 2017. The colour set from blue to dark red shows an AEC from almost 0 to above  $0.6 \text{ km}^{-1}$ . White stripes correspond to the presence of clouds.

Paris vicinity. The related standard deviation surrounds each mean value of PM (coloured area). The information and alert thresholds are also represented.

Figure 10a shows a continuous increase in both  $\text{PM}_{2.5}$  and  $\text{PM}_{10}$  from 29 November to 2 December. The information threshold of  $50 \mu\text{g m}^{-3}$  for  $\text{PM}_{10}$  is exceeded around noon on 30 November. The aerosol mass concentrations overtake the alert threshold of  $80 \mu\text{g m}^{-3}$  for  $\text{PM}_{10}$  during the night of 30 November–1 December as the PBL top height decreases.  $\text{PM}_{10}$  averaged over the Paris region reaches  $121 \mu\text{g m}^{-3}$  on 1 December, just as the lidar records a significant enhancement of the AEC in the entire PBL. Figure 10b shows  $\text{PM}_{10}$  values around  $30 \mu\text{g m}^{-3}$  during the first days, except at the end of 19 January, when the information threshold is exceeded. A significant decrease in the PBL top height occurred on 21 January at nightfall; preventing the dilution of aerosol, it leads to a strong increase in  $\text{PM}_{10}$ . Indeed, as seen in Fig. 6b, the PBL height is halved during 21 January when  $\text{PM}_{10}$  doubles. The standard deviation of both  $\text{PM}_{2.5}$  and  $\text{PM}_{10}$  is larger on 30 November and 1 and 2 December 2016 than on 20, 21, and 22 January 2017. It indicates a greater geographical variability of the pollution plume during the first APE of December. This suggests that PM is more sensitive

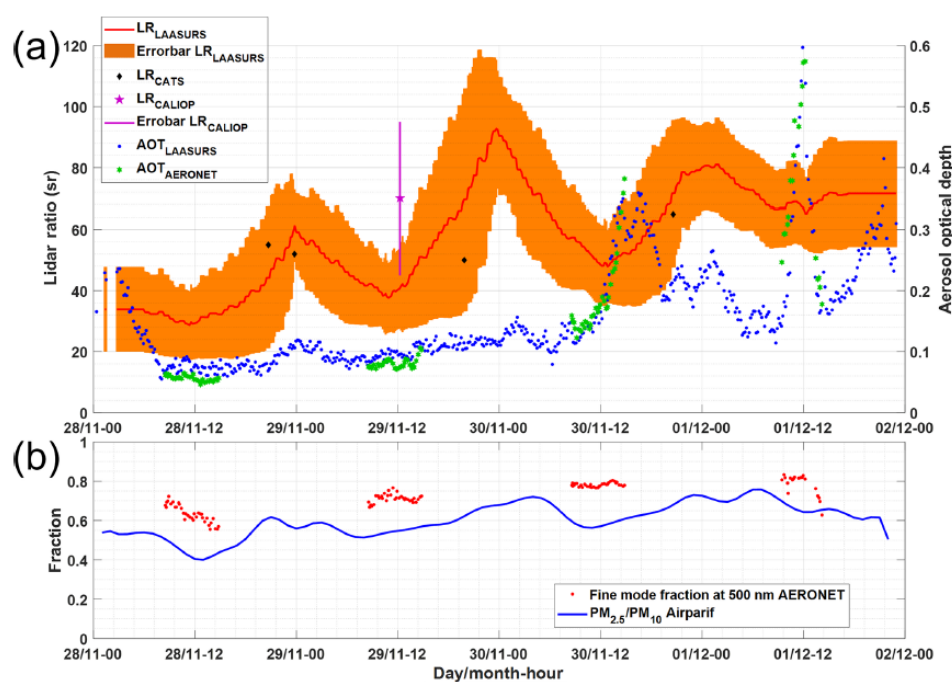
to local aerosol sources for the December event than for the one of January.

## 5.2 Relationship between aerosol optical properties and $\text{PM}_{2.5}$

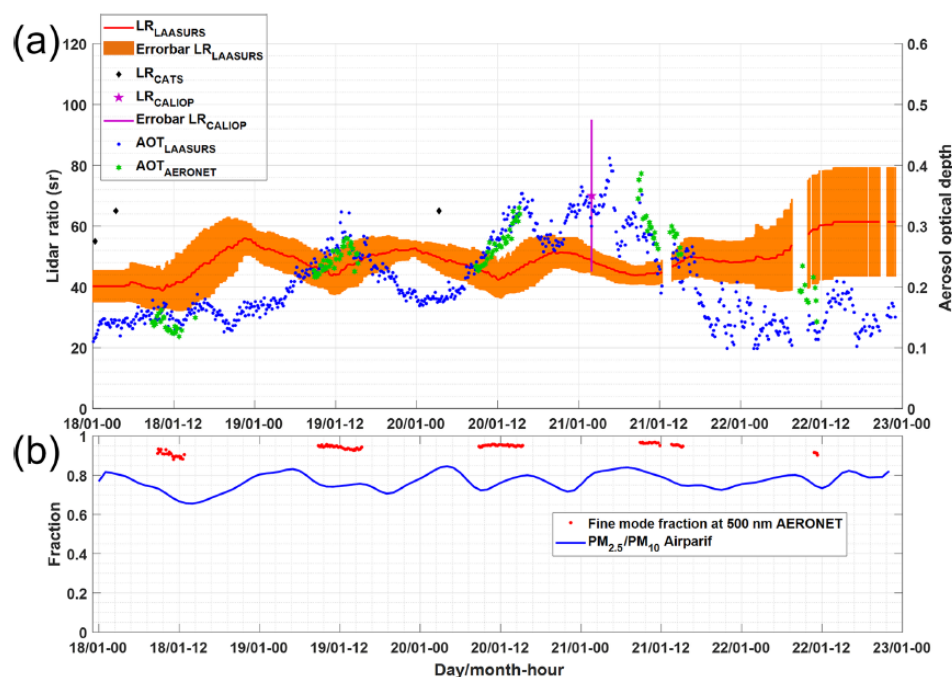
The parameter legally used to gage an APE is  $\text{PM}_{10}$  (no. 2008/50/CE and 2004/107/CE); however, Randriamiarisoa et al. (2006) demonstrate that the accumulation mode ( $\text{PM}_{2.5}$ ) contributes the most to optical properties of an aerosol population in the Paris area. Thus, in search of a correlation between Figs. 6 and 10, we chose  $\text{PM}_{2.5}$  over  $\text{PM}_{10}$ . We consider the dataset combining the two events displayed in Figs. 6, 7, and 10. It ranges from pollution-free days to severely polluted days and thus covers a wide range of AEC, AOT, and  $\text{PM}_{2.5}$  values.

### 5.2.1 Integrated optical properties

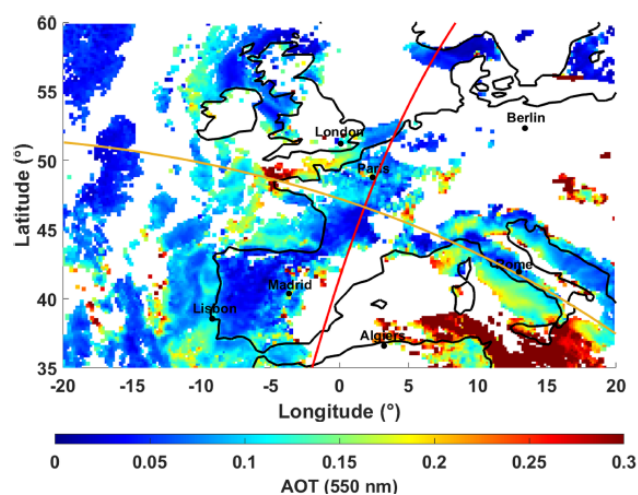
Figure 11 shows the scatter plot between the  $\text{PM}_{2.5}$  measured at ground level and the total  $\text{AOT}_{\text{lid}}$ . The linear regression conducted on all data of Fig. 10 (dashed grey line), i.e. AOT and  $\text{PM}_{2.5}$  day and night for the two pollution episodes sampled by lidar, shows no correlation, with a Pearson cor-



**Figure 7.** (a) Time series of lidar ratio (LR) and AOT at 355 nm on November–December 2016. On the left y axis, the LR as retrieved from lidar measurements is presented in red. The orange area is the associated standard deviation. The LRs extracted from CATS and CALIOP operational products are represented as black diamonds and a purple star, respectively. On the right y axis, AOTs at 355 nm retrieved from LAASURS and AERONET are represented in blue and green. (b) The temporal evolution of the fine-mode fraction operational product from AERONET is plotted along the PM<sub>2.5</sub>-to-PM<sub>10</sub> ratio from Airparif measurements.



**Figure 8.** Same as Fig. 7 but for the January 2017 pollution event.



**Figure 9.** MODIS-derived aerosol optical thickness (AOT) at 550 nm on 21 January 2017. Red and orange solid lines, respectively show the ground-tracks of CALIPSO–CALIOP (03:19 UTC 20 January) and ISS–CATS (02:10 UTC 21 January).

relation coefficient  $R^2 \approx 0.16$ . However, a group of points stands out from this dataset and is associated with a PBL top below 600 m a.m.s.l. It appears that most of these points are also associated with  $\text{PM}_{2.5}$  values above the information threshold ( $50 \mu\text{g m}^{-3}$ ). The linear regression conducted without this set of points (black solid line of Fig. 11) shows a better correlation ( $R^2 \approx 0.66$ ). It suggests that the direct correlation between AOT and  $\text{PM}_{2.5}$  to assess air quality, as proposed by Wang and Christopher (2003), Gupta et al. (2006), and Kacenenbogen et al. (2006), cannot be used under low PBL height conditions. Scatter plots (not shown) made with  $\text{PM}_{10}$  instead of  $\text{PM}_{2.5}$  show even worse correlation ( $R^2 \approx 0.03$  and  $R^2 \approx 0.61$ , respectively). Indeed, correlating ground-level measurements with the atmospheric columnar properties can be difficult. In the case of winter pollution, the PBL dynamic does not argue in favour of such an approach: very low surface temperatures ( $\sim 0^\circ\text{C}$ ) lead to very high stability in the PBL and prevent the convection processes. The surface layer is therefore uncorrelated with the rest of the PBL. One obvious consequence is that a diminution of the PBL top height will be reflected in the PM values at the surface but not necessarily in the measured AOT. This dichotomy is even more obvious with the free troposphere, whose exchanges are very limited by the inversion layer. It should also be noted that relative humidity is often highest at the top of the boundary layer and may induce, depending on the hygroscopic properties of the aerosols, a significant increase in AOT that is not related to the  $\text{PM}_{2.5}$  values at the ground level (Chazette et al., 2005).

In Fig. 12 the AOT is divided by the PBL height derived from the lidar profiles as in Menut et al. (1999b), estimating a column-average AEC in the PBL. This technique is used to improve the correlation in Koelemeijer et al. (2006) but can

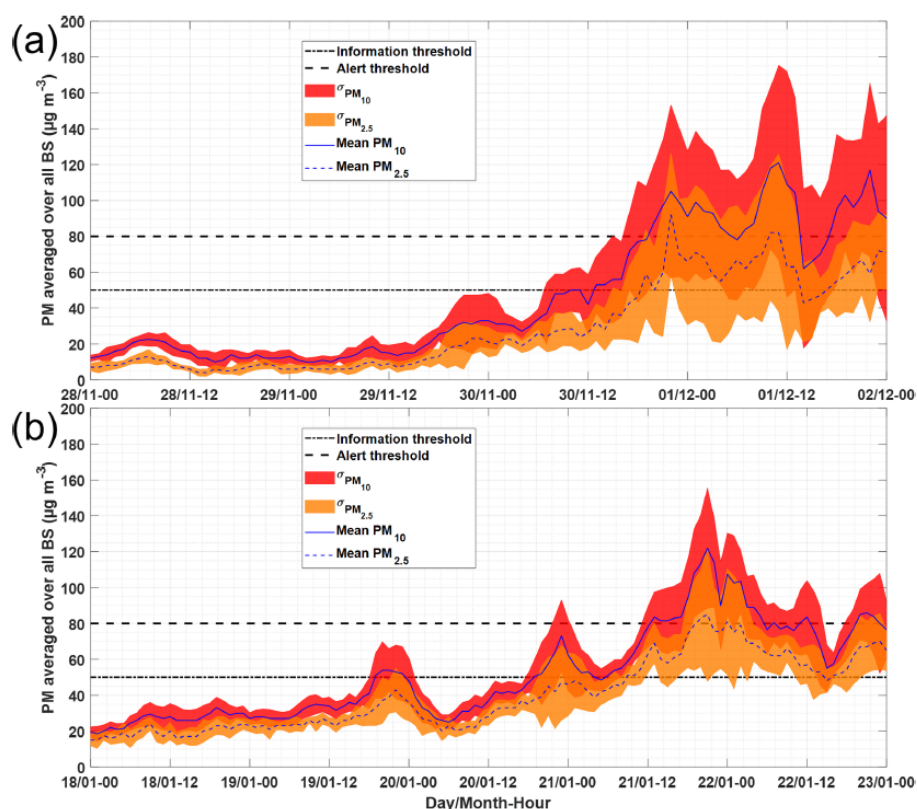
be applied only when the aerosol load in the free troposphere is assumed negligible. We find a significant improvement with the Pearson correlation coefficient rising to  $\sim 0.61$ . This AOT-to-PBL height ratio is clearly a better proxy to assess the ground-level aerosol concentration from the AOT, but the presence of an aerosol layer above the PBL limits its use.

### 5.2.2 Lidar-derived aerosol extinction coefficient

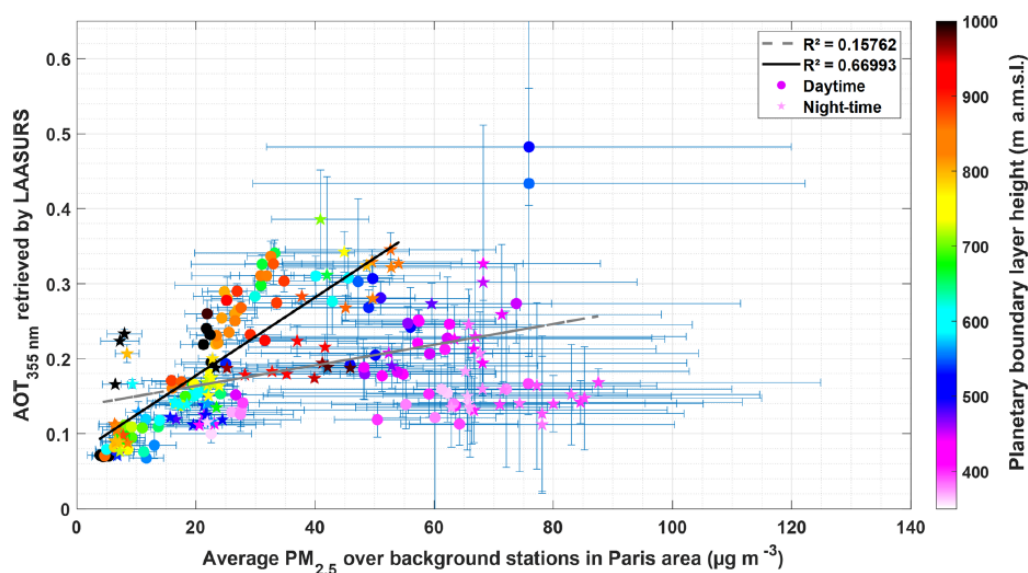
Another proxy appreciating the intensity of the aerosol load within the PBL would be the maximum of the lidar-derived AEC ( $\text{AEC}_{\text{max}}$ ) within the PBL. Figure 13 shows the scatter plot of the  $\text{AEC}_{\text{max}}$  against  $\text{PM}_{2.5}$  for the APEs. We find a significant linear relation with a Pearson correlation coefficient of  $\sim 0.75$ . Here, the average altitude where the  $\text{AEC}_{\text{max}}$  is found is  $\sim 300 \pm 90$  m a.m.s.l. ( $\sim 200 \pm 90$  m a.g.l.). In a stable PBL with barely any wind shear,  $\text{AEC}_{\text{max}}$  is close to the ground and its variations are comparable to the ones observed on  $\text{PM}_{2.5}$ . Hence, this optical parameter appears as the most appropriate to monitor the evolution of ground-level winter particulate pollution using ground-based lidar measurements, whether it is heavily polluted or not. Compared with the previous method, the presence of aerosols in the free troposphere does not bias the linear relationship established. However, this approach should not be generalized too quickly for well-developed PBLs that may have high relative humidity at their top. In the case of hydrophilic aerosols, as is often the case for Paris pollution aerosols (Randriamirisoa et al., 2006), the  $\text{AEC}_{\text{max}}$  may be found near the top of the PBL. Note that at low winter temperatures, aerosols are generally less acidic and therefore less hydrophilic (Jafrezo et al., 2005). Here we find  $358 \pm 229$  m as the averaged difference between PBL height and the altitude of  $\text{AEC}_{\text{max}}$  over all the available profiles. This mean distance is associated with a high standard deviation resulting from the high variation in the PBL height within the considered dataset ( $\sim 640 \pm 250$  m a.m.s.l.).

### 5.3 Discussion

In Fig. 14 a third independent dataset is added to test the relevance of the linear fit shown in Fig. 13. Similar to the two major APEs, this third dataset is also sampled during the WASLIP experiment. It covers 8 d from 3 to 10 December 2016, and the data processing methodology is the same as the one used for the two major pollution events. This third period corresponds to an intermediate pollution situation with  $\text{PM}_{2.5}$  between 20 and  $60 \mu\text{g m}^{-3}$ , included in the range of the two other polluted periods ( $\text{PM}_{2.5}$  from  $\sim 5$  to  $90 \mu\text{g m}^{-3}$ ). Figure 14 shows that this new independent dataset fits pretty well in the 95 % prediction interval of the Fig. 13 linear regression. The Pearson correlation coefficient of the new linear regression applied on this third dataset is  $R^2 = 0.5$ . Furthermore, the application of a linear regression on all points, in-



**Figure 10.** Temporal evolution of hourly ground  $\text{PM}_{2.5}$  and  $\text{PM}_{10}$  during the aerosol pollution events of (a) December 2016 and (b) January 2017. The lines are averages over all the background stations (BS) of Ile-de-France for  $\text{PM}_{2.5}$  and  $\text{PM}_{10}$ ; the coloured areas highlight the SD.



**Figure 11.** Relationship between  $\text{PM}_{2.5}$  ( $x$  axis) and aerosol optical thickness retrieved by lidar at 355 nm ( $\text{AOT}_{\text{lid}}$ ) ( $y$  axis) for the dataset presented in Figs. 7 and 10 overlapped. The colour set indicates the PBL height retrieved by lidar for each point. Error bars represent the standard deviations due to time average ( $\text{AOT}_{\text{lid}}$ ) and spatial average ( $\text{PM}_{2.5}$ ). The daytime (nighttime) data are represented by discs (stars). The grey dashed line (black solid line) illustrates the linear regression computed from all the trend lines (the set of points associated with a PBL top above 600 m a.m.s.l.). The correlation coefficients can be found in the top right-hand corner.

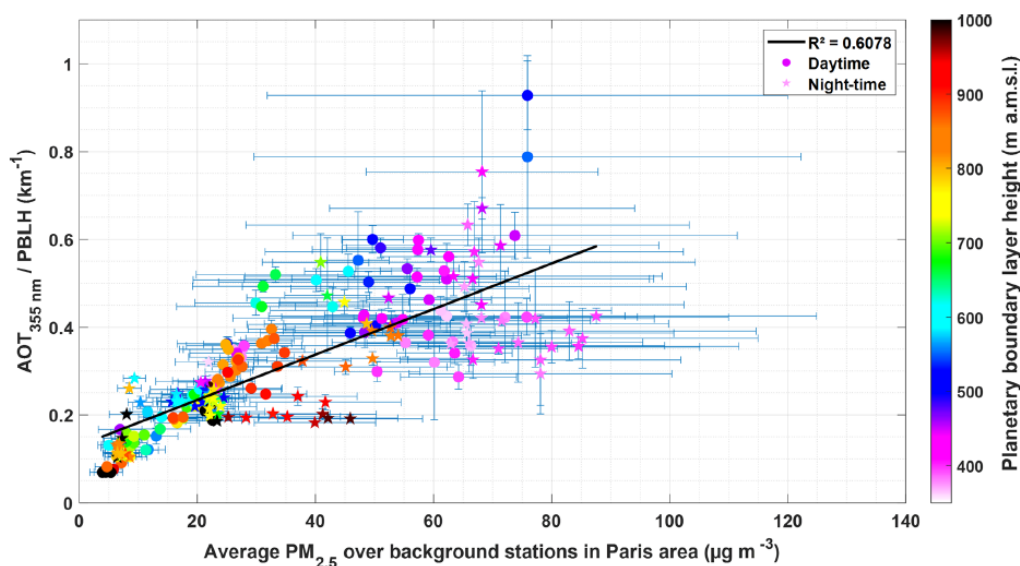


Figure 12. As in Fig. 11 but dividing  $AOT_{lid}$  by the boundary layer height (BLH) in y axis.

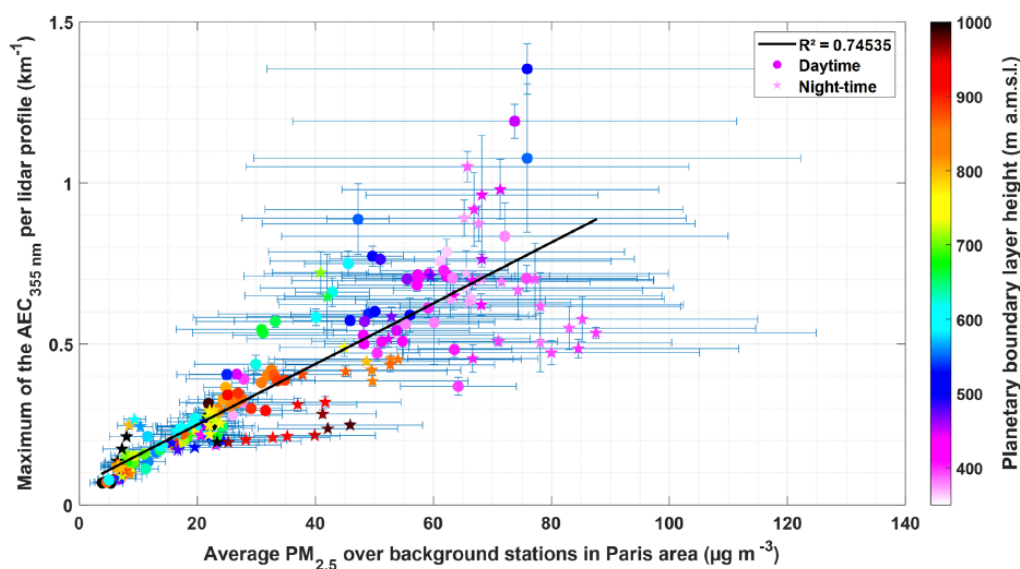


Figure 13. As in Fig. 11 but replacing  $AOT_{lid}$  with the maximum value of the AEC profile retrieved by the LAASURS within the PBL.

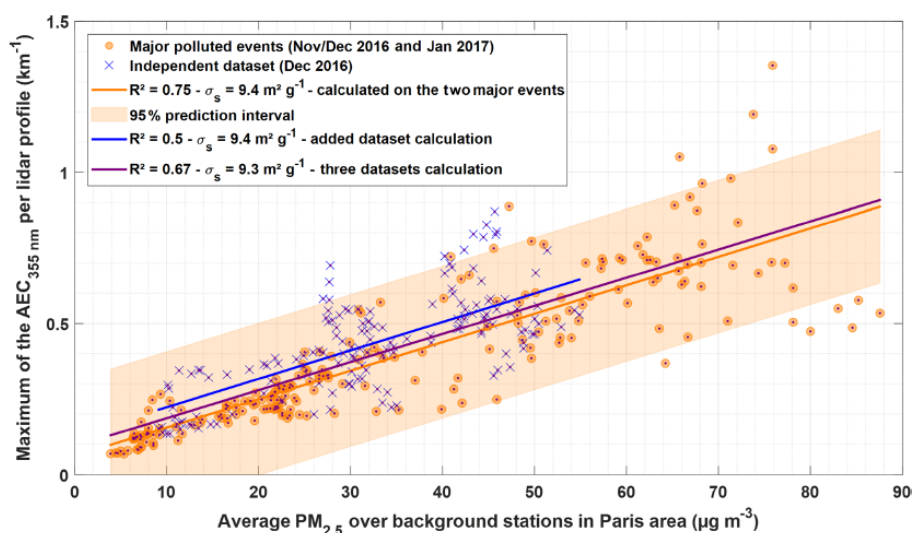
cluding the new dataset, yields a significant Pearson correlation coefficient  $R^2 = 0.67$ .

Regarding the slopes, each linear regression shows equivalent steering coefficients. These slopes are highly dependent on the chemical composition of the aerosols as shown by Raut and Chazette (2007). They correspond to the mean specific cross section of the sampled aerosols, which is highly variable and a function of the emission sources, but also of the aerosol ageing processes within the atmospheric environment. Here a value of  $9.4 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$  is found for the two major pollution events and  $9.3 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$  when the computation is made for all data in Fig. 14. These values are higher than

what can be found in the literature and in particular compared to the results of Raut and Chazette (2009) (Table 1, maximum of  $7.1 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ ) and their review in Table 2. These higher values could be explained by the use of  $PM_{2.5}$  in this study rather than  $PM_{10}$ ; indeed, the same computation with  $PM_{10}$  for the dataset of major APEs leads to a specific extinction cross section of  $7.0 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ .

Furthermore, the y intercepts are slightly different between the two datasets. An approach using remote sensing of aerosols with the choice of a good optical proxy can give an estimate of the surface pollution in terms of  $PM_{2.5}$  but should be used with caution because of the possible tempo-





**Figure 14.** Relationship between  $\text{PM}_{2.5}$  (x axis) and  $\text{AEC}_{\text{max}}$  within the PBL (y axis). Orange dots are the same dataset presented in Fig. 13. The orange solid line corresponds to the linear regression computed from the orange points (same as Fig. 13) and the light orange area illustrates its 95 % confidence interval. Blue crosses are data sampled from 3 to 10 December 2016. The blue solid line is the result of the linear regression calculated on this independent dataset. The purple solid line is the result of the linear regression calculated on all the points (blue crosses and orange dots). The correlation coefficients can be found in the top left-hand corner.

ral variability in the nature of aerosols, especially between long-range pollution events and local pollution. The most promising approach is the direct assimilation of the raw lidar observation into a chemistry-transport model including measurement modelling (Wang et al., 2013, 2014).

## 6 Conclusions

In this paper the lidar-derived optical properties of two major APEs of the winter of 2016/2017, found to be part of the most severe pollution events of the 2007–2017 decade over Paris, are investigated. This work is achieved through a synergy between (i) ground-based active and passive remote sensing devices, (ii) spaceborne instruments, (iii) air quality network measurements, and (iv) meteorological reanalyses. The data collected for this study highlight the maximum AEC in the PBL as an optical parameter that offers the possibility to assess the surface concentration of  $\text{PM}_{2.5}$ .

Although limited to a winter period, this lidar dataset comes to enrich the scientific literature, which was lacking severe winter pollution data. These episodes are rare (8 d in 1 decade, split between four separate events) but harmful for the citizens' health and still difficult to forecast. The two sampled APEs originate from different meteorological processes. The first is triggered by a high trapping local emissions around a small area which nullifies wind speeds. The other one is provoked by a strong widespread anticyclone blocking a large area during several days but with advection allowed by remaining winds at its edge. Furthermore, the suspected presence of younger and finer aerosol in the

first APE is corroborated by the higher values of both LR and LPDR retrieved during the aerosol pollution event of December ( $72 \pm 15$  sr and  $10 \pm 3$  %, respectively) compared with the ones of January ( $56 \pm 15$  sr and  $5 \pm 2$  %, respectively). In both cases, LR values are confirmed as polluted continental by spaceborne lidars and in accordance with the literature for urban haze.

Our results argue that in stable winter PBL conditions, no linear relationship exists between AOT and particle matter concentration at ground level ( $R^2 \sim 0.16$ ); i.e. a strong  $\text{PM}_{2.5}$  at ground level does not imply a significant AOT within the atmospheric column. This work shows a better agreement ( $R^2 \sim 0.61$ ) when it comes to correlating the surface aerosol concentration with the PBL-averaged aerosol extinction coefficient (AOT-to-PBL top height ratio) and even better ( $R^2 \sim 0.75$ ) with the maximum of aerosol extinction coefficient encountered within the PBL. The latter parameter shows a promising capability to monitor an APE during wintertime, as it would not be affected by the aerosol presence above the PBL. Nevertheless, the established relationships are very dependent on the aerosol composition driving the specific extinction cross section, and a generalization cannot be made without caution. Prior to making a quantitative lidar-derived PM estimate using this technique, a reliable assessment of the specific extinction cross section of the aerosol should be made (see Chazette et al., 2012a). Here the value found is  $9.4 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$  for  $\text{PM}_{2.5}$  and  $7.0 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$  for  $\text{PM}_{10}$ . With a reliable tabulation of these cross sections, spaceborne lidar aerosol products could transpose our approach from regional to global scales, albeit limited to sampling times corresponding to the revisit of satellites. Future spaceborne lidar mis-

sions such as the ADM-Aeolus (Flamant et al., 2008) and the EarthCARE (Illingworth et al., 2015) satellites could expand the assessment of surface air pollution to a global scale in addition to in situ measurements.

**Data availability.** Data can be downloaded upon request from the first author of the paper.

**Author contributions.** AB wrote the paper and analysed the data. PC coordinated and performed the experiment and participated in the analysis and paper writing; JT performed the experiment and participated in the paper editing.

**Competing interests.** The authors declare that they have no conflict of interest.

**Acknowledgements.** The Centre National d'Etude Spatial (CNES) helped maintain the Raman-lidar instrument. The authors would like to thank Pascal Genau (CNRS/LATMOS) and Cristelle Cailteau-Fischbach (UPMC/LATMOS) for their support in operating the lidar data and the welcome at the QualAir station. François Dulac (CEA/LSCE) and the five anonymous referees of this work are gratefully acknowledged for their constructive remarks, comments, and suggestions during the review process of this work. The authors would like to thank the Airparif network for collecting data. The authors would like to thank the AERONET network for sun photometer products (at <https://aeronet.gsfc.nasa.gov/>, last access: 5 June 2020). The authors acknowledge the MODIS Science, Processing, and Data Support teams for producing and providing MODIS data (at <https://modis.gsfc.nasa.gov/data/dataproduct/>, last access: 5 June 2020), the Atmospheric Science Data Center (ASDC) at NASA Langley Research Center (LaRC) for the data processing and distribution of CALIPSO products (level 4.20, at <https://search.earthdata.nasa.gov/search>, last access: 5 June 2020), and CATS products (level 2, at <https://search.earthdata.nasa.gov/search>, last access: 5 June 2020). ECMWF data used in this study have been obtained from the Copernicus Climate Change Service Climate Data Store (<https://cds.climate.copernicus.eu/cdsapp#!/home>, last access: 5 June 2020).

**Financial support.** This work was supported by the Commissariat à l'Énergie Atomique et aux énergies alternatives (CEA).

**Review statement.** This paper was edited by Nikos Hatzianastasiou and reviewed by five anonymous referees.

## References

- Airparif: Inventaire régional des émissions en Ile-de-France. Année de référence 2012 – éléments synthétiques, 1–32, 2014.
- Amiridis, V., Balis, D., Giannakaki, E., Kazadzis, S., Arola, A., and Gerasopoulos, E.: Characterization of the aerosol type using simultaneous measurements of the lidar ratio and estimations of the single scattering albedo, *Atmos. Res.*, 101, 46–53, <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2011.01.010>, 2011.
- Ångström, A.: The parameters of atmospheric turbidity, *Tellus A*, 16, 64–75, <https://doi.org/10.3402/tellusa.v16i1.8885>, 1964.
- Ansmann, A., Riebesell, M., and Weitkamp, C.: Measurement of atmospheric aerosol extinction profiles with a Raman lidar, *Opt. Lett.*, 15, 746–748, <https://doi.org/10.1364/ol.15.000746>, 2008.
- Beekmann, M.: Monte Carlo uncertainty analysis of a regional-scale transport chemistry model constrained by measurements from the Atmospheric Pollution Over the Paris Area (ESQUIF) campaign, *J. Geophys. Res.*, 108, 8559, <https://doi.org/10.1029/2003JD003391>, 2003.
- Beekmann, M., Prévôt, A. S. H., Drewnick, F., Sciare, J., Pandis, S. N., Denier van der Gon, H. A. C., Crippa, M., Freutel, F., Poulain, L., Gherzi, V., Rodriguez, E., Beirle, S., Zotter, P., von der Weiden-Reinmüller, S.-L., Bressi, M., Fountoukis, C., Petetin, H., Szidat, S., Schneider, J., Rosso, A., El Haddad, I., Megaritis, A., Zhang, Q. J., Michoud, V., Slowik, J. G., Moukhtar, S., Kolmonen, P., Stohl, A., Eckhardt, S., Borbon, A., Gros, V., Marchand, N., Jaffrezo, J. L., Schwarzenboeck, A., Colomb, A., Wiedensohler, A., Borrmann, S., Lawrence, M., Baklanov, A., and Baltensperger, U.: In situ, satellite measurement and model evidence on the dominant regional contribution to fine particulate matter levels in the Paris megacity, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 9577–9591, <https://doi.org/10.5194/acp-15-9577-2015>, 2015.
- Bessagnet, B., Hodzic, A., Blanchard, O., Lattuati, M., Le Bihan, O., Marfaing, H., and Rouil, L.: Origin of particulate matter pollution episodes in wintertime over the Paris Basin, *Atmos. Environ.*, 39, 6159–6174, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.06.053>, 2005.
- Bressi, M., Sciare, J., Gherzi, V., Bonnaire, N., Nicolas, J. B., Petit, J.-E., Moukhtar, S., Rosso, A., Mihalopoulos, N., and Féron, A.: A one-year comprehensive chemical characterisation of fine aerosol (PM<sub>2.5</sub>) at urban, suburban and rural background sites in the region of Paris (France), *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 7825–7844, <https://doi.org/10.5194/acp-13-7825-2013>, 2013.
- Bressi, M., Sciare, J., Gherzi, V., Mihalopoulos, N., Petit, J.-E., Nicolas, J. B., Moukhtar, S., Rosso, A., Féron, A., Bonnaire, N., Poulakis, E. and Theodosi, C.: Sources and geographical origins of fine aerosols in Paris (France), *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 8813–8839, <https://doi.org/10.5194/acp-14-8813-2014>, 2014.
- Chazette, P.: The monsoon aerosol extinction properties at Goa during INDOEX as measured with lidar, *J. Geophys. Res.*, 108, 4187, <https://doi.org/10.1029/2002JD002074>, 2003.
- Chazette, P. and Royer, P.: Springtime major pollution events by aerosol over Paris Area: From a case study to a multiannual analysis, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 122, 8101–8119, <https://doi.org/10.1002/2017JD026713>, 2017.
- Chazette, P. and Totems, J.: Mini N<sub>2</sub>-Raman Lidar onboard ultra-light aircraft for aerosol measurements: Demonstration and extrapolation, *Remote Sens.*, 9, 1226, <https://doi.org/10.3390/rs9121226>, 2017.

- Chazette, P., Randriamiarisoa, H., Sanak, J., Couvert, P., and Flamant, C.: Optical properties of urban aerosol from airborne and ground-based in situ measurements performed during the Etude et Simulation de la Qualité de l'air en Ile de France (ESQUIF) program, *J. Geophys. Res.*, 110, D02206, <https://doi.org/10.1029/2004JD004810>, 2005.
- Chazette, P., Sanak, J., and Dulac, F.: Monsoon Multidisciplinary Analysis, *Environ. Sci. Technol.*, 41, 8335–8341, <https://doi.org/10.1021/es070343y>, 2007.
- Chazette, P., Bocquet, M., Royer, P., Winiarek, V., Raut, J.-C., Labazuy, P., Gouhier, M., Lardier, M., and Cariou, J.-P.: Eyjafjallajökull ash concentrations derived from both lidar and modeling, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 117, D00U14, <https://doi.org/10.1029/2011JD015755>, 2012a.
- Chazette, P., Dabas, A., Sanak, J., Lardier, M., and Royer, P.: French airborne lidar measurements for Eyjafjallajökull ash plume survey, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 7059–7072, <https://doi.org/10.5194/acp-12-7059-2012>, 2012b.
- Chazette, P., Totems, J., Ancellet, G., Pelon, J., and Sicard, M.: Temporal consistency of lidar observations during aerosol transport events in the framework of the ChArMex/ADRIMED campaign at Minorca in June 2013, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 2863–2875, <https://doi.org/10.5194/acp-16-2863-2016>, 2016.
- Chew, B. N., Campbell, J. R., Reid, J. S., Giles, D. M., Welton, E. J., Salinas, S. V., and Liew, S. C.: Tropical cirrus cloud contamination in sun photometer data, *Atmos. Environ.*, 45, 6724–6731, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2011.08.017>, 2011.
- Chu, Y., Liu, Y., Li, X., Liu, Z., Lu, H., Lu, Y., Mao, Z., Chen, X., Li, N., Ren, M., Liu, F., Tian, L., Zhu, Z., and Xiang, H.: A review on predicting ground PM<sub>2.5</sub> concentration using satellite aerosol optical depth, *Atmosphere (Basel)*, 7, 1–25, <https://doi.org/10.3390/atmos7100129>, 2016.
- Crippa, M., Canonaco, F., Slowik, J. G., El Haddad, I., DeCarlo, P. F., Mohr, C., Heringa, M. F., Chirico, R., Marchand, N., Temime-Roussel, B., Abidi, E., Poulain, L., Wiedensohler, A., Baltensperger, U., and Prévôt, A. S. H.: Primary and secondary organic aerosol origin by combined gas-particle phase source apportionment, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 8411–8426, <https://doi.org/10.5194/acp-13-8411-2013>, 2013a.
- Crippa, M., DeCarlo, P. F., Slowik, J. G., Mohr, C., Heringa, M. F., Chirico, R., Poulain, L., Freutel, F., Sciare, J., Cozic, J., Di Marco, C. F., Elsasser, M., Nicolas, J. B., Marchand, N., Abidi, E., Wiedensohler, A., Drewnick, F., Schneider, J., Borrmann, S., Nemitz, E., Zimmermann, R., Jaffrezo, J.-L., Prévôt, A. S. H., and Baltensperger, U.: Wintertime aerosol chemical composition and source apportionment of the organic fraction in the metropolitan area of Paris, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 961–981, <https://doi.org/10.5194/acp-13-961-2013>, 2013b.
- Cros, B., Durand, P., Cachier, H., Drobinski, P., Fréjafon, E., Kottmeier, C., Perros, P. E., Peuch, V. H., Ponche, J. L., Robin, D., Saïd, F., Toupance, G., and Wortham, H.: The ESCOMPTE program: An overview, *Atmos. Res.*, 69, 241–279, <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2003.05.001>, 2004.
- Cuesta, J., Flamant, P. H., and Flamant, C.: Synergetic technique combining elastic backscatter lidar data and sunphotometer AERONET inversion for retrieval by layer of aerosol optical and microphysical properties, *Appl. Optics*, 47, 4598–4611, <https://doi.org/10.1364/ao.47.004598>, 2008.
- Dieudonné, E., Chazette, P., Marnas, F., Totems, J., and Shang, X.: Lidar profiling of aerosol optical properties from Paris to Lake Baikal (Siberia), *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 5007–5026, <https://doi.org/10.5194/acp-15-5007-2015>, 2015.
- Dieudonné, E., Chazette, P., Marnas, F., Totems, J., and Shang, X.: Raman Lidar Observations of Aerosol Optical Properties in 11 Cities from France to Siberia, *Remote Sens.*, 9, 978, <https://doi.org/10.3390/rs9100978>, 2017.
- Dubovik, O., Smirnov, A., Holben, B. N., King, M. D., Kaufman, Y. J., Eck, T. F., and Slutsker, I.: Accuracy assessments of aerosol optical properties retrieved from Aerosol Robotic Network (AERONET) Sun and sky radiance measurements, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 105, 9791–9806, <https://doi.org/10.1029/2000JD900040>, 2000.
- European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF): ERA5 hourly data on single levels from 1979 to present, Reanalysis datasets, <https://doi.org/10.24381/cds.adbb2d47>, 2019.
- European Commission: Clean Air for Europe – Improving air quality. Why care about air pollution? Ecosystems, climate, health, economy, presentation available at: [http://www.cleanair-europe.org/fileadmin/user\\_upload/redaktion/Conference\\_Clean\\_Air\\_For\\_European\\_Cities/20150706\\_Guido\\_de\\_Wilt\\_EU\\_DG\\_Environment\\_Clean\\_Air\\_for\\_Europe\\_Improving\\_Air\\_Quality.pdf](http://www.cleanair-europe.org/fileadmin/user_upload/redaktion/Conference_Clean_Air_For_European_Cities/20150706_Guido_de_Wilt_EU_DG_Environment_Clean_Air_for_Europe_Improving_Air_Quality.pdf) (last access: 5 June 2020), 2015.
- Flamant, P., Cuesta, J., Denneulin, M. L., Dabas, A., and Huber, D.: ADM-Aeolus retrieval algorithms for aerosol and cloud products, *Tellus A*, 60, 273–288, <https://doi.org/10.1111/j.1600-0870.2007.00287.x>, 2008.
- Gupta, P., Christopher, S. A., Wang, J., Gehrig, R., Lee, Y., and Kumar, N.: Satellite remote sensing of particulate matter and air quality assessment over global cities, *Atmos. Environ.*, 40, 5880–5892, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2006.03.016>, 2006.
- Hersey, S. P., Craven, J. S., Metcalf, A. R., Lin, J., Latham, T., Suski, K. J., Cahill, J. F., Duong, H. T., Sorooshian, A., Jonsson, H. H., Shiraiwa, M., Zuend, A., Nenes, A., Prather, K. A., Flagan, R. C., and Seinfeld, J. H.: Composition and hygroscopicity of the Los Angeles Aerosol: CalNex, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 118, 3016–3036, <https://doi.org/10.1002/jgrd.50307>, 2013.
- Hodzic, A., Chepfer, H., Vautard, R., Chazette, P., Beekmann, M., Bessagnet, B., Chatenet, B., Cuesta, J., Drobinski, P., Goloub, P., Haefelin, M., and Morille, Y.: Comparison of aerosol chemistry transport model simulations with lidar and Sun photometer observations at a site near Paris, *J. Geophys. Res.*, 109, D23201, <https://doi.org/10.1029/2004JD004735>, 2004.
- Hodzic, A., Vautard, R., Chazette, P., Menut, L., and Bessagnet, B.: Aerosol chemical and optical properties over the Paris area within ESQUIF project, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3257–3280, <https://doi.org/10.5194/acp-6-3257-2006>, 2006.
- Hogg, J. C. and Van Eeden, S.: Pulmonary and systemic response to atmospheric pollution, *Respirology*, 14, 336–346, <https://doi.org/10.1111/j.1440-1843.2009.01497.x>, 2009.
- Holben, B. N., Eck, T. F., Slutsker, I., Tanré, D., Buis, J. P., Setzer, A., Vermote, E., Reagan, J. A., Kaufman, Y. J., Nakajima, T., Lavenu, F., Jankowiak, I., and Smirnov, A.: AERONET—A Federated Instrument Network and Data Archive for Aerosol Characterization, *Remote Sens. Environ.*, 66, 1–16, [https://doi.org/10.1016/S0034-4257\(98\)00031-5](https://doi.org/10.1016/S0034-4257(98)00031-5), 1998.

- IIASA: Loss in life expectancy attributable to exposure to fine particulate matter – 2000 Loss in life expectancy attributable to exposure to fine particulate matter – Baseline 2020, 2000.
- Ile de France Prefecture, R.: Population statistics of Ile de France region, available at: <http://www.prefectures-regions.gouv.fr/ile-de-france/Region-et-institutions/Portrait-de-la-region/Chiffres-cles/Les-chiffres-de-la-region-Ile-de-France/Territoire-et-population/#titre> (last access: 5 June 2020), 2017.
- Illingworth, A. J., Barker, H. W., Beljaars, A., Ceccaldi, M., Chefer, H., Clerbaux, N., Cole, J., Delanoë, J., Domenech, C., Donovan, D. P., Fukuda, S., Hiraoka, M., Hogan, R. J., Huenerbein, A., Kollias, P., Kubota, T., Nakajima, T., Nakajima, T. Y., Nishizawa, T., Ohno, Y., Okamoto, H., Oki, R., Sato, K., Satoh, M., Shephard, M. W., Velázquez-Blázquez, A., Wandinger, U., Wehr, T., and Van Zadelhoff, G. J.: The earthcare satellite: The next step forward in global measurements of clouds, aerosols, precipitation, and radiation, *B. Am. Meteorol. Soc.*, 96, 1311–1332, <https://doi.org/10.1175/BAMS-D-12-00227.1>, 2015.
- 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, edited by: Stocker, T. F., Qin, D., Plattner, G.-K., Tignor, M., Allen, S. K., Boschung, J., Nauels, A., Xia, Y., Bex, V., and Midgley, P. M., Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 1535 pp., 2013.
- Jaffrezo, J.-L., Aymoz, G., Delaval, C., and Cozic, J.: Seasonal variations of the water soluble organic carbon mass fraction of aerosol in two valleys of the French Alps, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 2809–2821, <https://doi.org/10.5194/acp-5-2809-2005>, 2005.
- Kacenenbogen, M., Léon, J.-F., Chiapello, I., and Tanré, D.: Characterization of aerosol pollution events in France using ground-based and POLDER-2 satellite data, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 4843–4849, <https://doi.org/10.5194/acp-6-4843-2006>, 2006.
- Kim, M.-H., Omar, A. H., Tackett, J. L., Vaughan, M. A., Winker, D. M., Trepte, C. R., Hu, Y., Liu, Z., Poole, L. R., Pitts, M. C., Kar, J., and Magill, B. E.: The CALIPSO version 4 automated aerosol classification and lidar ratio selection algorithm, *Atmos. Meas. Tech.*, 11, 6107–6135, <https://doi.org/10.5194/amt-11-6107-2018>, 2018.
- King, M. D., Kaufman, Y. J., Menzel, W. P., and Tanré, D.: Remote Sensing of Cloud, Aerosol, and Water Vapor Properties from MODIS, *IEEE T. Geosci. Remote S.*, 30, 2–27, <https://doi.org/10.1109/36.124212>, 1992.
- Koelmeyer, R. B. A., Homan, C. D., and Matthijsen, J.: Comparison of spatial and temporal variations of aerosol optical thickness and particulate matter over Europe, *Atmos. Environ.*, 40, 5304–5315, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2006.04.044>, 2006.
- Levy, R. C., Remer, L. A., Kleidman, R. G., Mattoo, S., Ichoku, C., Kahn, R., and Eck, T. F.: Global evaluation of the Collection 5 MODIS dark-target aerosol products over land, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 10399–10420, <https://doi.org/10.5194/acp-10-10399-2010>, 2010.
- Levy, R. C., Mattoo, S., Munchak, L. A., Remer, L. A., Sayer, A. M., Patadia, F., and Hsu, N. C.: The Collection 6 MODIS aerosol products over land and ocean, *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 2989–3034, <https://doi.org/10.5194/amt-6-2989-2013>, 2013.
- Mamouri, R. E., Amiridis, V., Papayannis, A., Giannakaki, E., Tsaknakis, G., and Balis, D. S.: Validation of CALIPSO spaceborne-derived attenuated backscatter coefficient profiles using a ground-based lidar in Athens, Greece, *Atmos. Meas. Tech.*, 2, 513–522, <https://doi.org/10.5194/amt-2-513-2009>, 2009.
- McMeeking, G. R., Bart, M., Chazette, P., Haywood, J. M., Hopkins, J. R., McQuaid, J. B., Morgan, W. T., Raut, J.-C., Ryder, C. L., Savage, N., Turnbull, K., and Coe, H.: Airborne measurements of trace gases and aerosols over the London metropolitan region, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 5163–5187, <https://doi.org/10.5194/acp-12-5163-2012>, 2012.
- Menut, L., Flamant, C., and Pelon, J.: Evidence of Interaction Between Synoptic and Local, *Bound.-Lay. Meteorol.*, 93, 269–286, <https://doi.org/10.1023/A:1002013631786>, 1999a.
- Menut, L., Flamant, C., Pelon, J., and Flamant, P. H.: Urban boundary layer height determination from lidar measurements over the Paris area, *Appl. Optics*, 38, 945–954, <https://doi.org/10.1364/AO.38.000945>, 1999b.
- Molina, L. T., Madronich, S., Gaffney, J. S., Apel, E., de Foy, B., Fast, J., Ferrare, R., Herndon, S., Jimenez, J. L., Lamb, B., Osornio-Vargas, A. R., Russell, P., Schauer, J. J., Stevens, P. S., Volkamer, R., and Zavala, M.: An overview of the MILAGRO 2006 Campaign: Mexico City emissions and their transport and transformation, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 8697–8760, <https://doi.org/10.5194/acp-10-8697-2010>, 2010.
- Molina, M. J. and Molina, L. T.: Megacities and Atmospheric Pollution, *J. Air Waste Manage.*, 54, 644–680, <https://doi.org/10.1080/10473289.2004.10470936>, 2004.
- Müller, D., Ansmann, A., Mattis, I., Tesche, M., Wandinger, U., Althausen, D., and Pisani, G.: Aerosol-type-dependent lidar ratios observed with Raman lidar, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 112, D16202, <https://doi.org/10.1029/2006JD008292>, 2007.
- NASA: CATS L2O Profile Products Quality Statements, available at: [https://cats.gsfc.nasa.gov/media/docs/CATS\\_QS\\_L2O\\_Profile\\_3.00.pdf](https://cats.gsfc.nasa.gov/media/docs/CATS_QS_L2O_Profile_3.00.pdf) (last access: 5 June 2020), 2017.
- OECD: The Economic Consequences of Outdoor Air Pollution: Policy Highlights, 20, <https://doi.org/10.1787/9789264257474-en>, 2016.
- Omar, A. H., Winker, D. M., Kittaka, C., Vaughan, M. A., Liu, Z., Hu, Y., Trepte, C. R., Rogers, R. R., Ferrare, R. A., Lee, K. P., Kuehn, R. E., and Hostetler, C. A.: The CALIPSO automated aerosol classification and lidar ratio selection algorithm, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 26, 1994–2014, <https://doi.org/10.1175/2009JTECHA1231.1>, 2009.
- Pahlow, M., Müller, D., Tesche, M., Eichler, H., Feingold, G., Eberhard, W. L., and Cheng, Y. F.: Retrieval of aerosol properties from combined multiwavelength lidar and sunphotometer measurements, *Appl. Optics*, 45, 7429–7442, 2006.
- Pappalardo, G., Amodeo, A., Apituley, A., Comeron, A., Freudenthaler, V., Linné, H., Ansmann, A., Bösenberg, J., D'Amico, G., Mattis, I., Mona, L., Wandinger, U., Amiridis, V., Alados-Arboledas, L., Nicolae, D., and Wiegner, M.: EARLINET: towards an advanced sustainable European aerosol lidar network, *Atmos. Meas. Tech.*, 7, 2389–2409, <https://doi.org/10.5194/amt-7-2389-2014>, 2014.
- Pereira, R. H. M., Nadalin, V., Monasterio, L., and Albuquerque, P. H. M.: Urban Centrality: A Simple Index, *Geogr. Anal.*, 45, 77–89, <https://doi.org/10.1111/gean.12002>, 2013.
- Petit, J. E., Amodeo, T., Meleux, F., Bessagnet, B., Menut, L., Grenier, D., Pellan, Y., Ockler, A., Rocq, B., Gros, V., Sciare,

- J., and Favez, O.: Characterising an intense PM pollution episode in March 2015 in France from multi-site approach and near real time data: Climatology, variabilities, geographical origins and model evaluation, *Atmos. Environ.*, 155, 68–84, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2017.02.012>, 2017.
- Pikridas, M., Sciare, J., Freutel, F., Crumeyrolle, S., von der Weiden-Reinmüller, S.-L., Borbon, A., Schwarzenboeck, A., Merkel, M., Crippa, M., Kostenidou, E., Psychoudaki, M., Hildebrandt, L., Engelhart, G. J., Petäjä, T., Prévôt, A. S. H., Drewnick, F., Baltensperger, U., Wiedensohler, A., Kulmala, M., Beekmann, M., and Pandis, S. N.: In situ formation and spatial variability of particle number concentration in a European megacity, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 10219–10237, <https://doi.org/10.5194/acp-15-10219-2015>, 2015.
- Proestakis, E., Amiridis, V., Marinou, E., Biniotoglou, I., Ansmann, A., Wandinger, U., Hofer, J., Yorks, J., Nowotnick, E., Makhmudov, A., Papayannis, A., Pietruczuk, A., Gialitaki, A., Apituley, A., Szkop, A., Muñoz Porcar, C., Bortoli, D., Dionisi, D., Althausen, D., Mamali, D., Balis, D., Nicolae, D., Tetoni, E., Liberti, G. L., Baars, H., Mattis, I., Stachlewska, I. S., Voudouri, K. A., Mona, L., Mylonaki, M., Perrone, M. R., Costa, M. J., Sicard, M., Papagiannopoulos, N., Siomos, N., Burlizzi, P., Pauly, R., Engelmann, R., Abdullaev, S., and Pappalardo, G.: EARLINET evaluation of the CATS Level 2 aerosol backscatter coefficient product, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 11743–11764, <https://doi.org/10.5194/acp-19-11743-2019>, 2019.
- Randriamiarisoa, H., Chazette, P., Couvert, P., Sanak, J., and Mégie, G.: Relative humidity impact on aerosol parameters in a Paris suburban area, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 1389–1407, <https://doi.org/10.5194/acp-6-1389-2006>, 2006.
- Raut, J.-C. and Chazette, P.: Retrieval of aerosol complex refractive index from a synergy between lidar, sunphotometer and in situ measurements during LISAIR experiment, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 2797–2815, <https://doi.org/10.5194/acp-7-2797-2007>, 2007.
- Raut, J.-C. and Chazette, P.: Assessment of vertically-resolved PM<sub>10</sub> from mobile lidar observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 8617–8638, <https://doi.org/10.5194/acp-9-8617-2009>, 2009.
- Remer, L. A., Kaufman, Y. J., Tanré, D., Mattoo, S., Chu, D. A., Martins, J. V., Li, R.-R., Ichoku, C., Levy, R. C., Kleidman, R. G., Eck, T. F., Vermote, E., and Holben, B. N.: The MODIS Aerosol Algorithm, Products, and Validation, *J. Atmos. Sci.*, 62, 947–973, <https://doi.org/10.1175/JAS3385.1>, 2005.
- Royer, P., Chazette, P., Lardier, M., and Sauvage, L.: Aerosol content survey by mini N<sub>2</sub>-Raman lidar: Application to local and long-range transport aerosols, *Atmos. Environ.*, 45, 7487–7495, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2010.11.001>, 2011a.
- Royer, P., Chazette, P., Sartelet, K., Zhang, Q. J., Beekmann, M., and Raut, J.-C.: Comparison of lidar-derived PM<sub>10</sub> with regional modeling and ground-based observations in the frame of MEGAPOLI experiment, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 10705–10726, <https://doi.org/10.5194/acp-11-10705-2011>, 2011b.
- Russo, F., Whiteman, D. N., Demoz, B., and Hoff, R. M.: Validation of the Raman lidar algorithm for quantifying aerosol extinction, *Appl. Optics*, 45, 7073–7088, <https://doi.org/10.1364/ao.45.007073>, 2006.
- Salmonson, V. V., Barnes, W. L., Maymon, P. W., Montgomery, H. E., and Ostrow, H.: MODIS: Advanced Facility Instrument for Studies of the Earth as a System, *IEEE T. Geosci. Remote S.*, 27, 145–153, <https://doi.org/10.1109/36.20292>, 1989.
- Sciare, J., d'Argouges, O., Zhang, Q. J., Sarda-Estève, R., Gaimoz, C., Gros, V., Beekmann, M., and Sanchez, O.: Comparison between simulated and observed chemical composition of fine aerosols in Paris (France) during springtime: contribution of regional versus continental emissions, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 11987–12004, <https://doi.org/10.5194/acp-10-11987-2010>, 2010.
- Skyllakou, K., Murphy, B. N., Megaritis, A. G., Fountoukis, C., and Pandis, S. N.: Contributions of local and regional sources to fine PM in the megacity of Paris, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 2343–2352, <https://doi.org/10.5194/acp-14-2343-2014>, 2014.
- Steenefeld, G.: Stable boundary layer issues, *Met. Wau.Nl*, November, 7–10, 2011.
- Stephens, G. L., Vane, D. G., Boain, R. J., Mace, G. G., Sassen, K., Wang, Z., Illingworth, A. J., O'Connor, E. J., Rossow, W. B., Durden, S. L., Miller, S. D., Austin, R. T., Benedetti, A., Mitrescu, C., CloudSat Science Team, T., Collins, F., City, S. L., and Kingdom, U.: The Cloudsat Mission and the A-Train, *B. Am. Meteorol. Soc.*, 2002, 1771–1790, <https://doi.org/10.1175/BAMS-83-12-1771>, 2002.
- Tombette, M., Mallet, V., and Sportisse, B.: PM<sub>10</sub> data assimilation over Europe with the optimal interpolation method, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 57–70, <https://doi.org/10.5194/acp-9-57-2009>, 2009.
- Toth, T. D., Zhang, J., Campbell, J. R., Hyer, E. J., Reid, J. S., Shi, Y., and Westphal, D. L.: Impact of data quality and surface-to-column representativeness on the PM<sub>2.5</sub>/satellite AOD relationship for the contiguous United States, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 6049–6062, <https://doi.org/10.5194/acp-14-6049-2014>, 2014.
- Vautard, R., Menut, L., Beekmann, M., Chazette, P., Flamant, P. H., Gombert, D., Guédalia, D., Kley, D., Lefebvre, M.-P., Martin, D., Mégie, G., Perros, P., and Toupance, G.: A synthesis of the Air Pollution Over the Paris Region (ESQUIF) field campaign, *J. Geophys. Res.*, 108, 8558, <https://doi.org/10.1029/2003JD003380>, 2003.
- Wang, J. and Christopher, S. A.: Intercomparison between satellite-derived aerosol optical thickness and PM<sub>2.5</sub> mass: Implications for air quality studies, *Geophys. Res. Lett.*, 30, 2–5, <https://doi.org/10.1029/2003GL018174>, 2003.
- Wang, Y., Sartelet, K. N., Bocquet, M., and Chazette, P.: Assimilation of ground versus lidar observations for PM<sub>10</sub> forecasting, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 269–283, <https://doi.org/10.5194/acp-13-269-2013>, 2013.
- Wang, Y., Sartelet, K. N., Bocquet, M., Chazette, P., Sicard, M., D'Amico, G., Léon, J. F., Alados-Arboledas, L., Amodeo, A., Augustin, P., Bach, J., Belegante, L., Biniotoglou, I., Bush, X., Comerón, A., Delbarre, H., García-Vázquez, D., Guerrero-Rascado, J. L., Hervo, M., Iarlori, M., Kokkalis, P., Lange, D., Molero, F., Montoux, N., Muñoz, A., Muñoz, C., Nicolae, D., Papayannis, A., Pappalardo, G., Preissler, J., Rizi, V., Rocadenbosch, F., Sellegri, K., Wagner, F., and Dulac, F.: Assimilation of lidar signals: application to aerosol forecasting in the western Mediterranean basin, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 12031–12053, <https://doi.org/10.5194/acp-14-12031-2014>, 2014.
- Winker, D. M., Pelon, J., McCormick, M. P., Pierre, U., and Jussieu, P.: The CALIPSO mission: Spaceborne lidar for observation of aerosols and clouds, *Proc. SPIE*, 4893, 1–11, <https://doi.org/10.1117/12.466539>, 2003.

von der Weiden-Reinmüller, S.-L., Drewnick, F., Zhang, Q. J., Freutel, F., Beekmann, M., and Borrmann, S.: Megacity emission plume characteristics in summer and winter investigated by mobile aerosol and trace gas measurements: the Paris metropolitan area, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 12931–12950, <https://doi.org/10.5194/acp-14-12931-2014>, 2014.

Yorks, J., Palm, S., McGill, M., Hlavka, D., Hart, W., Selmer, P., and Nowottnick, E.: CATS Algorithm Theoretical Basis Document Level 1 and Level 2 Data Products, Release 1, 2015.

*Atmos. Chem. Phys.*, 20, 6749–6768, 2020

<https://doi.org/10.5194/acp-20-6749-2020>

### 5.2.4 Compléments et conclusion sur l'article

Le déploiement du lidar LAASURS durant l'hiver 2016 – 2017 a permis de documenter les propriétés optiques des aérosols de pollution lors de deux épisodes majeurs en région parisienne. D'après les données de concentration au sol obtenues auprès du réseau de mesure d'Airparif, ces épisodes font partis des quatre épisodes hivernaux les plus intenses de la décennie 2007 – 2017 avec des moyennes régionales de  $PM_{10}$  supérieures au seuil d'alerte sanitaire de  $80 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . L'étude des conditions météorologiques effectuée à partir des réanalyses du modèle ERA5 a permis de mettre en évidence des processus similaires, bien que non identiques, pour la mise en place de ces deux épisodes. L'amplitude de celui de début décembre est renforcée par un anticyclone de moyenne envergure et des vents quasi nuls favorisant un fort piégeage des émissions locales. L'évènement de janvier 2017 est quant à lui initié par la mise en place d'un anticyclone puissant et généralisé sur une grande partie de l'Europe de l'ouest pendant plusieurs jours, et dont le déplacement a permis l'advection et le mélange de pollution dans toute la zone anticyclonique. Les propriétés optiques des aérosols retrouvées par lidar sont alors, sans surprise, distinctes. Les aérosols probablement plus jeunes de décembre 2016 sont caractérisés par un LR de  $72 \pm 15$  sr et un plus fort pouvoir dépolarisant que ceux de janvier ( $10 \pm 3$  % contre  $5 \pm 2$  % respectivement pour le PDR). Le ratio lidar pour les aérosols de janvier est également plus petit :  $56 \pm 15$  sr. Ces valeurs sont en accord avec ce qui a déjà été trouvé pour des situations similaires (cf. Tableau 10) et les tableaux utilisés pour les observations spatiales de CALIOP et CATS (cf. Tableau 11).

Malgré une littérature assez fournie sur la question, l'étude du lien entre les concentrations de particules mesurées en surface et l'épaisseur optique des aérosols (AOT) ne donne pas une bonne corrélation ( $R^2 \sim 0,16$ ) dans les conditions atmosphériques stables rencontrées en hiver. On obtient le même résultat lors d'autres évènements de pollution, que ce soit au printemps ou en été (voir la Fig. 10 dans Chazette et al., 2017). Si un moyen de connaître la hauteur du sommet de la CLA est à disposition (par l'utilisation d'un lidar, par exemple : Lesouëf et al., 2013), normaliser l'AOT par cette altitude permet un gain significatif

de corrélation avec la surface ( $R^2 \sim 0,61$ ). Toutefois, la meilleure corrélation ( $R^2 \sim 0,75$ ) est obtenue en employant le maximum du coefficient d'extinction des aérosols au sein de la CLA hivernale. Ce paramètre accessible de manière résolue via l'inversion de l'équation lidar est donc ici mis en avant pour le suivi par télédétection de la concentration massique d'aérosols près de la surface. L'approche statistique utilisée ici est complémentaire des approches analytiques publiées par Raut et Chazette (2009) et Royer et al (2011b). La section efficace spécifique des aérosols, faisant le lien entre l'extinction optique et la concentration, est trouvée ici égale à  $9,4 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$  pour les  $\text{PM}_{2,5}$  et de  $7,0 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$  pour les  $\text{PM}_{10}$ , proche de valeurs déjà relevées pour les aérosols parisiens ( $\sim 7 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ , pour Raut et Chazette (2009)). Grâce à ce paramètre, il est possible d'obtenir des valeurs de concentrations de particules issues de la mesure lidar comme sur la Figure 56. Le très bon accord avec les mesures au sol apparait clairement sur l'évolution temporelle.

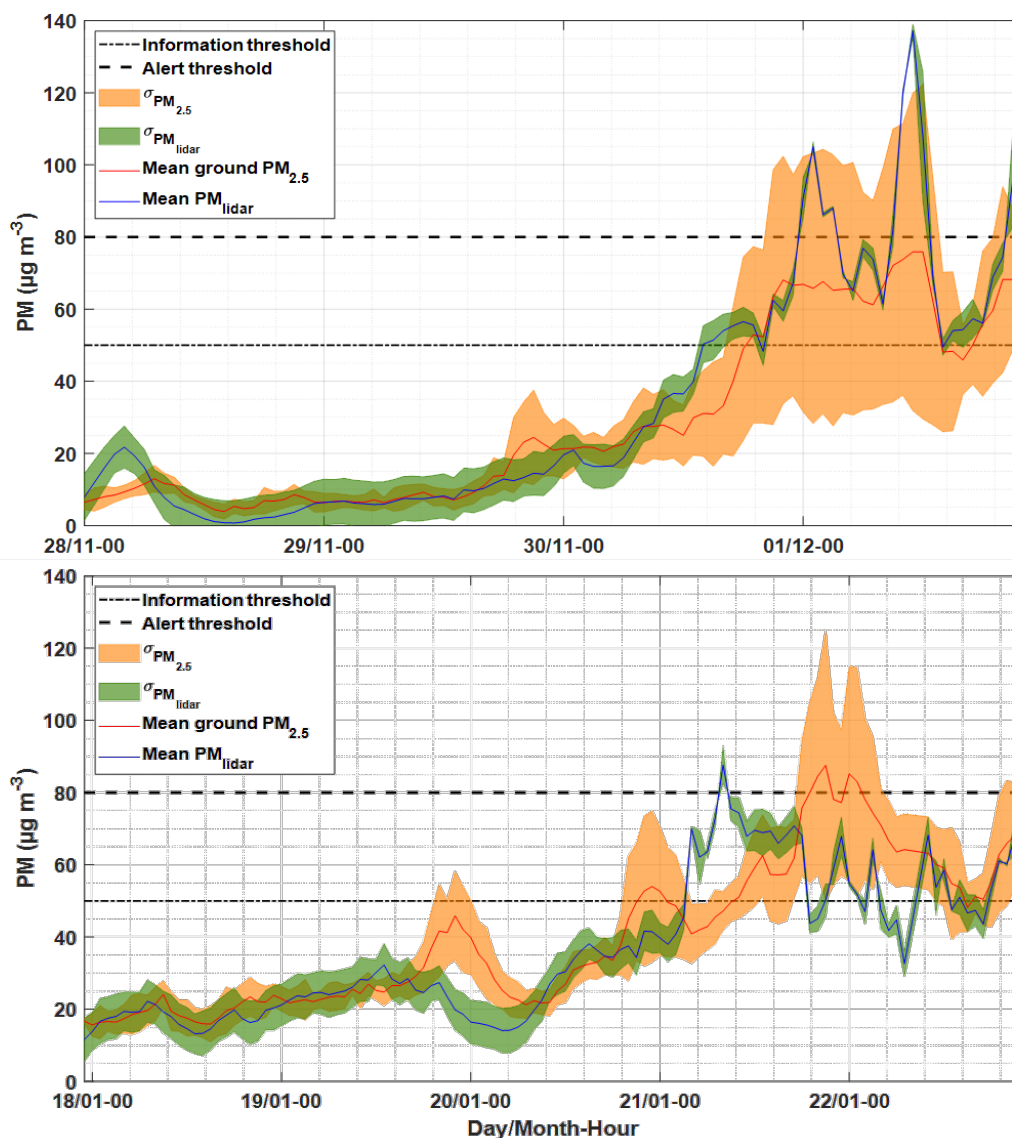


Figure 56 : Séries temporelles de concentration en  $\text{PM}_{2,5}$  mesuré au sol (en trait rouge entouré d'orange) par prélèvement et par lidar dans la zone de la couche limite présentant le plus fort

**coefficient d'extinction des aérosols (en trait bleu entouré de vert). Les enveloppes de couleurs représentent les écarts-types liés aux moyennes spatiales pour les concentrations au sol et temporelle pour le lidar. Les seuils réglementaires sont matérialisés par les traits noirs horizontaux en pointillés.**

L'extinction optique maximale des aérosols dans la couche limite est donc un paramètre prometteur pour la surveillance d'épisodes de pollution intense et n'est pas affecté par la présence d'aérosols au-dessus de la couche limite comme le serait une approche intégrée utilisant l'AOT. Si c'est l'assimilation directe de données lidar qui paraît être la plus prometteuse pour l'amélioration des prévisions des épisodes de pollution (Wang et al. 2013; Wang, Sartelet, Bocquet, Chazette, et al. 2014), la méthode présentée dans ce travail pourrait être transposable à l'observation spatiale pour un suivi de pollution dans la CLA à grande échelle et en particulier dans des régions ne disposant pas de moyens de d'observation et de modélisation développés. La résolution du lidar CALIOP (30 m à 532 nm) et la base de données extrêmement riche déjà acquise permettraient une étude plus approfondie de cette technique, qui pourra perdurer avec la mission EARTHCARE (Illingworth et al. 2015) embarquant un lidar d'une résolution verticale  $\sim 100$  m adéquate à une évaluation de la pollution particulaire proche de la surface.

## **5.3 Evolution des propriétés optiques des aérosols en fonction de l'humidité relative**

### **5.3.1 Intérêt de la mesure simultanée de la température et du rapport de mélange de vapeur d'eau par lidar**

La température et le rapport de mélange de vapeur d'eau sont les variables météorologiques qui pilotent les échanges d'énergie dans l'atmosphère par le transport de chaleur latente et chaleur sensible. Les processus associés à ces échanges ne sont pas compris à toutes les échelles spatiales et temporelles (Wulfmeyer et al. 2015). On peut distinguer deux axes de recherche particulièrement actifs, un axe qui a trait à la météorologie et un autre au climat. Augmenter la compréhension des échanges d'énergie en lien avec le cycle de l'eau à l'échelle météorologique a notamment pour but d'augmenter les capacités de prédiction des événements extrêmes (tempêtes, inondations, éclairs, ...). Au niveau climatique, les boucles de rétroaction entre une augmentation de la température moyenne et la modification du cycle de l'eau atmosphérique sont un sujet encore empreint de nombreuses incertitudes. Dans les modèles numériques, les paramétrisations de la couverture nuageuse requièrent des mesures à haute résolution verticale et continues dans le temps, afin d'évaluer leur représentativité et notamment d'affiner la variabilité sous-maille utilisée



dans les paramétrisations (Quaas 2012; Tompkins 2003). Ces paramétrisations, lorsqu'elles sont confrontées à des observations, montrent une forte dispersion de la rétroaction climatique des nuages (Quaas 2012).

Dans ce contexte, les aérosols jouent également un rôle central, puisqu'ils sont d'une part les noyaux de condensation indispensables à la formation des nuages, et d'autre part une source d'incertitude majeure dans les projections climatiques, de par leur couplage avec le cycle de l'eau et les rétroactions induites. La prise en compte de l'hygroscopicité des aérosols dans les modèles de bilan radiatif montre par exemple des différences d'équilibre radiatif à la surface entre conditions sèches et conditions humides des aérosols de feux (Navas-Guzmán et al. 2019). Par ailleurs, l'hystérésis associée à l'hydratation des aérosols induit une non-linéarité de l'évolution de leurs propriétés optiques, qui gagnerait à être prise en compte dans les modèles radiatifs selon l'évolution de l'humidité de la masse d'air et son historique (Boucher et Anderson 1995; Haywood et Boucher 2000).

Un instrument comme le WALI, capable de mesurer simultanément les paramètres thermodynamiques (la température et le rapport de mélange de vapeur d'eau) ainsi que les propriétés optiques des aérosols, est un outil d'intérêt pour étudier ces interactions aérosols – vapeur d'eau - nuages. La continuité et les résolutions temporelle et verticale d'un tel lidar permettent une amélioration des prévisions via l'assimilation de données, comme démontré par Adam et al. (2016). Des études de processus sont également à mener pour améliorer la représentation physique dans les modèle, via des paramétrisations issues des observations, en particulier en ce qui concerne la variabilité de l'humidité relative en amont de la formation des structures nuageuses (Quaas 2012).

### 5.3.2 Humidité relative mesurée par lidar

Dans cette section, on va montrer comment est calculée l'humidité relative à partir des mesures lidar, puis donner une expression de l'incertitude sur cette évaluation.

#### 5.3.2.1 Définition de l'humidité relative

L'humidité relative ( $RH$  pour « Relative Humidity » en anglais) d'une parcelle d'air correspond, pour une température donnée, au rapport entre la masse de vapeur contenue dans la parcelle et la masse maximale de vapeur d'eau pouvant être contenue par la parcelle avant condensation.  $RH$  se définit, pour une parcelle d'air, comme la pression partielle de la vapeur d'eau ( $P_v$ ) contenue dans cette parcelle divisée par la pression de vapeur saturante ( $P_s$ ) :

$$RH(P, T, r_{H_2O}) = 100 \times \frac{P_v(P, T, r_{H_2O})}{P_s(T)} \text{ exprimé en \%} \quad (80)$$

avec  $P$  la pression atmosphérique,  $T$  la température et  $r_{H_2O}$  le rapport de mélange de vapeur d'eau. La pression est calculée via le profil vertical de température. En considérant l'atmosphère à l'équilibre hydrostatique et en assimilant l'air à un gaz parfait, la pression atmosphérique est effectivement reliée à la température par la relation :

$$P(z) = P_0 \cdot \exp\left(\int_{z_0}^z \frac{-M_a \cdot g}{R \cdot T(z')} dz'\right) \quad (81)$$

avec  $P_0$  la pression à l'altitude de référence  $z_0$ ,  $M_a$  la masse molaire de l'air ( $M_a = 28,965 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$ ),  $R$  la constante des gaz parfaits ( $R = 8,314 \text{ J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ ) et  $g$  l'accélération de la pesanteur terrestre ( $g = 9,81 \text{ m} \cdot \text{s}^{-2}$ ).

Le calcul de  $RH$  nécessite la connaissance de  $P_v$  et  $P_s$  qui sont eux même dépendant de  $T$  et  $r_{H_2O}$ . La démarche pour estimer  $P_v$  et  $P_s$  à partir de la mesure lidar de  $T$  et  $r_{H_2O}$  est présentée dans la suite. L'humidité relative mesurée par lidar, à haute résolution temporelle et verticale, est donc l'aboutissement des mesures conjointes de la température ( $T$ ) et du rapport de mélange de vapeur d'eau ( $r_{H_2O}$ ). Ce dernier paramètre est mesuré en tirant profit de la diffusion Raman vibrationnelle sur les molécules de vapeur d'eau et d'azote de l'air. Le principe de cette mesure est présenté dans le chapitre 2 (§ 2.5.4). La mesure de température utilise comme support la diffusion Raman rotationnelle sur les molécules de diazote et de dioxygène de l'air. Elle a été détaillée dans le chapitre 3.

**Pression partielle de vapeur d'eau.** En considérant le mélange de vapeur d'eau et d'air comme un mélange de gaz parfaits, on peut exprimer la pression partielle de vapeur d'eau  $P_v$  par la loi de Dalton :

$$P_v(T) = \frac{n_v}{n_v + n_a} \cdot P(T) \quad (82)$$

avec  $n_v$  et  $n_a$  le nombre de moles de vapeur d'eau (v) et d'air sec (a). On peut développer en :

$$P_v = \frac{\frac{m_v}{M_{H_2O}}}{\frac{m_v}{M_{H_2O}} + \frac{m_a}{M_a}} \cdot P \Leftrightarrow P_v = \frac{\frac{r_{H_2O}}{\underbrace{m_v}_{\widehat{m}_v}}}{\underbrace{\frac{m_v}{M_{H_2O}}}{r_{H_2O}} + \underbrace{\frac{M_{H_2O}}{M_a}}_{\varepsilon}} \cdot P \quad (83)$$

avec  $m_v$  et  $m_a$  les masses de vapeur et d'air sec, leur rapport étant le rapport de mélange de vapeur d'eau  $r_{H_2O}$  ( $kg \cdot kg^{-1}$ ).  $M_{H_2O}$  est la masse molaire de l'eau ( $M_{H_2O} = 18,01528 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$ ) et  $\varepsilon$  le rapport de cette masse molaire sur la masse molaire de l'air sec qui vaut 0,622.

On a donc finalement :

$$P_v(T, r_{H_2O}) = \frac{r_{H_2O} \cdot P(T)}{r_{H_2O} + \varepsilon} \quad (84)$$

**Pression de vapeur saturante.** La pression de vapeur saturante est la pression partielle de vapeur d'eau lorsqu'au sein de la même parcelle d'air la vapeur se trouve en équilibre thermodynamique avec de l'eau liquide (ou de la glace). Autrement dit, si  $P_v > P_s$ , il y a condensation de vapeur.  $P_s$  peut s'exprimer à partir de la formule de Clausius-Clapeyron mais pour des plages restreintes de température. Pour les applications météorologiques, plusieurs formules semi-empiriques existent, Alduchov et Eskridge (1996) recommandant une formule simple sous la forme d'une équation de Magnus (1844) :

$$P_s(P(T), T) = c_1 \cdot e^{c_2 \cdot P(T)} \cdot c_3 \cdot e^{\frac{c_4 \cdot T}{c_5 + T}} \quad (85)$$

$P$  est ici exprimé hectopascals et  $T$  en degré Celsius. Les coefficients  $c_i$  sont données pour des pressions de vapeurs saturantes par rapport à l'eau liquide et par rapport à la glace pour deux intervalles distincts de température. Ils sont résumés dans le Tableau 12 :

**Tableau 12 : Coefficients utilisés pour le calcul de la pression de vapeur saturante par rapport à l'eau liquide et la glace. Les intervalles de températures sont les intervalles données pour ces coefficients dans l'article de Alduchov et Eskridge (1996).**

	Eau liquide T ∈ [-40°C ; +50°C]	Eau solide T ∈ [-80°C ; 0°C]
$C_1$	1,00071	0,99882
$C_2$	0,0000045	0,000008
$C_3$	0,1094	6,1121
$C_4$	17,625	22,587
$C_5$	243,04	273,86

### 5.3.2.2 Erreur sur la mesure de l'humidité relative par lidar

Avec l'expression de  $RH$  clairement établie comme fonction de  $P$ ,  $T$  et  $r_{H_2O}$ , il est possible de calculer une incertitude sur  $RH$  ( $\Delta RH$ ) issue de la propagation des incertitudes  $\Delta P$ ,  $\Delta T$  et  $\Delta r_{H_2O}$ . Pour des erreurs décorrélées on peut exprimer  $\Delta RH$  par la formule de propagation des incertitudes :

$$\Delta RH = \sqrt{\left(\frac{\partial RH}{\partial T}\right)^2 \cdot (\Delta T)^2 + \left(\frac{\partial RH}{\partial r_{H_2O}}\right)^2 \cdot (\Delta r_{H_2O})^2 + \left(\frac{\partial RH}{\partial P}\right)^2 \cdot (\Delta P)^2} \quad (86)$$

Les équations 81, 84 et 85 permettent d'exprimer les dérivées partielles de l'équation 86. On obtient finalement :

$$\Delta RH = RH \cdot \sqrt{\left(\frac{c_4 \cdot c_5}{(c_5 + T)^2}\right)^2 \cdot (\Delta T)^2 + \left(\frac{\varepsilon}{r_{H_2O} \cdot (\varepsilon + r_{H_2O})}\right)^2 \cdot (\Delta r_{H_2O})^2 + \left(\frac{1}{P} - c_2\right)^2 \cdot (\Delta P)^2} \quad (87)$$

$\Delta T$  et  $\Delta r_{H_2O}$  sont déduits des erreurs instrumentales. Pour la température on peut se référer au chapitre 3 (§ 3.3.3). L'erreur sur le rapport de mélange de vapeur d'eau est calculée pour le WALI via des comparaisons avec radiosondages (P. Chazette et al. 2014), ou d'autres types de sondages, ULM (Totems, Chazette, et Raut 2019), cerf – volant (Totems et Chazette 2016). On peut encadrer cette erreur du WALI par  $0,2 \cdot r_{H_2O} < \Delta r_{H_2O} < 0,6 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ . En général, le terme d'erreur lié à la pression est négligé par rapport aux deux autres sources d'incertitude. On peut montrer via l'équation (81) que  $\Delta P \approx 10^{-2} \cdot P \Delta T$ . Un calcul d'ordre de grandeur montre alors que le terme  $\left(\frac{\partial RH}{\partial P}\right)^2 \cdot (\Delta P)^2$  est deux ordres de grandeurs en-dessous des termes associés à  $T$  et  $r_{H_2O}$ .

### 5.3.3 Application – campagne de mesure L – WAIVE

Il s'agit ici de présenter des premiers résultats qui permettent néanmoins de bien mettre en évidence l'apport des mesures conjointes de température et de vapeur d'eau à partir d'une instrumentation lidar Raman.

#### 5.3.3.1 Présentation de la campagne

Dans le cadre du projet « WAter Vapor and Isotope Lidar » (WAVIL), financé par l'agence nationale de la recherche (ANR), une campagne de mesure nommée L-WAIVE (« Lacustrine-Water vApor Isotope inventory Experiment ») a été menée dans la vallée d'Annecy (Figure 57a) en juin 2019. La Figure 57b présente la localisation plus précise des sites utilisés sur la commune de Lathuile au Sud du « Petit Lac » d'Annecy.

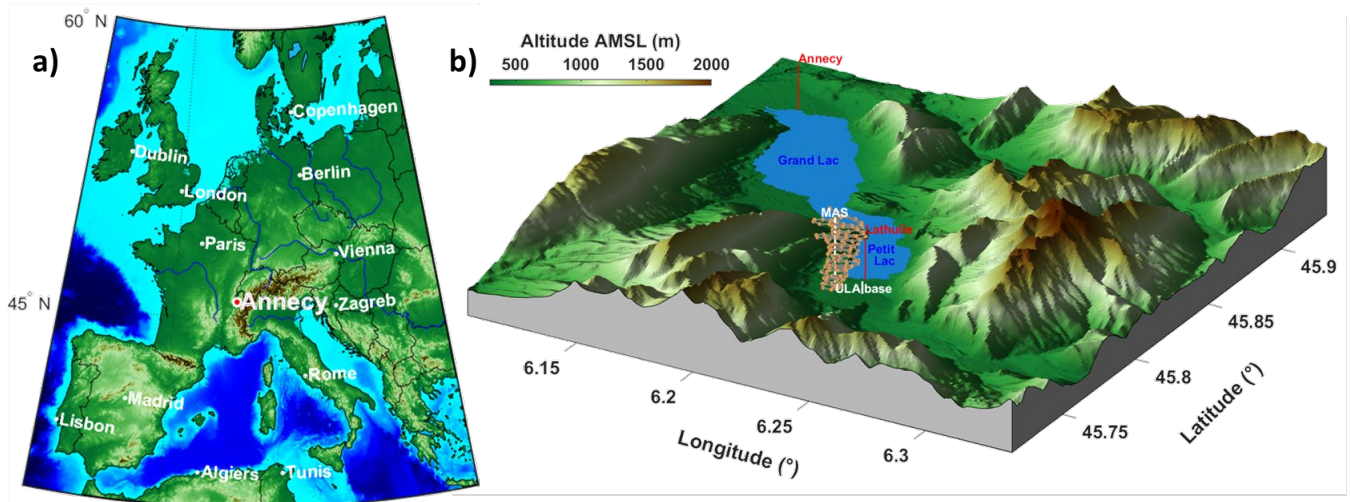


Figure 57 : Carte de l'Europe de l'Ouest avec la localisation d'Anney au centre (point rouge), dans les Alpes française (a). Carte du relief autour de la zone d'étude (b). Au Sud du lac, sur la commune de Lathuile, l'emplacement du camion instrumenté, MAS (« Mobile Atmospheric Station »), et la base de départ des ULM (« ULA base ») sont représenté en blanc. La trajectoire d'un vol d'ULM autour de la localisation du MAS dans un but d'étalonnage est tracé en gris/orange. Le modèle numérique de terrain (b) est issu de données mises à disposition par l'IGN (institut national de l'information géographique et forestière).

L'objectif scientifique principale de L-WAIVE est d'étudier les processus d'évaporation et leur hétérogénéité au-dessus du lac d'Anney en s'appuyant sur la mesure des principaux isotopes stables de l'eau. Des profils à haute résolution temporelle de vapeur d'eau, de température et d'aérosols ont été mesurés par le lidar WALI dans la basse et moyenne troposphère. Les mesures du lidar WALI ont été couplées à celles d'un lidar Doppler (*Leosphere Windcube WLS100*) donnant accès aux 3 composantes du vent. Des mesures aéroportées ont également été effectuées à partir de deux ULM instrumentés. Le premier embarquait un lidar Rayleigh-Mie développé au LSCE : ALIAS (Chazette et al. 2012), un granulomètre optique (FIDAS, Palas), des pyranomètres (CMP22, Kipp and Zonen™) et une sonde météorologique (PTU-300, Vaisala). L'autre ULM mesurait les isotopes stables de l'eau ( $H_2O$ , HDO et  $H_2^{18}O$ ) via un spectromètre à cavité circulaire (CRDS), prélevait de l'eau nuageuse et embarquait également une sonde météorologique. Des mesures ont également été conduites à partir d'un bateau, dans et à l'interface entre l'atmosphère et le lac. La stratégie expérimentale est schématisée dans la Figure 58.

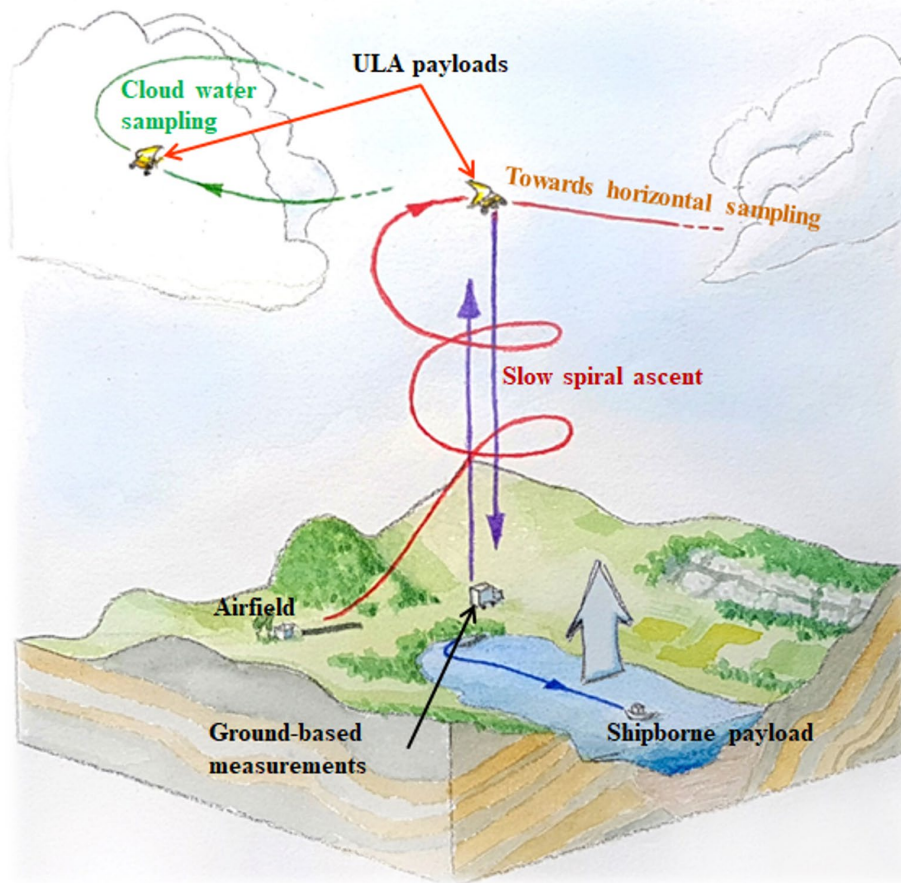


Figure 58 : Schéma de la stratégie adoptée pour les mesures durant la campagne L-WAIVE. On retrouve le camion instrumenté MAS, les deux ULM et les mesures sur le lac. Dessin de J. Totems tiré de l'article de présentation de la campagne soumis prochainement (Chazette et al).

Cette approche multiplateforme et multi-instruments a permis d'échantillonner l'atmosphère surplombant le lac pendant dix jours. Au creux d'une vallée alpine, cette zone est caractérisée par une structuration atmosphérique propre aux environnements montagneux (Figure 59). Les profils conjoints d'humidité relative et de température potentielle permettent d'identifier assez clairement différentes zones sous influence de masses d'airs d'origines locale à synoptique. Des inversions du gradient de température potentielle encadrent ces différentes couches. On note la couche limite atmosphérique associée au lac jusqu'à environ 700 m et dont l'altitude varie peu. Au-dessus, on remarque une influence locale liée à la circulation de vallée engendrée par la présence de relief proche. L'influence des hautes montagnes alpines est mise en évidence entre 1,5 km et 3,5 km d'altitude, enfin au-dessus, on peut considérer être sous une influence d'échelle synoptique.

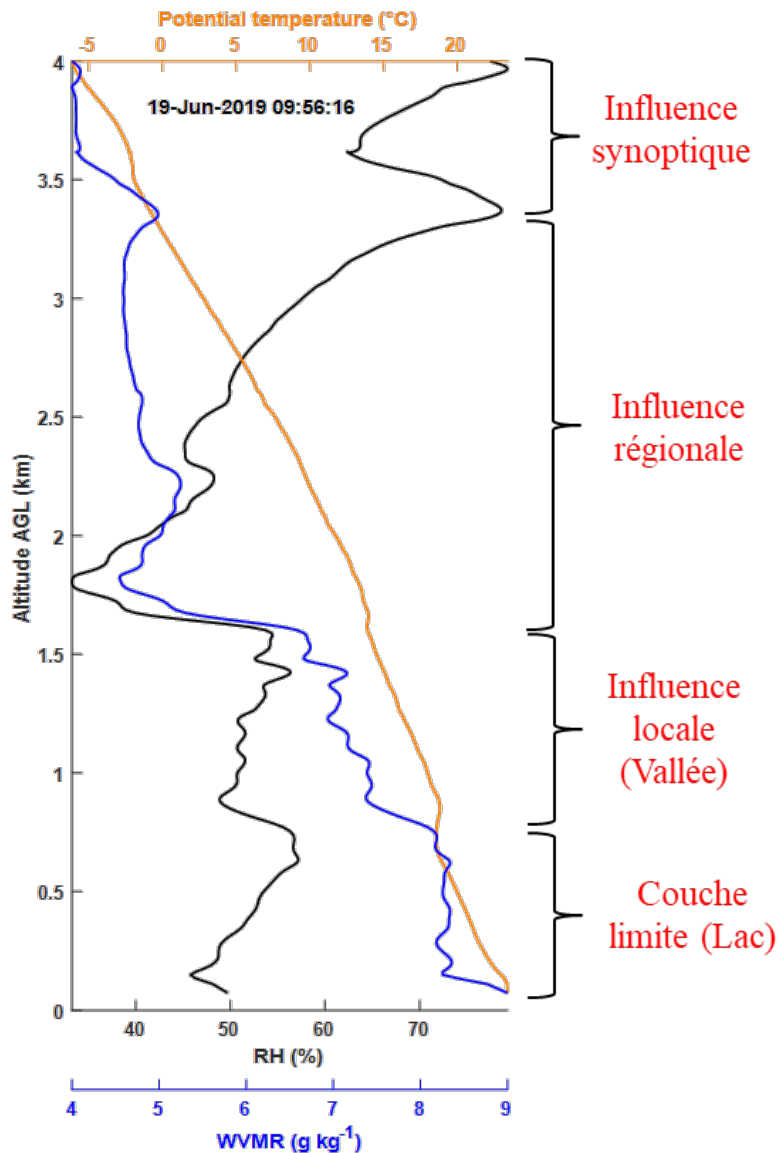


Figure 59 : Profils de température potentielle (orange), rapport de mélange de vapeur d'eau (WVMR, bleu) et humidité relative (noir) selon l'altitude au-dessus du sol (AGL). Sur le côté les différentes influences sont explicitées. PBL correspond à « planetary boundary layer », la couche limite planétaire.

### 5.3.3.2 Premiers résultats

Si la complexité de la dynamique atmosphérique liée à l'orographie a motivé le choix du site de mesure, elle a aussi rendu plus ardu l'étalonnage du WALI. La variabilité horizontale naturelle des paramètres météorologiques dans les basses couches est très importante. Ainsi, des vols dédiés aux étalonnages de la température et du rapport de mélange de vapeur d'eau ont été spécialement conduits pour permettre une co-localisation optimale entre les mesures *in situ* et la télédétection à partir du MAS. Un exemple de vol en spirale autour du faisceau laser est tracé en Figure 57b et schématisé dans la Figure 58. Pour la température, la courbe d'étalonnage utilisée a été présentée en exemple dans le chapitre 3 (§ 3.1.4). La

Figure 60 présente les observations thermodynamiques issues du lidar WALI. On notera que l'énergie émise par le laser n'était pas nominale pendant la campagne, ce qui a limité sa portée.

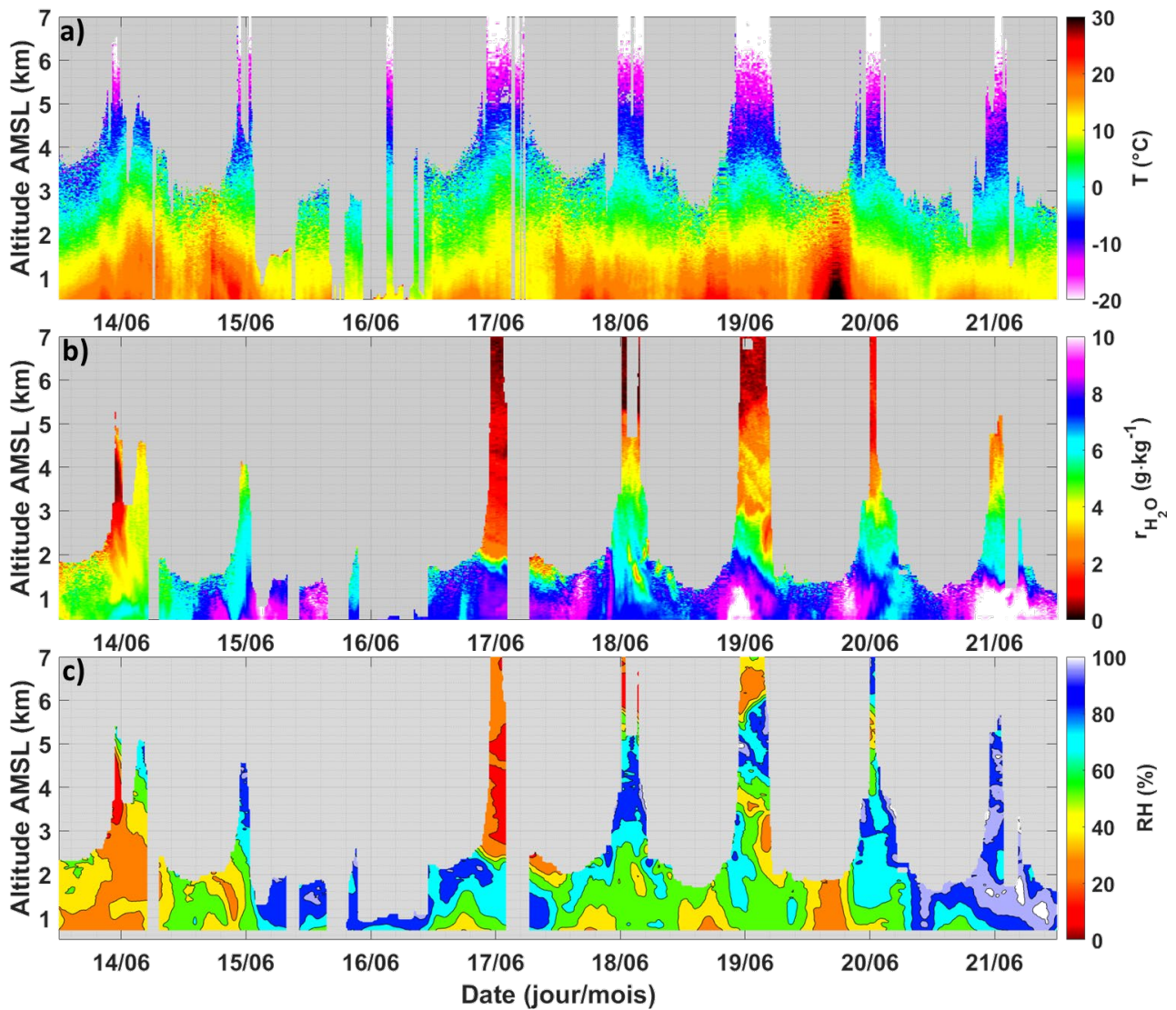


Figure 60 : Série temporelles en fonction de l'altitude des données thermodynamiques mesurées par le WALI du 13 au 21 juin 2019 à Lathuile. La température  $T$  (a) est tracée en couleur en degré Celsius, le rapport de mélange de vapeur d'eau  $r_{H_2O}$  (b) est tracé en couleur en  $g \cdot kg^{-1}$ , et l'humidité relative RH (%) est tracée en couleur avec des contours (%). Les résolutions temporelles et verticales sont de 20 min et 20 m puis 40 m au-dessus de 5 km.

La période a vu plusieurs systèmes orageux se décharger dans la vallée ce qui explique les bandes grisées jusqu'au sol durant les premières journées, notamment les 15 et 16 juin. On perçoit le cycle journalier de la température dans la couche limite avec des maximums quotidiens en fin d'après-midi (a). Pour  $r_{H_2O}$ , on note un début assez sec le 14 suivi par des valeurs autour de  $8 g \cdot kg^{-1}$  en moyenne dans la couche limite. Entre la couche limite et les couches supérieures on remarque un très fort contraste de  $r_{H_2O}$ , d'autant plus significatif durant la journée et la nuit du 17 juin.



Les observations d'humidité relative montrent également une zone de RH très faible le 17 en altitude. On retrouve également un cycle marqué les 16, 17, 18 et 19 juin avec une humidité bien plus forte le matin et un RH qui diminue dans la journée conjointement à l'augmentation de la température.

Pour aller plus loin dans l'interprétation, les mesures de vent issues du lidar Doppler disposé aux côtés du WALI seront analysées. Cela permettra de faire apparaître les régimes de vents de pentes, dont les vents anabatiques et catabatiques, qui interfèrent avec la circulation plus générale de la vallée, avec une forte variabilité au cours de la journée (anabatique le jour et catabatique la nuit).

### 5.3.3.3 Cohérence avec les observations aéroportées

L'ULM qui a été utilisé pour des vols d'étalonnage de  $T$  et  $r_{H_2O}$  est une référence robuste pour vérifier la cohérence des profils d'humidité relative déduit des mesures du WALI. La Figure 61 met en regard les données de 13 vols ULM avec les profils du WALI concomitants. On remarque un assez bon accord ULM – WALI pour les vols sélectionnés. On note également une certaine dispersion qui peut être d'une part le résultat des incertitudes mais également d'origine naturelle due à la variabilité spatiale de RH lorsque l'ULM s'éloigne de la localisation du WALI. Les barres d'erreurs sur les données lidar sont calculées suivant l'équation 87 en considérant des incertitudes de  $0,5^\circ\text{C}$  sur la température et  $0,5 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$  sur  $r_{H_2O}$ . Ces valeurs d'incertitudes sont réalistes et même majorent les erreurs de mesure.

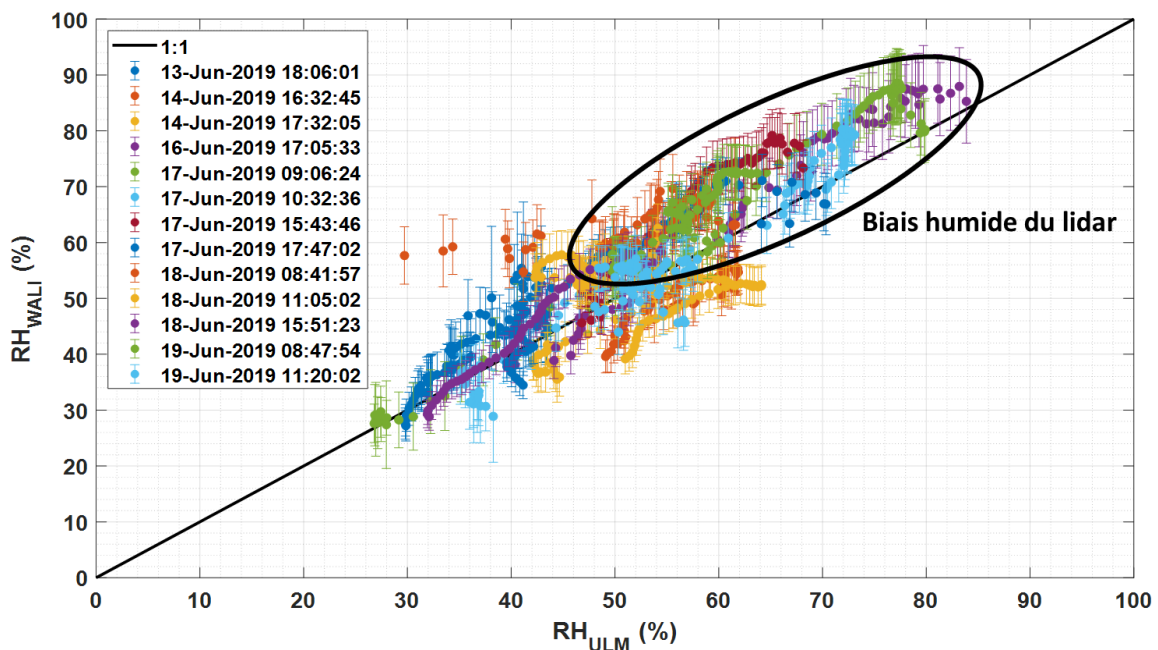


Figure 61 : Nuage de points des données de treize vols ULM et des profils d'humidité du WALI concomitants. Les barres d'incertitudes correspondent aux données du WALI.

Il est intéressant de quantifier les écarts des deux jeux de données à l'aide d'indicateurs statistiques utilisés dans le chapitre 4 : biais moyen (MB), la corrélation (COR) et l'écart quadratique moyen centré (RMSE). Les profils de ces indicateurs sont tracés sur la Figure 62 et restreint par le nombre de données disponible à 2 km d'altitude.

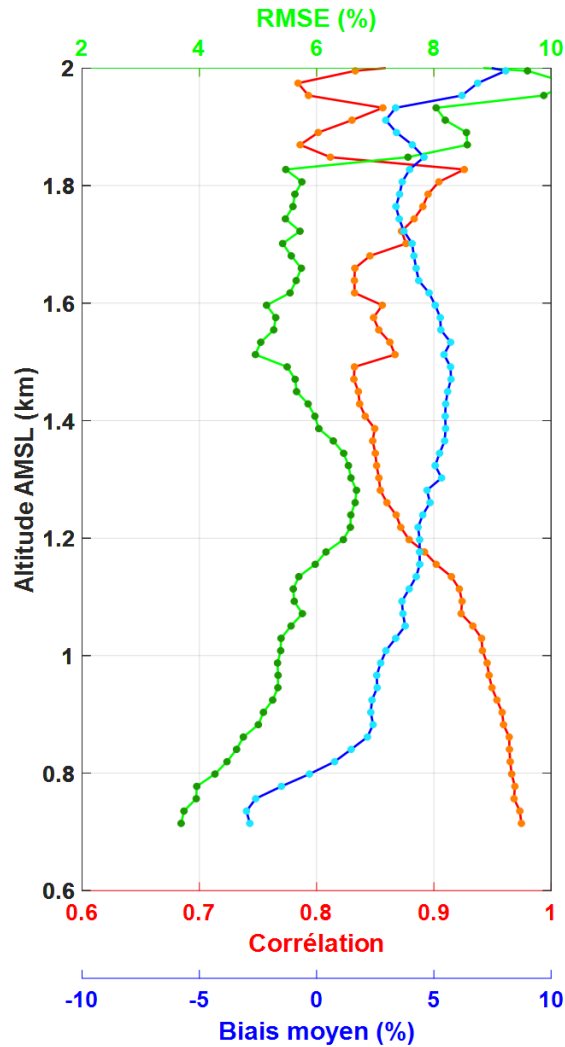


Figure 62 : Profils de biais moyen (bleu), corrélation (rouge) et écart quadratique moyen (vert) pour les profils d'humidité relative présentés en Figure 61. Les indicateurs sont calculés en % d'humidité relative avec l'ULM comme référence ( $T_{\text{Lidar}} - T_{\text{ULM}}$ ).

On note une bonne corrélation ( $> 0,8$ ) et une RMSE autour de 6% jusqu'à 1,8 km. Le biais moyen est de l'ordre de 5 %. On notera que sur la Figure 61 un biais positif du lidar par rapport à la mesure *in situ* de l'ULM est mis en évidence. Les données de *RH* lorsque l'ULM est éloigné du lidar ne sont, à ce stade, pas discriminées. La position GPS de l'ULM étant enregistrée, cette discrimination peut être faite par la suite. Un meilleur accord ULM – WALI est attendu en éliminant ces données porteuses de la variabilité naturelle autour du Petit Lac d'Annecy.

### 5.3.3.4 Hygroscopicité des aérosols

L'hygroscopicité d'un aérosol est sa capacité, de par sa nature physico-chimique, à absorber l'humidité atmosphérique. La théorie de Köhler (1936) modélise la réponse d'un aérosol aux évolutions d'humidité relative. La taille et la composition chimique de l'aérosol en question sont les paramètres clefs de ces interactions aérosols – vapeur d'eau. L'évolution de la taille ou de la conformation de l'aérosol lors de ces interactions va nécessairement faire évoluer ses propriétés optiques, et donc les effets radiatifs associés à un type d'aérosol particulier. Ce dernier point est une question scientifique d'intérêt pour améliorer la compréhension des rétroactions climatiques des aérosols qui restent entourées d'incertitudes, notamment liées aux processus de vieillissement et d'interaction avec l'humidité atmosphérique.

La variation des propriétés des aérosols en fonction de l'humidité relative a été étudiée par Hänel (1976). Pour une propriété  $\xi$  donnée on peut calculer un facteur d'accroissement selon la formule de puissance à un seul paramètre  $\gamma$  :

$$f_{\xi}(RH) = \frac{\xi(RH)}{\xi(RH_{ref})} = \left( \frac{1 - RH/100}{1 - RH_{ref}/100} \right)^{-\gamma} \quad (88)$$

avec RH exprimé ici en %.  $\gamma$  est un indicateur de l'hygroscopicité des aérosols, il va croissant avec leur caractère hydrophile. Des études précédentes, utilisant cette même équation de Hänel pour le coefficient de rétrodiffusion, tendent à montrer que les valeurs de  $\gamma$  sont corrélées à la fraction inorganique des aérosols réputés hydrophiles (Bedoya-velásquez et al. 2019; Randriamiarisoa et al. 2006).

Pendant la campagne L-WAIVE, les instruments embarqués par l'ULM de télédétection ont permis la mesure conjointe du coefficient d'extinction et de la granulométrie en nombre des aérosols. Ces mesures ont été effectuées simultanément à celle de l'humidité relative de l'atmosphère. On peut ainsi chercher un lien entre l'accroissement de la section efficace de diffusion des aérosols en fonction de l'humidité relative selon la relation (88). Pour cela, on fait l'hypothèse que durant le vol étudier la nature des aérosols présent dans la partie échantillonnée de l'atmosphère ne varie pas ou très peu. En normalisant, pour chaque altitude, le coefficient d'extinction déduit de la mesure lidar aéroportée par la concentration en nombre des aérosols, on obtient directement la section efficace d'extinction particulaire :

$$\sigma_{extinction,a}(z) = \frac{\alpha_a(z)}{N_a(z)} \quad (89)$$

avec  $\sigma_{extinction,a}$  la section efficace d'extinction des aérosols,  $\alpha_a(z)$  le coefficient d'extinction des aérosols mesuré par lidar et  $N_a(z)$  le nombre de particule par unité de volume mesurée par le FIDAS. C'est sur la section efficace que l'effet de l'humidité relative est étudié.

Le vol du 21 juin constitue un cas d'étude intéressant. La configuration du vol est présentée en Figure 63a. L'ULM est monté au-dessus du lac puis a échantillonné l'atmosphère le long de la vallée d'Annecy jusqu'à Albertville à une altitude supérieure à 2km.

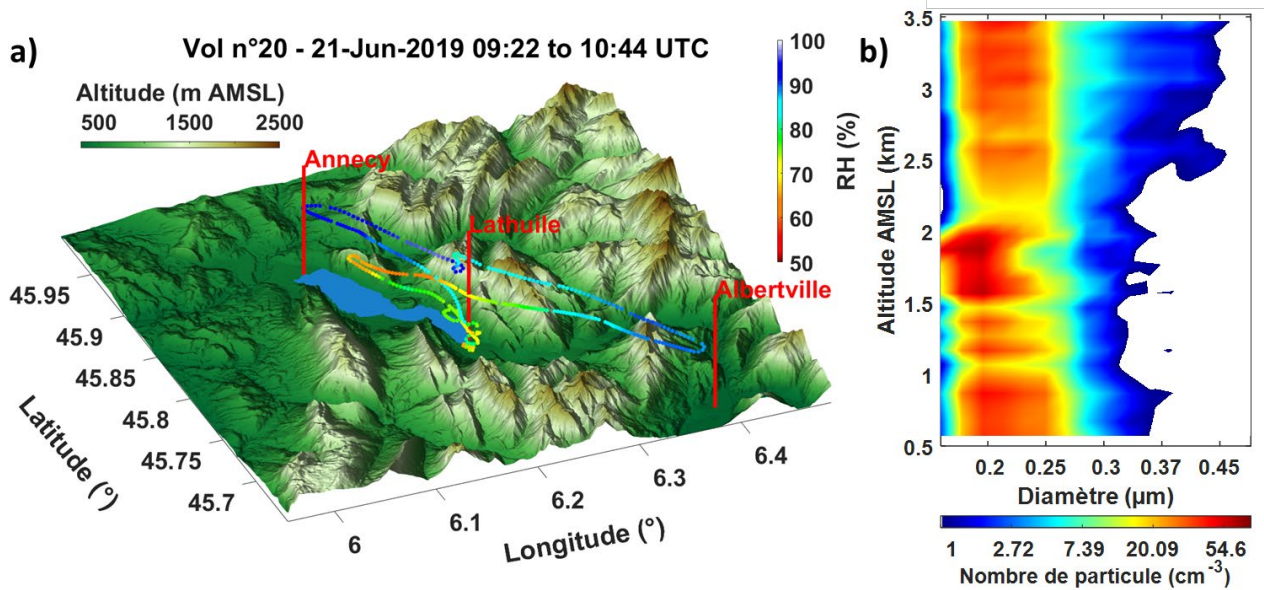


Figure 63 : a) Plan de vol du 21 juin 2019 de l'ULM embarquant le lidar ALIAS, le granulomètre optique et la sonde météorologique. L'humidité relative mesurée par la sonde est tracée en couleur de 50 % à 100 %. b) Distribution granulométrique en fonction de l'altitude pour le vol du 21 juin 2019 vers 11h, heure locale. L'échelle de couleur qui représente la concentration en nombre des aérosols est en échelle logarithmique.

Les valeurs de  $RH$  varient d'environ 60 % à 90 %. La granulométrie des aérosols pour ce vol est tracée en Figure 63b. Elle apparaît peu variable en fonction de l'altitude sauf entre 1,5 et 2 km AMSL lors de la transition des conditions d'influence vallée – synoptique. Cette granulométrie laisse supposer une nature de particules similaire dans la couche limite et dans la basse troposphère libre (l'ULM demeure dans la couche d'influence régionale des Alpes dont le sommet est à 3.5 km, cf Figure 5). Une telle situation peut être liée à un mélange vertical efficace au moment de l'établissement de la brise de vallée. La section efficace d'extinction des aérosols est ainsi tracée en fonction de  $RH$  sur la Figure 64.

Une tendance est observée à l'augmentation de la section efficace avec  $RH$ . Avec une valeur de  $RH$  de référence prise à 65 %, en ajustant par régression la relation (12) avec  $\xi = \sigma_{extinction}$ , on obtient  $\gamma = 1,35 \pm 0,06$ . Cette valeur est identique à la valeur trouvée par Randriamiarisoa et al. (2006) pour des aérosols de pollution urbaine en été. Elle caractérise une hygroscopicité importante par rapport à d'autres valeurs trouvées récemment dans la littérature qui sont souvent inférieures à l'unité pour des mélanges d'aérosols

ruraux et de feux ou des mélanges associant des poussière désertiques (Bedoya-velásquez et al. 2018; Navas-Guzmán et al. 2019; Bedoya-velásquez et al. 2019).

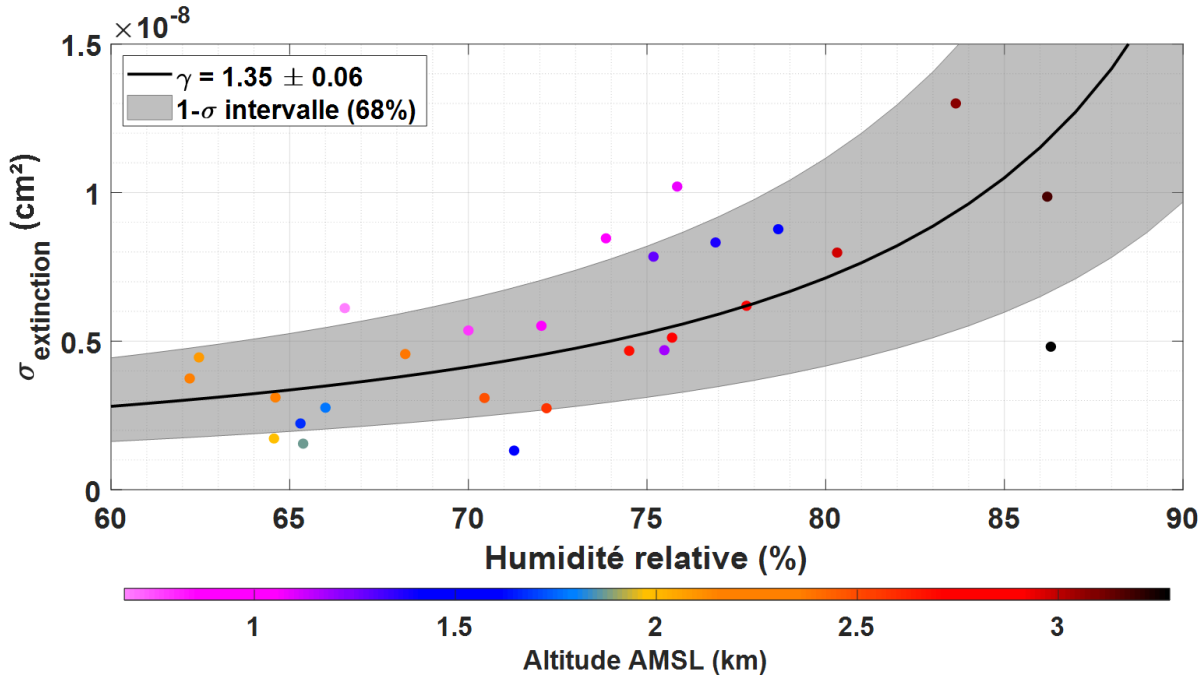


Figure 64 : Section efficace d’extinction ( $\sigma_{\text{extinction}}$ ,  $\text{cm}^2$ ) en fonction de l’humidité relative. La couleur des points renseigne sur l’altitude de la mesure. Une régression est effectuée selon la loi présentée dans l’équation 88. Le résultat est un coefficient  $\gamma$  dont la valeur est donnée en légende.

Des analyses restent à mener pour étudier si un accroissement en taille de l’aérosol est observé, pour le cas d’étude discuté. Sous l’hypothèse d’une nature d’aérosols et d’une concentration homogène dans la zone étudiée, les mesures continues du WALI permettront d’étudier par télédétection l’hygroscopicité sur des périodes prolongées, comme ce qui est fait par exemple par Navas-Guzmán et al. (2019).

## 5.2.4 Enjeux et perspectives

La mesure conjointe des paramètres thermodynamiques de l’atmosphère et des propriétés optiques des aérosols répond à des enjeux météorologiques et climatiques. La diminution des incertitudes liés aux interactions aérosols – vapeur d’eau – nuages sur le climat passe notamment par une meilleure compréhension des processus associés à de telles interactions.

Dans ce contexte, la campagne L-WAIVE a été une opportunité de déployer de manière coordonnée des instruments de diverses natures, dont le lidar WALI, pour étudier ce type de processus au-dessus d’une vallée alpine. Le but de cette campagne est de comprendre les phénomènes d’évaporation et leur variabilité dans un contexte montagneux complexe incluant un lac glaciaire. Des analyses restent à mener pour étudier

la circulation dans la vallée et son lien avec la variabilité de  $RH$ . L'effet de  $RH$  sur les propriétés des aérosols devra faire également l'objet d'approfondissements. Un deuxième cas d'étude semble intéressant en termes d'hygroscopicité et devra être analysé. La richesse des données acquises pendant cette campagne permettra la réalisation de plusieurs études (un article de présentation globale de la campagne et des données acquises sera soumis prochainement).

A terme, on peut envisager plusieurs apports majeurs de la mesure conjointe des propriétés optiques acquises par lidar, des variables thermodynamiques de l'atmosphère et donc de l'hygroscopicité des aérosols. On peut citer : i) la prévision des processus de transport de vapeur d'eau avec les panaches d'aérosols (Kim et al. 2009), et l'évolution des propriétés optiques en leurs seins (Randriamiarisoa et al. 2006), ii) la classification des types d'aérosols suivant leur hygroscopicité et l'association aux différentes sources identifiables par la trajectographie de masses d'air, iii) la réponse des effets radiatifs des panaches d'aérosols aux conditions locales, pour les prévisions climatiques. Les mesures d'hygroscopicité conduites seulement par télédétection à l'aide d'un lidar Raman se font sous des hypothèses fortes d'homogénéité des couches étudiées, aussi bien en concentration qu'en nature d'aérosols (Navas-Guzmán et al. 2019). Disposer de mesures exogènes, notamment de granulométrie, qui nécessitent néanmoins la coordination avec des moyens *in-situ*, permettra l'étude de cas plus complexes.

## 5.4 Conclusion

Une meilleure compréhension des cycles couplés des aérosols et de la vapeur d'eau passe par une connaissance amont des aérosols, et plus particulièrement de leurs propriétés optiques en lien avec leurs granulométrie, morphologie et composition chimique. Les aérosols sont depuis plusieurs décennies observés par télédétection active lidar, et le corpus des nombreuses observations permet désormais de classer les aérosols selon leur nature via la mesure de leurs propriétés optiques (e.g. Chazette et al., 2014). En particulier, les aérosols issus des activités anthropiques, bien que minoritaires par rapport aux aérosols naturels, influencent significativement le bilan radiatif du système terre, du fait de leur pouvoir absorbant et de leur hygroscopicité. Ces aérosols produits proches de nos lieux de vie, de plus en plus concentrés en centres urbains densément peuplés, sont susceptibles de perdurer dans notre environnement proche dans des concentrations pouvant dépasser les normes sanitaires.

Deux épisodes de pollution hivernaux majeurs de la dernière décennie, et les propriétés optiques des aérosols qui en sont à l'origine, ont été étudiés en région Île-de-France. Nous avons montré que les concentrations

massiques de polluants au sol peuvent être approchées assez justement par le coefficient d'extinction des aérosols au sein de la couche limite atmosphérique. Cette approche présente un fort intérêt scientifique car elle peut être transposée aux observations par des lidars embarqués sur des satellites d'observation de la Terre. Ceci offrira l'opportunité d'évaluer l'importance d'épisodes de pollutions aux aérosols dans des zones pas ou peu équipées en outils de mesure à la surface et en outils de modélisation de la chimie atmosphérique. Un deuxième prérequis pour l'étude des interactions aérosols – vapeur d'eau – nuages est la mesure des variables thermodynamiques de l'atmosphère. Dans ce contexte, les lidars Raman capables de mesurer conjointement le rapport de mélange de vapeur d'eau et la température sont des outils de premier ordre. Le lidar WALI, développé au LSCE, se place ainsi comme un instrument permettant l'étude de la variabilité fine échelle de l'humidité relative dans l'atmosphère. Son déploiement lors de campagnes expérimentales permet, en association avec d'autres instruments de mesures complémentaires, des études de l'évolution des propriétés optiques des aérosols en atmosphère humide. La campagne L-WAIVE menée à l'été 2019 au Sud du lac d'Annecy a permis un tel déploiement d'instruments. Les mesures effectuées depuis différentes plateformes, au sol, sur le lac et en altitude permettent d'appréhender les conditions environnementales (température, humidité relative, aérosols) dans ce milieu atmosphérique complexe qu'est une vallée alpine. Les résultats préliminaires montrent une bonne cohérence des mesures d'humidité relative réalisées de manière *in situ* par ULM et celles effectuées par télédétection lidar à l'aide du WALI. Ces résultats attestent de la fiabilité du système WALI pour suivre le champ d'humidité relative à haute résolution, en particulier dans un environnement complexe. Par ailleurs, le calcul de l'hygroscopicité des aérosols effectué à l'aide des mesures des instruments aéroportés (FIDAS, PTU, Lidar ALIAS aéroporté) démontre la faisabilité d'une telle approche pour étudier les interactions des aérosols et de la vapeur d'eau. A terme, de telles études de processus doivent permettre une meilleure prise en compte de la microphysique des aérosols dans les paramétrisations des modèles de circulation générale, qu'ils soient à visées météorologique ou climatique.

---

## Chapitre 6 : Conclusion générale

<b>6.1</b>	<b>SYNTHESE .....</b>	<b>181</b>
<b>6.2</b>	<b>PERSPECTIVES.....</b>	<b>182</b>
6.2.1	VALIDATIONS DES INSTRUMENTS SPATIAUX .....	183
6.2.2	AMELIORATION DES PREVISIONS D'EVENEMENTS EXTREMES.....	183

### 6.1 Synthèse

Les cycles couplés des aérosols, de la vapeur d'eau et des nuages sont au cœur des enjeux climatiques et météorologiques actuels. Une meilleure compréhension des interactions entre ces différents cycles atmosphériques doit permettre de mieux appréhender les processus conduisant à des événements météorologiques extrêmes et également de diminuer les incertitudes des projections climatiques, en grande partie liées aux interactions aérosols – nuages. Pour relever ces défis scientifiques, les instruments d'observations capables de suivre à hautes résolutions les variables impliquées dans ces processus sont au premier plan. Les travaux de recherches menées durant cette thèse s'inscrivent dans la résolution de ces problématiques par la valorisation d'un instrument lidar Raman innovant. Le « Weather And Aerosols Lidar » (WALI), développé au LSCE, fait partie d'une poignée d'instruments capables de mesurer simultanément, à haute cadence temporelle et haute résolution verticale, les propriétés optiques des aérosols et les variables thermodynamiques de l'atmosphère : la température, le rapport de mélange de vapeur d'eau. J'ai montré durant mon travail de thèse que cette nouvelle possibilité de mesure, dans la couche limite atmosphérique et la basse et moyenne troposphère libre, fait de la télédétection active par lidar une technique incontournable pour avancer dans notre compréhension de l'atmosphère météorologique et évaluer l'importance des perturbations engendrées par les activités humaines.

J'ai pu conduire une étude originale sur les propriétés optiques des aérosols à la base d'épisodes de pollution sévères en Île-de-France (Baron, Chazette, et Totems 2020). La forte corrélation trouvée entre l'extinction des aérosols dans la couche limite atmosphérique et les niveaux de concentration massique au sol laisse envisager des applications à l'échelle globale. Elle doit permettre d'évaluer la pollution particulaire à la surface, dans des zones peu équipées de station d'observation, par l'utilisation de lidars embarqués sur



satellite comme cela est déjà le cas de la mission CALIPSO et bientôt Earthcare. La haute résolution verticale du lidar lui confère également la possibilité d'étudier des atmosphères stratifiées avec des couches d'aérosols d'origines différentes. Couplé avec la modélisation, les mesures lidar permettent d'étudier la complexité des transports d'aérosols afin de relier la dynamique atmosphérique et l'impact radiatif dans des zones critiques vis-à-vis des rétroactions climatiques.

L'implémentation d'une voie température sur le lidar WALI du LSCE lui confère de nouvelles possibilités d'observations via la diffusion Raman rotationnelle sur les molécules de diazote de dioxygène. Elles le font entrer dans un cercle très restreint d'instruments de ce type. J'ai effectué un bilan de liaison de cette nouvelle chaîne d'acquisition en utilisant une approche par modélisation directe-inverse (modélisation "end-to-end"). Les caractéristiques du lidar en termes de portées et d'erreur associées ont été évaluées puis mises à profit pour des mesures réalistes sur le milieu atmosphérique. Des premières mesures mettent en évidence les facultés du lidar à retranscrire un champ de température complexe à haute résolutions temporelle et verticale de manière continue dans la basse troposphère. A partir de ces observations, j'ai pu effectuer des inter comparaisons avec les mesures du radio-spectromètre spatial IASI. Ceci m'a permis de démontrer le potentiel de ce type d'instrument pour combler le manque d'observations continues dans les premiers kilomètres de l'atmosphère de grande importance météorologique car contenant la majorité de la vapeur d'eau atmosphérique. La compacité du système WALI, atypique pour ce genre d'instrument, lui permet d'être aisément déployé sur le terrain via un véhicule instrumenté. Mes travaux de recherche ont ainsi été jalonnés par des campagnes de mesures qui ont permis démontrer l'apport de la mesure conjointe du contenu en vapeur d'eau et de la température pour extraire la variabilité de l'humidité relative dans la basse et moyenne troposphère. Ces résultats, en lien avec la mesure des propriétés optiques des aérosols, laissent entrevoir des possibilités d'études des interactions aérosols – vapeur d'eau, en particulier de l'hygroscopicité, basée essentiellement sur la télédétection active lidar.

## 6.2 Perspectives

Ce travail de thèse ouvre sur de multiples perspectives dont les principales sont présentées dans cette section. Elles reposent sur mes travaux d'analyse, mais également sur les campagnes de terrain auxquelles j'ai participées et qui n'ont pas pu être toutes valorisées durant ma thèse.

### 6.2.1 Validations des instruments spatiaux

Les résultats de l'inter-comparaison des mesures de température WALI – IASI ont montré que ce lidar peut être employé pour qualifier les produits opérationnels issues capteurs spatiaux. La pluralité des paramètres mesurés par le WALI lui permet de participer à la validation des produits d'un éventail important d'instruments embarqués sur des plateformes spatiales. Parmi eux, les sondeurs passifs tel que IASI et AIRS qui fournissent des profils de variables thermodynamiques, mais aussi leur nouvelles génération à venir, avec notamment IASI-NG (Crevoisier et al. 2014). La facilité avec laquelle l'instrument WALI peut être déployé peut également permettre de l'utiliser sur des croisements d'orbites de satellites embarquant des lidars spatiaux. La validation des produits aérosols de la récente mission ADM-Aeolus (Flamant et al. 2008), lancé en 2018, fait partie du potentiel offert par le WALI qui utilise la même longueur d'onde que le lidar ALADIN, dont le principal objectif est la mesure de vent par effet Doppler et le produit secondaire les propriétés optique des aérosols atmosphériques. De même, le lidar ATLID de la mission EarthCARE (Illingworth et al. 2015) prendra la relève de la mission CALIPSO, en 2022. Le changement de longueur d'onde du couple 1064 nm / 532 nm pour CALIOP à l'utilisation du 355 nm pour ATLID fait l'objet d'une attention particulière (Reverdy et al. 2015). Le WALI est un instrument pouvant être utilisé à des fins de validation de ces nouveaux produits spatiaux, mais également pour la préparation de futures missions d'observation de la Terre.

### 6.2.2 Amélioration des prévisions d'évènements extrêmes

De précédents travaux ont montré que l'assimilation de profils de température, mesurés par lidar de manière continue, peut sensiblement améliorer la représentativité de modèle de prévisions méso-échelle (Adam et al. 2016). Avec l'émergence de plusieurs systèmes de même type que le WALI, une mise en réseau de ces lidars « météorologiques » en des points critiques pour la prévision d'évènements extrêmes pourrait permettre de mieux prédire l'intensité de ces évènements. En particulier, l'amélioration des prédictions sur la localisation des systèmes convectifs méso-échelle lors d'évènements méditerranéens permettrait de diminuer les impacts des inondations éclairées associées. Un projet porté par Météo-France, le LSCE et le LATMOS a été soutenu par l'ANR sur ce sujet d'actualité cette année. Il s'agit du projet WaLiNeAs (Water vapor Lidar Network Assimilation) qui vise à faire pour la première fois une étude en vraie grandeur de l'intérêt des mesures lidar Raman mis en réseau pour améliorer les prévisions météorologiques d'évènements de précipitation extrêmes sur le sud de la France. Le lidar WALI sera une pièce maitresse de cette expérience de terrain.

---

## Bibliographie

- Ackerman, A. S., O. B. Toon, D. E. Stevens, A. J. Heymsfield, V. Ramanathan, et E. J. Welton. 2000. « Reduction of tropical cloudiness by soot ». *Science*. <https://doi.org/10.1126/science.288.5468.1042>.
- Adam, Stephan, Andreas Behrendt, Thomas Schwitalla, Eva Hammann, et Volker Wulfmeyer. 2016. « First assimilation of temperature lidar data into an NWP model: impact on the simulation of the temperature field, inversion strength and PBL depth ». *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 142 (700): 2882-96. <https://doi.org/10.1002/qj.2875>.
- Alados-Arboledas, L., D. Müller, J. L. Guerrero-Rascado, F. Navas-Guzmán, D. Pérez-Ramírez, et F. J. Olmo. 2011. « Optical and microphysical properties of fresh biomass burning aerosol retrieved by Raman lidar, and star-and sun-photometry ». *Geophysical Research Letters*. <https://doi.org/10.1029/2010GL045999>.
- Albrecht, Bruce A. 1989. « Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness ». *Science*. <https://doi.org/10.1126/science.245.4923.1227>.
- Alduchov, Oleg A., et Robert E. Eskridge. 1996. « Improved Magnus form approximation of saturation vapor pressure ». *Journal of Applied Meteorology*. [https://doi.org/10.1175/1520-0450\(1996\)035<0601:IMFAOS>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0450(1996)035<0601:IMFAOS>2.0.CO;2).
- Amiridis, V., D. S. Balis, E. Giannakaki, A. Stohl, S. Kazadzis, M. E. Koukouli, et P. Zanis. 2009. « Optical characteristics of biomass burning aerosols over Southeastern Europe determined from UV-Raman lidar measurements ». *Atmospheric Chemistry and Physics*. <https://doi.org/10.5194/acp-9-2431-2009>.
- Amiridis, V., D. S. Balis, S. Kazadzis, A. Bais, E. Giannakaki, A. Papayannis, et C. Zerefos. 2005. « Four-year aerosol observations with a Raman lidar at Thessaloniki, Greece, in the framework of European Aerosol Research Lidar Network (EARLINET) ». *Journal of Geophysical Research Atmospheres*. <https://doi.org/10.1029/2005JD006190>.
- Ångström, Anders. 1964. « The parameters of atmospheric turbidity ». *Tellus* 16 (1): 64-75. <https://doi.org/10.1111/j.2153-3490.1964.tb00144.x>.
- Arshinov, Yuri, Sergey Bobrovnikov, Ilya Serikov, Albert Ansmann, Ulla Wandinger, Dietrich Althausen, Ina Mattis, et Detlef Müller. 2005. « Daytime operation of a pure rotational Raman lidar by use of a Fabry-Perot interferometer ». *Applied Optics*. <https://doi.org/10.1364/AO.44.003593>.
- Arshinov, Yuri F., Sergej M. Bobrovnikov, Vladimir V. Zuev, et V. M. Mitev. 1983. « Atmospheric temperature measurements using a pure rotational Raman lidar ». *Applied Optics - Optical Society of America* 22 (19): 2984-90. <https://doi.org/10.1364/AO.22.002984>.
- Baron, Alexandre, Patrick Chazette, et Julien Totems. 2020. « Remote sensing of two exceptional winter aerosol pollution events and representativeness of ground-based measurements ». *Atmospheric Chemistry and Physics*.
- Bass, M. 1995. « Optical properties of films and coatings ». In *Handbook of optics, Volume 1*, 2nd editio, 42.89-91. New-York: McGRAW-HILL.
- Bates, D. R. 1984. « Rayleigh scattering by air ». *Planetary and Space Science*. [https://doi.org/10.1016/0032-0633\(84\)90102-8](https://doi.org/10.1016/0032-0633(84)90102-8).

- 
- Bedoya-velásquez, Andrés Esteban, Gloria Titos, Juan Antonio Bravo-aranda, Olivier Favez, Jean-eudes Petit, Juan Andrés Casquero-vera, Francisco José Olmo-, et al. 2019. « Long-term aerosol optical hygroscopicity study at the ACTRIS SIRTA observatory: synergy between ceilometer and in-situ measurements », n° March: 1-25.
- Bedoya-velásquez, Andrés Esteban, Gloria Titos, Roberto Román, Juan Andrés Casquero-Vera, Pablo Ortiz-Amezcuca, Jose Antonio Benavent-Oltra, Gregori De Arruda Moreira, et al. 2018. « Hygroscopic growth study in the framework of EARLINET during the SLOPE i campaign: Synergy of remote sensing and in situ instrumentation ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 18 (10): 7001-17. <https://doi.org/10.5194/acp-18-7001-2018>.
- Behrendt, A., V. Wulfmeyer, E. Hammann, S. K. Muppa, et S. Pal. 2015. « Profiles of second- to fourth-order moments of turbulent temperature fluctuations in the convective boundary layer: First measurements with rotational Raman lidar ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 15 (10). <https://doi.org/10.5194/acp-15-5485-2015>.
- Behrendt, Andreas. 2005. « Temperature Measurements with Lidar ». In *Lidar*. [https://doi.org/10.1007/0-387-25101-4\\_10](https://doi.org/10.1007/0-387-25101-4_10).
- Behrendt, Andreas, Takuji Nakamura, Michitaka Onishi, Rudolf Baumgart, et Toshitaka Tsuda. 2002. « Combined Raman lidar for the measurement of atmospheric temperature, water vapor, particle extinction coefficient, and particle backscatter coefficient ». *Appl. Opt.* 41 (36): 7657-66.
- Behrendt, Andreas, Takuji Nakamura, et Toshitaka Tsuda. 2004. « Combined temperature lidar for measurements in the troposphere, stratosphere, and mesosphere ». *Applied Optics* 43 (14): 2930. <https://doi.org/10.1364/ao.43.002930>.
- Behrendt, Andreas, et Jens Reichardt. 2000. « Atmospheric temperature profiling in the presence of clouds with a pure rotational Raman lidar by use of an interference-filter-based polychromator ». *Applied Optics* 39 (9): 1372. <https://doi.org/10.1364/ao.39.001372>.
- Berberan-Santos, Mário N., Evgeny N. Bodunov, et Lionello Pogliani. 1997. « On the barometric formula ». *American Journal of Physics*. <https://doi.org/10.1119/1.18555>.
- Berkoff, Timothy A., Ellsworth J. Welton, James R. Campbell, Sandra Valencia, James D. Spinhirne, Si Chee Tsay, et Brent N. Holben. 2004. « Observations of aerosols using the Micro-Pulse Lidar NETwork (MPLNET) ». In *International Geoscience and Remote Sensing Symposium (IGARSS)*. <https://doi.org/10.1109/igarss.2004.1370799>.
- Bessagnet, B., A. Hodzic, O. Blanchard, M. Lattuati, O. Le Bihan, H. Marfaing, et L. Rouil. 2005. « Origin of particulate matter pollution episodes in wintertime over the Paris Basin ». *Atmospheric Environment* 39 (33): 6159-74. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.06.053>.
- Blumstein, D., B. Tournier, F. R. Cayla, T. Phulpin, R. Fjortoft, C. Buil, et G. Ponce. 2007. « In-flight performance of the infrared atmospheric sounding interferometer (IASI) on METOP-A ». In *Atmospheric and Environmental Remote Sensing Data Processing and Utilization III: Readiness for GEOSS*. <https://doi.org/10.1117/12.734162>.
- Bocquet, M., H. Elbern, H. Eskes, M. Hirtl, R. Aabkar, G. R. Carmichael, J. Flemming, et al. 2015. « Data assimilation in atmospheric chemistry models: Current status and future prospects for coupled chemistry meteorology models ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 15 (10).
-

- <https://doi.org/10.5194/acp-15-5325-2015>.
- Bormann, Niels, Massimo Bonavita, Rossana Dragani, Reima Eresmaa, Marco Matricardi, et Anthony Mcnally. 2016. « Enhancing the impact of IASI observations through an updated observation-error covariance matrix ». *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 142 (697): 1767-80. <https://doi.org/10.1002/qj.2774>.
- Boucher, O., et T. L. Anderson. 1995. « General circulation model assessment of the sensitivity of direct climate forcing by anthropogenic sulfate aerosols to aerosol size and chemistry ». *Journal of Geophysical Research*. <https://doi.org/10.1029/95jd02531>.
- Bressi, M., J. Sciare, V. Ghersi, N. Bonnaire, J. B. Nicolas, J. E. Petit, S. Moukhtar, A. Rosso, N. Mihalopoulos, et A. Féron. 2013. « A one-year comprehensive chemical characterisation of fine aerosol (PM<sub>2.5</sub>) at urban, suburban and rural background sites in the region of Paris (France) ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 13 (15): 7825-44. <https://doi.org/10.5194/acp-13-7825-2013>.
- Bressi, M., J. Sciare, V. Ghersi, N. Mihalopoulos, J. E. Petit, J. B. Nicolas, S. Moukhtar, et al. 2014. « Sources and geographical origins of fine aerosols in Paris (France) ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 14 (16): 8813-39. <https://doi.org/10.5194/acp-14-8813-2014>.
- Brousseau, Pierre, Yann Seity, Didier Ricard, et Julien Léger. 2016. « Improvement of the forecast of convective activity from the AROME-France system ». *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 142 (699): 2231-43. <https://doi.org/10.1002/qj.2822>.
- Browell, E. V., T. D. Wilkerson, et T. J. McIlrath. 1979. « Water vapor differential absorption lidar development and evaluation ». *Applied Optics*. <https://doi.org/10.1364/ao.18.003474>.
- Buchan, Jian, Joël J.M. Hirschi, Adam T. Blaker, et Bablu Sinha. 2014. « North atlantic SST anomalies and the cold north european weather events of winter 2009/10 and december 2010 ». *Monthly Weather Review*. <https://doi.org/10.1175/MWR-D-13-00104.1>.
- Buehler, Tania, Christoph C. Raible, et Thomas F. Stocker. 2011. « The relationship of winter season North Atlantic blocking frequencies to extreme cold or dry spells in the ERA-40 ». *Tellus, Series A: Dynamic Meteorology and Oceanography* 63 (2): 212-22. <https://doi.org/10.1111/j.1600-0870.2010.00492.x>.
- Burton, S. P., R. A. Ferrare, C. A. Hostetler, J. W. Hair, R. R. Rogers, M. D. Obland, C. F. Butler, A. L. Cook, D. B. Harper, et K. D. Froyd. 2012. « Aerosol classification using airborne High Spectral Resolution Lidar measurements – methodology and examples ». *Atmospheric Measurement Techniques* 5 (1): 73-98. <https://doi.org/10.5194/amt-5-73-2012>.
- Buseck, Peter R., et Kouji Adachi. 2008. « Nanoparticles in the atmosphere ». *Elements* 4 (6): 389-94. <https://doi.org/10.2113/gselements.4.6.389>.
- Cabannes, J. 1944. « Spectroscopy applied to molecular physics ». *Reports on Progress in Physics*. <https://doi.org/10.1088/0034-4885/10/1/314>.
- Capes, Gerard, Ben Johnson, G. McFiggans, P. I. Williams, J. Haywood, et Hugh Coe. 2008. « Aging of biomass burning aerosols over West Africa: Aircraft measurements of chemical composition, microphysical properties, and emission ratios ». *Journal of Geophysical Research Atmospheres*. <https://doi.org/10.1029/2008JD009845>.
- Carnuth, Walter, et Reinhold Reiter. 1986. « Cloud extinction profile measurements by lidar using Klett's

- inversion method ». *Applied Optics*. <https://doi.org/10.1364/ao.25.002899>.
- Carswell, A. I., S. R. Pal, W. Steinbrecht, J. A. Whiteway, A. Ultisky, et T. Y. Wang. 1991. « Lidar measurements of the middle atmosphere ». *Canadian journal of physics*. <https://doi.org/10.1139/p91-166>.
- Cattiaux, J., R. Vautard, C. Cassou, P. Yiou, V. Masson-Delmotte, et F. Codron. 2010. « Winter 2010 in Europe: A cold extreme in a warming climate ». *Geophysical Research Letters* 37 (20). <https://doi.org/10.1029/2010GL044613>.
- Catrrall, Christopher, John Reagan, Kurt Thome, et Oleg Dubovik. 2005. « Variability of aerosol and spectral lidar and backscatter and extinction ratios of key aerosol types derived from selected Aerosol Robotic Network locations ». *Journal of Geophysical Research D: Atmospheres* 110 (10): 1-13. <https://doi.org/10.1029/2004JD005124>.
- Chazette, P., A. Dabas, J. Sanak, M. Lardier, et P. Royer. 2012. « French airborne lidar measurements for Eyjafjallajökull ash plume survey ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 12 (15): 7059-72. <https://doi.org/10.5194/acp-12-7059-2012>.
- Chazette, P., C. David, J. Lefrere, S. Godin, J. Pelon, et G. Megie. 1995. « Comparative lidar study of the optical, geometrical, and dynamical properties of stratospheric post-volcanic aerosols, following the eruptions of El Chichon and Mount Pinatubo ». *Journal of Geophysical Research* 100 (D11).
- Chazette, P., C. Flamant, J.-C. Raut, J. Totems, et X. Shang. 2016. « Tropical moisture enriched storm tracks over the Mediterranean and their link with intense rainfall in the Cevennes-Vivarais area during HyMeX ». *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 142. <https://doi.org/10.1002/qj.2674>.
- Chazette, P., F. Marnas, et J. Totems. 2014. « The mobile Water vapor Aerosol Raman Lidar and its implication in the framework of the HyMeX and ChArMEx programs: Application to a dust transport process ». *Atmospheric Measurement Techniques* 7 (6): 1629-47. <https://doi.org/10.5194/amt-7-1629-2014>.
- Chazette, P., F. Marnas, J. Totems, et X. Shang. 2014. « Comparison of IASI water vapor retrieval with H<sub>2</sub>O-Raman lidar in the framework of the Mediterranean HyMeX and ChArMEx programs ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 14 (18): 9583-96. <https://doi.org/10.5194/acp-14-9583-2014>.
- Chazette, Patrick. 1990. « Etude complementaire des systemes de teledetection laser et des sondeurs passifs pour la determination des parametres meteorologiques a partir de plates formes spatiales ». Université Paris 7.
- . 2003. « The monsoon aerosol extinction properties at Goa during INDOEX as measured with lidar ». *Journal of Geophysical Research* 108 (D6): 4187. <https://doi.org/10.1029/2002JD002074>.
- . 2004. *Aérosols anthropique : impact environnemental*. Techniques de l'ingénieur.
- . 2016. « Exceptional aerosol pollution plume observed using a new ULA-lidar approach ». *Atmospheric Environment* 141: 470-80. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.07.015>.
- . 2020. « Aerosol optical properties as observed from an ultralight aircraft over the Strait of Gibraltar ». *Atmospheric Measurement Techniques Discussions*. <https://doi.org/10.5194/amt-2020-131>.
- Chazette, Patrick, Pierre Couvert, Hariliva Randriamiarisoa, Joseph Sanak, Bernard Bonsang, Patricio

- 
- Moral, Sébastien Berthier, Sophie Salanave, et Franck Toussaint. 2005. « Three-dimensional survey of pollution during winter in French Alps valleys ». *Atmospheric Environment*. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2004.10.014>.
- Chazette, Patrick, Cyrille Flamant, Xiaoxia Shang, Julien Totems, Jean Christophe Raut, Alexis Doerenbecher, Véronique Ducrocq, Nadia Fourrié, Olivier Bock, et Sophie Cloché. 2016. « A multi-instrument and multi-model assessment of atmospheric moisture variability over the western Mediterranean during HyMeX ». *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 142: 7-22. <https://doi.org/10.1002/qj.2671>.
- Chazette, Patrick, Cyrille Flamant, Julien Totems, Marco Gaetani, Gwendoline Smith, Alexandre Baron, Xavier Landsheere, Karine Desboeufs, Jean-François Doussin, et Paola Formenti. 2019. « Evidence of the complexity of aerosol transport in the lower troposphere on the Namibian coast during AEROCLO-sA ». *Atmospheric Chemistry and Physics*, n° i: 1-34. <https://doi.org/10.5194/acp-2019-507>.
- Chazette, Patrick, et Catherine Liousse. 2001. « A case study of optical and chemical ground apportionment for urban aerosols in Thessaloniki ». *Atmospheric Environment*. [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(00\)00425-8](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(00)00425-8).
- Chazette, Patrick, Gérard Mégie, et Jacques Pelon. 1998. « Potential use of spaceborne lidar measurements to improve atmospheric temperature retrievals from passive sensors ». *Applied Optics*. <https://doi.org/10.1364/ao.37.007670>.
- Chazette, Patrick, Jacques Pelon, et Gérard Mégie. 2001. « Determination by spaceborne backscatter lidar of the structural parameters of atmospheric scattering layers ». *Applied Optics* 40 (21): 3428. <https://doi.org/10.1364/ao.40.003428>.
- Chazette, Patrick, Jean Christophe Raut, et Julien Totems. 2018. « Springtime aerosol load as observed from ground-based and airborne lidars over northern Norway ». *Atmospheric Chemistry and Physics*. <https://doi.org/10.5194/acp-18-13075-2018>.
- Chazette, Patrick, et Philippe Royer. 2017. « Springtime major pollution events by aerosol over Paris Area: From a case study to a multiannual analysis ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, n° May 2008: 1-19. <https://doi.org/10.1002/2017JD026713>.
- Chazette, Patrick, Joseph Sanak, et François Dulac. 2007. « New approach for aerosol profiling with a lidar onboard an ultralight aircraft: Application to the African monsoon multidisciplinary analysis ». *Environmental Science and Technology*. <https://doi.org/10.1021/es070343y>.
- Chazette, Patrick, et Julien Totems. 2017. « Mini N2-Raman Lidar onboard ultra-light aircraft for aerosol measurements: Demonstration and extrapolation ». *Remote Sensing* 9 (12). <https://doi.org/10.3390/rs9121226>.
- Chazette, Patrick, Julien Totems, Gérard Ancellet, Jacques Pelon, et Michaël Sicard. 2016. « Temporal consistency of lidar observations during aerosol transport events in the framework of the ChArMEx/ADRI-MED campaign at Minorca in June 2013 ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 16 (5): 2863-75. <https://doi.org/10.5194/acp-16-2863-2016>.
- Chazette, Patrick, Julien Totems, Laurent Hespel, et Jean-Stéphane Bailly. 2016. « Principe et physique de la mesure lidar ». In *Observation des Surfaces Continentales par Télédétection optique: Techniques*
-

- et méthodes*, édité par Nicolas Baghdadi et Mehrez Zribi, ISTE Editi, 1:209-45.
- Chazette, Patrick, Julien Totems, et Xiaoxia Shang. 2017. « Atmospheric aerosol variability above the Paris Area during the 2015 heat wave - Comparison with the 2003 and 2006 heat waves ». *Atmospheric Environment* 170: 216-33. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2017.09.055>.
- . 2019. « Transport of aerosols over the French Riviera-link between ground-based lidar and spaceborne observations ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 19 (6): 3885-3904. <https://doi.org/10.5194/acp-19-3885-2019>.
- Chedin, A., N. A. Scott, C. Wahiche, P. Moulinier, N. Husson, et P. Sitbon. 1986. « The “3I” procedure applied to the retrieval of meteorological and climate parameters from NOAA-7. » *Ocean - Air Interactions*.
- Chen, Yuan, et Shao dong Xie. 2014. « Characteristics and formation mechanism of a heavy air pollution episode caused by biomass burning in Chengdu, Southwest China ». *Science of the Total Environment*. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2013.12.069>.
- Chylek, Petr, M. K. Dubey, U. Lohmann, V. Ramanathan, Y. J. Kaufman, G. Lesins, J. Hudson, G. Altmann, et S. Olsen. 2006. « Aerosol indirect effect over the Indian Ocean ». *Geophysical Research Letters* 33 (6): 2-5. <https://doi.org/10.1029/2005GL025397>.
- Collard, A. D., et A. P. McNally. 2009. « The assimilation of infrared atmospheric sounding interferometer radiances at ECMWF ». *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*. <https://doi.org/10.1002/qj.410>.
- Cooney, J. A. 1968. « Measurements on the raman component of laser atmospheric backscatter ». *Applied Physics Letters* 12 (2): 40-42. <https://doi.org/10.1063/1.1651884>.
- . 1970. « Comparisons of Water Vapor Profiles Obtained by Radiosonde and Laser Backscatter.pdf ».
- Cooney, John. 1971. « Measurement of Atmospheric Temperature Profiles by Raman Backscatter ». *Journal of Applied Meteorology*. [https://doi.org/10.1175/1520-0450\(1972\)011<0108:moatpb>2.0.co;2](https://doi.org/10.1175/1520-0450(1972)011<0108:moatpb>2.0.co;2).
- . 1972. « Measurement of Atmospheric Temperature Profiles by Raman Backscatter ». *Journal of Applied Meteorology*. [https://doi.org/10.1175/1520-0450\(1972\)011<0108:moatpb>2.0.co;2](https://doi.org/10.1175/1520-0450(1972)011<0108:moatpb>2.0.co;2).
- Courtier, Philippe, Catherine Freydir, Jean-Francois Geleyn, Florence Rabier, et Michel Rochas. 1991. « The Arpege project at Météo-France ». *Seminar on Numerical Methods in Atmospheric Models, 9-13 September 1991*.
- Crevoisier, C., C. Clerbaux, V. Guidard, T. Phulpin, R. Armante, B. Barret, C. Camy-Peyret, et al. 2014. « Towards IASI-New Generation (IASI-NG): Impact of improved spectral resolution and radiometric noise on the retrieval of thermodynamic, chemistry and climate variables ». *Atmospheric Measurement Techniques* 7 (12): 4367-85. <https://doi.org/10.5194/amt-7-4367-2014>.
- Crippa, M., F. Canonaco, J. G. Slowik, I. El Haddad, P. F. Decarlo, C. Mohr, M. F. Heringa, et al. 2013. « Primary and secondary organic aerosol origin by combined gas-particle phase source apportionment ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 13 (16): 8411-26. <https://doi.org/10.5194/acp-13-8411-2013>.
- Cubison, M. J., A. M. Ortega, P. L. Hayes, D. K. Farmer, D. Day, M. J. Lechner, W. H. Brune, et al. 2011. « Effects of aging on organic aerosol from open biomass burning smoke in aircraft and laboratory



- studies ». *Atmospheric Chemistry and Physics*. <https://doi.org/10.5194/acp-11-12049-2011>.
- Dawson, K. W., N. Meskhidze, D. Josset, et S. Gassó. 2015. « Spaceborne observations of the lidar ratio of marine aerosols ». *Atmospheric Chemistry and Physics*. <https://doi.org/10.5194/acp-15-3241-2015>.
- de Marsily, Ghislain. 2017. « 6. Le cycle de l'eau ». In *Le développement durable à découvert*. <https://doi.org/10.4000/books.editions-cnrs.10608>.
- Dieudonné, E., P. Chazette, F. Marnas, J. Totems, et X. Shang. 2015. « Lidar profiling of aerosol optical properties from Paris to Lake Baikal (Siberia) ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 15 (9): 5007-26. <https://doi.org/10.5194/acp-15-5007-2015>.
- Dinoev, T., V. B. Simeonov, Y. Arshinov, S. Bobrovnikov, P. Ristori, B. Calpini, M. Parlange, et H. Van Den Bergh. 2013. « Raman Lidar for Meteorological Observations, RALMO - Part 1: Instrument description ». *Atmospheric Measurement Techniques* 6 (5): 1329-46. <https://doi.org/10.5194/amt-6-1329-2013>.
- Divakarla, Murty G., Chris D. Barnet, Mitchell D. Goldberg, Larry M. McMillin, Eric Maddy, Walter Wolf, Lihang Zhou, et Xingpin Liu. 2006. « Validation of Atmospheric Infrared Sounder temperature and water vapor retrievals with matched radiosonde measurements and forecasts ». *Journal of Geophysical Research Atmospheres*. <https://doi.org/10.1029/2005JD006116>.
- Drobinski, P., V. Ducrocq, P. Alpert, E. Anagnostou, K. Béranger, M. Borga, I. Braud, et al. 2014. « HYMEX: A 10-year multidisciplinary program on the mediterranean water cycle ». *Bulletin of the American Meteorological Society*. <https://doi.org/10.1175/BAMS-D-12-00242.1>.
- Dubovik, Oleg, et Michael D. King. 2000. « A flexible inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from Sun and sky radiance measurements ». *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 105 (D16): 20673-96. <https://doi.org/10.1029/2000JD900282>.
- Duflot, Valentin, Jean Luc Baray, Guillaume Payen, Nicolas Marquestaut, Françoise Posny, Jean Marc Metzger, Bavo Langerock, et al. 2017. « Tropospheric ozone profiles by DIAL at Maïdo Observatory (Reunion Island): System description, instrumental performance and result comparison with ozone external data set ». *Atmospheric Measurement Techniques* 10 (9): 3359-73. <https://doi.org/10.5194/amt-10-3359-2017>.
- ECMWF. 2017. « ERA5 data documentation ». European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF). 2017. <https://software.ecmwf.int/wiki/display/CKB/ERA5+data+documentation>.
- Egeback, Anna-Lena, Kent A. Fredriksson, et Hans M. Hertz. 1984. « DIAL techniques for the control of sulfur dioxide emissions ». *Applied Optics*. <https://doi.org/10.1364/ao.23.000722>.
- Fernald, Frederick G., Benjamin M. Herman, et John A. Reagan. 1972. « Determination of Aerosol Height Distributions by Lidar ». *Journal of Applied Meteorology*. [https://doi.org/10.1175/1520-0450\(1972\)011<0482:doahdb>2.0.co;2](https://doi.org/10.1175/1520-0450(1972)011<0482:doahdb>2.0.co;2).
- Fernández, Alfonso J., Michäel Sicard, Maria J. Costa, Juan L. Guerrero-Rascado, José L. Gómez-Amo, Francisco Molero, Rubén Barragán, et al. 2019. « Extreme, wintertime Saharan dust intrusion in the Iberian Peninsula: Lidar monitoring and evaluation of dust forecast models during the February 2017 event ». *Atmospheric Research*. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2019.06.007>.
- Fiocco, G., G. Benedetti-Michelangeli, K. Maischberger, et E. Madonna. 1971. « Measurement of Temperature and Aerosol to Molecule Ratio in the Troposphere by Optical Radar ». *Nature Physical*

- 
- Science*. <https://doi.org/10.1038/physci229078a0>.
- Fiocco, G., et G. Grams. 1964. « Observations of the Aerosol Layer at 20 km by Optical Radar ». *Journal of the Atmospheric Sciences*. [https://doi.org/10.1175/1520-0469\(1964\)021<0323:ootala>2.0.co;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(1964)021<0323:ootala>2.0.co;2).
- Fiocco, G., et L. D. Smullin. 1963. « Detection of scattering layers in the upper atmosphere (60-140 km) by optical radar [3] ». *Nature*. <https://doi.org/10.1038/1991275a0>.
- Flamant, C., J. P. Chaboureaud, P. Chazette, P. Di Girolamo, T. Bourriane, J. Totems, et M. Cacciani. 2015. « The radiative impact of desert dust on orographic rain in the Cévennes-Vivarais area: A case study from HyMeX ». *Atmospheric Chemistry and Physics*. <https://doi.org/10.5194/acp-15-12231-2015>.
- Flamant, Cyrille, Vincent Trouillet, Patrick Chazette, et Jacques Pelon. 1998. « Wind speed dependence of atmospheric boundary layer optical properties and ocean surface reflectance as observed by airborne backscatter lidar ». *Journal of Geophysical Research: Oceans*. <https://doi.org/10.1029/98JC02284>.
- Flamant, Pierre, Juan Cuesta, Marie Laure Denneulin, Alain Dabas, et Dorit Huber. 2008. « ADM-Aeolus retrieval algorithms for aerosol and cloud products ». *Tellus, Series A: Dynamic Meteorology and Oceanography* 60 A (2): 273-88. <https://doi.org/10.1111/j.1600-0870.2007.00287.x>.
- Fourrié, Nadia, Mathieu Nuret, Pierre Brousseau, Olivier Caumont, Alexis Doerenbecher, Eric Wattrelot, Patrick Moll, et al. 2019. « The AROME-WMED reanalyses of the first special observation period of the Hydrological cycle in the Mediterranean experiment (HyMeX) ». *Geoscientific Model Development*. <https://doi.org/10.5194/gmd-12-2657-2019>.
- Freney, E. J., K. Sellegri, F. Canonaco, A. Colomb, A. Borbon, V. Michoud, S. Crumeyrolle, et al. 2014. « Characterizing the impact of urban emissions on regional aerosol particles: Airborne measurements during the MEGAPOLI experiment ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 14 (3): 1397-1412. <https://doi.org/10.5194/acp-14-1397-2014>.
- Gerasimov, Vladislav V., et Vladimir V. Zuev. 2016. « Analytical calibration functions for the pure rotational Raman lidar technique ». *Optics Express* 24 (5): 5136. <https://doi.org/10.1364/oe.24.005136>.
- Ginoux, Paul, Joseph M. Prospero, Thomas E. Gill, N. Christina Hsu, et Ming Zhao. 2012. « Global-scale attribution of anthropogenic and natural dust sources and their emission rates based on MODIS Deep Blue aerosol products ». *Reviews of Geophysics*. <https://doi.org/10.1029/2012RG000388>.
- Girolamo, P. Di, R. Marchese, D. N. Whiteman, et B. B. Demoz. 2004. « Rotational Raman Lidar measurements of atmospheric temperature in the UV ». *Geophysical Research Letters* 31 (1): 1-5. <https://doi.org/10.1029/2003GL018342>.
- Girolamo, Paolo Di, Marco Cacciani, Donato Summa, Andrea Scoccione, Benedetto De Rosa, Andreas Behrendt, et Volker Wulfmeyer. 2017. « Characterisation of boundary layer turbulent processes by the Raman lidar BASIL in the frame of HD(CP)2 Observational Prototype Experiment ». *Atmospheric Chemistry and Physics*. <https://doi.org/10.5194/acp-17-745-2017>.
- Goyer, G. G., et R. Watson. 1963. « The Laser and its Application to Meteorology ». *Bulletin of the American Meteorological Society* 44 (9): 564-70. <https://doi.org/10.1175/1520-0477-44.9.564>.
- Groß, Silke, Matthias Tesche, Volker Freudenthaler, Carlos Toledano, Matthias Wiegner, Albert Ansmann, Dietrich Althausen, et Meinhard Seefeldner. 2011. « Characterization of Saharan dust, marine aerosols
-

- and mixtures of biomass-burning aerosols and dust by means of multi-wavelength depolarization and Raman lidar measurements during SAMUM 2 ». *Tellus, Series B: Chemical and Physical Meteorology*. <https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2011.00556.x>.
- Guidard, V., N. Fourri , P. Brousseau, et F. Rabier. 2011. « Impact of IASI assimilation at global and convective scales and challenges for the assimilation of cloudy scenes ». *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 137 (661): 1975-87. <https://doi.org/10.1002/qj.928>.
- Hammann, E., A. Behrendt, F. Le Mounier, et V. Wulfmeyer. 2015. « Temperature profiling of the atmospheric boundary layer with rotational Raman lidar during the HD(CP)2 Observational Prototype Experiment ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 15 (5): 2867-81. <https://doi.org/10.5194/acp-15-2867-2015>.
- Hammann, Eva, et Andreas Behrendt. 2015. « Parametrization of optimum filter passbands for rotational Raman temperature measurements ». *Optics Express* 23 (24): 30767. <https://doi.org/10.1364/oe.23.030767>.
- Hamonou, E., P. Chazette, A. Papayannis, D. Balis, F. Marengo, V. Santacesaria, et G. Ancellet. 1997. « Ground-based measurements of Saharan dust optical properties in the frame of the European MEDUSE project ». *Journal of Aerosol Science*. [https://doi.org/10.1016/S0021-8502\(97\)85346-3](https://doi.org/10.1016/S0021-8502(97)85346-3).
- H nel, Gottfried. 1976. « The properties of atmospheric aerosol particles as functions of the relative humidity at thermodynamic equilibrium with the surrounding moist air ». *Advances in Geophysics*. [https://doi.org/10.1016/S0065-2687\(08\)60142-9](https://doi.org/10.1016/S0065-2687(08)60142-9).
- Hanna, Edward, Jennifer A. Francis, Timo Vihma, James Overland, Richard Hall, et Seong-Joong Kim. 2015. « The Melting Arctic and Midlatitude Weather Patterns: Are They Connected?\* ». *Journal of Climate* 28 (20): 7917-32. <https://doi.org/10.1175/jcli-d-14-00822.1>.
- Hansen, F., R. J. Greatbatch, G. Gollan, T. Jung, et A. Weisheimer. 2017. « Remote control on NAO predictability via the stratosphere ». *Q. J. R. Meteorol. Soc.* 143 (January): 706-719. <https://doi.org/10.1002/qj.2958>.
- Hansen, J., M. Sato, et R. Ruedy. 1997. « Radiative forcing and climate response ». *Journal of Geophysical Research Atmospheres*. <https://doi.org/10.1029/96JD03436>.
- Hara, Yukari, Tomoaki Nishizawa, Nobuo Sugimoto, Ichiro Matsui, Xiaole Pan, Hiroshi Kobayashi, Kazuo Osada, et Itsushi Uno. 2017. « Optical properties of mixed aerosol layers over Japan derived with multi-wavelength Mie-Raman lidar system ». *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2016.06.038>.
- Hauchecorne, A., M. L. Chanin, et P. Keckhut. 1991. « Climatology and trends of the middle atmospheric temperature (33-87 km) as seen by Rayleigh lidar over the south of France ». *Journal of Geophysical Research*. <https://doi.org/10.1029/91jd01213>.
- Hauchecorne, Alain, et Marie-Lise Chanin. 1980. « Density and temperature profiles obtained by lidar between 35 and 70 km ». *Geophysical Research Letters* 7 (8): 565-68.
- Haywood, James, et Olivier Boucher. 2000. « Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: A review ». *Reviews of Geophysics*. <https://doi.org/10.1029/1999RG000078>.
- Hinkley, E. D. 1976. *laser monitoring of the atmosphere*. Springer Berlin Heidelberg. <https://www.springer.com/gp/book/9783662312551>.

- 
- Hodzic, A., R. Vautard, P. Chazette, L. Menut, et B. Bessagnet. 2006. « Aerosol chemical and optical properties over the Paris area within ESQUIF project ». *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions* 6 (1): 401-54. <https://doi.org/10.5194/acpd-6-401-2006>.
- Hogg, James C., et Stephen Van Eeden. 2009. « Pulmonary and systemic response to atmospheric pollution ». *Respirology* 14 (3): 336-46. <https://doi.org/10.1111/j.1440-1843.2009.01497.x>.
- Huffaker, R. M. 1974. « CO<sub>2</sub> laser Doppler system for the measurements of atmospheric winds and turbulence ». *Atmospheric Technology* 6: 71-76.
- Hurrell, J W, Y Kushnir, et G Ottersen. 2003. « An overview of the North Atlantic oscillation, The North Atlantic Oscillation ». *Climatic Significance and Environmental Impact*, 1-35. <https://doi.org/10.1029/GM134>.
- Illingworth, A. J., H. W. Barker, A. Beljaars, M. Ceccaldi, H. Chepfer, N. Clerbaux, J. Cole, et al. 2015. « The earthcare satellite: The next step forward in global measurements of clouds, aerosols, precipitation, and radiation ». *Bulletin of the American Meteorological Society* 96 (8): 1311-32. <https://doi.org/10.1175/BAMS-D-12-00227.1>.
- IPCC. 2001a. « Climate Change 2001: Synthesis Report ». *Assessment*, n° September: 24-29.
- . 2001b. « Third Assessment Report, Climate Change 2001: The Scientific Basis ». *Climate Change 2001: The Scientific Basis*. <https://doi.org/10.1256/004316502320517344>.
- . 2007. « Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Summary for Policymakers. » In *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. <https://doi.org/10.1038/446727a>.
- . 2013a. « Climate Change 2013: The Physical Science Basis, Contribution of Working Group I ». *Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*.
- . 2013b. « Working Group I Contribution to the IPCC Fifth Assessment Report, Climate Change 2013: The Physical Science Basis ». *Working Group I Contribution to the IPCC Fifth Assessment Report, Climate Change 2013: The Physical Science Basis*. <https://doi.org/10.1017/CBO9781107415324.004>.
- Jaffrezo, J. L., G. Aymoz, et J. Cozic. 2005. « Size distribution of EC and OC in the aerosol of Alpine valleys during summer and winter ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 5 (11): 2915-25. <https://doi.org/10.5194/acp-5-2915-2005>.
- Kiehl, J. T., et B. P. Briegleb. 1993. « The relative roles of sulfate aerosols and greenhouse gases in climate forcing ». *Science*. <https://doi.org/10.1126/science.260.5106.311>.
- Kim, S. W., P. Chazette, F. Dulac, J. Sanak, B. Johnson, et S. C. Yoon. 2009. « Vertical structure of aerosols and water vapor over West Africa during the African monsoon dry season ». *Atmospheric Chemistry and Physics*. <https://doi.org/10.5194/acp-9-8017-2009>.
- Kim, Y., K. Sartelet, J.-C. Raut, et P. Chazette. 2015. « Influence of an urban canopy model and PBL schemes on vertical mixing for air quality modeling over Greater Paris ». *Atmospheric Environment* 107. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.02.011>.
- Kim, Youngseob, Karine Sartelet, Jean Christophe Raut, et Patrick Chazette. 2013. « Evaluation of the
-

- Weather Research and Forecast/Urban Model Over Greater Paris ». *Boundary-Layer Meteorology*. <https://doi.org/10.1007/s10546-013-9838-6>.
- . 2015. « Influence of an urban canopy model and PBL schemes on vertical mixing for air quality modeling over Greater Paris ». *Atmospheric Environment* 107: 289-306. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.02.011>.
- King, Louis V. 1923. « The complex anisotropic molecule in relation to the theory of dispersion and scattering of light in gases and liquids [2] ». *Nature*. <https://doi.org/10.1038/111667a0>.
- Kirk-Davidoff, Daniel B., Eric J. Hintscha, James G. Anderson, et David W. Keith. 1999. « The effect of climate change on ozone depletion through changes in stratospheric water vapour ». *Nature*. <https://doi.org/10.1038/46521>.
- Klett, J D. 1981. « Stable analytical inversion solution for processing lidar returns ». *Appl Opt* 20 (2): 211-20. <https://doi.org/10.1364/AO.20.000211>.
- Klett, James D. 1985. « 1985 - J.D.Klett - Applied Optics - Lidar inversion with variable backscatterextinction ratios.pdf ».
- Köhler, Hilding. 1936. « The nucleus in and the growth of hygroscopic droplets ». *Transactions of the Faraday Society*. <https://doi.org/10.1039/TF9363201152>.
- Kwon, Eun Han, B. J. Sohn, William L. Smith, et Jun Li. 2012. « Validating IASI temperature and moisture sounding retrievals over East Asia using radiosonde observations ». *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*. <https://doi.org/10.1175/JTECH-D-11-00078.1>.
- Laaidi, K., A. Economopoulou, V. Wagner, M. Pascal, P. Empereur-Bissonnet, A. Verrier, et P. Beaudreau. 2013. « Cold spells and health: Prevention and warning ». *Public Health*. <https://doi.org/10.1016/j.puhe.2013.02.011>.
- Lange, D., A. Behrendt, et V. Wulfmeyer. 2019. « Compact Operational Tropospheric Water Vapor and Temperature Raman Lidar with Turbulence Resolution ». *Geophysical Research Letters* 46 (24): 14844-53. <https://doi.org/10.1029/2019GL085774>.
- Lanzante, J R, S A Klein, et D J Seidel. 2003. « Temporal homogenization of monthly radiosonde temperature data. Part II: Trends, sensitivities, and MSU comparison ». *Journal of Climate*.
- Largerion, Yann, et Chantal Staquet. 2016. « Persistent inversion dynamics and wintertime PM10 air pollution in Alpine valleys ». *Atmospheric Environment*. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.03.045>.
- Lee, Keun Ok, Franziska Aemisegger, Stephan Pfahl, Cyrille Flamant, Jean Lionel Lacour, et Jean Pierre Chaboureaud. 2019. « Contrasting stable water isotope signals from convective and large-scale precipitation phases of a heavy precipitation event in southern Italy during HyMeX IOP 13: A modelling perspective ». *Atmospheric Chemistry and Physics*. <https://doi.org/10.5194/acp-19-7487-2019>.
- Lee, S. W., J. McNeil, T. Zenker, et T. H. Chyba. 1999. « Methane concentration measurements with a mid-infrared optical parametric oscillator-based differential absorption lidar system ». In *CLEO/Pacific Rim 1999 - Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics*. <https://doi.org/10.1109/CLEOPR.1999.811409>.
- Lehmann, Jascha, et Dim Coumou. 2015. « The influence of mid-latitude storm tracks on hot, cold, dry

- and wet extremes ». *Scientific Reports* 5: 1-9. <https://doi.org/10.1038/srep17491>.
- Lelieveld, J., P. J. Crutzen, V. Ramanathan, M. O. Andreae, C. A.M. Brenninkmeijer, T. Campos, G. R. Cass, et al. 2001. « The Indian Ocean Experiment: Widespread air pollution from South and Southeast Asia ». *Science*. <https://doi.org/10.1126/science.1057103>.
- Léon, J. F., P. Chazette, J. Pelon, F. Dulac, et H. Randriamiarisoa. 2002. « Aerosol direct radiative impact over the INDOEX area based on passive and active remote sensing ». *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 107 (19). <https://doi.org/10.1029/2000JD000116>.
- Leonard, Donald A. 1967. « Observation of Raman Scattering from the Atmosphere using a Pulsed Nitrogen Ultraviolet Laser ». *Nature*. <https://doi.org/10.1038/216142a0>.
- Lesouëf, D., F. Gheusi, P. Chazette, R. Delmas, et J. Sanak. 2013. « Low Tropospheric Layers Over Reunion Island in Lidar-Derived Observations and a High-Resolution Model ». *Boundary-Layer Meteorology* 149 (3): 425-53. <https://doi.org/10.1007/s10546-013-9851-9>.
- Li, J., Y. Hu, J. Huang, K. Stamnes, Y. Yi, et S. Stamnes. 2011. « A new method for retrieval of the extinction coefficient of water clouds by using the tail of the CALIOP signal ». *Atmospheric Chemistry and Physics*. <https://doi.org/10.5194/acp-11-2903-2011>.
- Liousse, C., C. Devaux, F. Dulac, et H. Cachier. 1995. « Aging of savanna biomass burning aerosols: Consequences on their optical properties ». *Journal of Atmospheric Chemistry*. <https://doi.org/10.1007/BF00708178>.
- Long, Derek A. 2002. *The Raman effect: a unified treatment of the theory of Raman scattering by molecules. 2002. West Sussex, England: John Wiley & Sons Ltd*. <https://doi.org/10.1002/0470845767>.
- Lowe, Rachel, Joan Ballester, James Creswick, Jean Marie Robine, François R. Herrmann, et Xavier Rodó. 2015. « Evaluating the performance of a climate-driven mortality model during heat waves and cold spells in Europe ». *International Journal of Environmental Research and Public Health*. <https://doi.org/10.3390/ijerph120201279>.
- Macchiato, M., C. Serio, V. Lapenna, et L. La Rotonda. 1993. « Parametric time series analysis of cold and hot spells in daily temperature: an application in southern Italy ». *Journal of Applied Meteorology*. [https://doi.org/10.1175/1520-0450\(1993\)032<1270:PTSAOC>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0450(1993)032<1270:PTSAOC>2.0.CO;2).
- Maddy, Eric S., et Christopher D. Barnet. 2008. « Vertical resolution estimates in version 5 of AIRS operational retrievals ». *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*. <https://doi.org/10.1109/TGRS.2008.917498>.
- Magnus, Gustav. 1844. « Versuche über die Spannkkräfte des Wasserdampfs ». *Annalen der Physik*. <https://doi.org/10.1002/andp.18441370202>.
- Mahagammulla Gamage, Shayamila, Robert J. Sica, Giovanni Martucci, et Alexander Haefele. 2019. « Retrieval of Temperature From a Multiple Channel Pure Rotational Raman-Scatter Lidar Using an Optimal Estimation Method ». *Atmospheric Measurement Techniques Discussions*, n° May: 1-34. <https://doi.org/10.5194/amt-2019-107>.
- Maiman, T. H. 1960. « Stimulated optical radiation in Ruby ». *Nature*. <https://doi.org/10.1038/187493a0>.
- Mamouri, R. E., A. Ansmann, A. Nisantzi, P. Kokkalis, A. Schwarz, et D. Hadjimitsis. 2013. « Low Arabian dust extinction-to-backscatter ratio ». *Geophysical Research Letters*. <https://doi.org/10.1002/grl.50898>.

- 
- Mariscal, Jean François, Didier Bruneau, Jacques Pelon, Mathilde Van Haecke, Frédéric Blouzon, Franck Montmessin, et Hélène Chepfer. 2018. « High spectral resolution lidar based on quad Mach Zehnder interferometer for aerosols and wind measurements on board space missions ». In *EPJ Web of Conferences*. <https://doi.org/10.1051/epjconf/201817602017>.
- Marshall, Andrew G., et Adam A. Scaife. 2010. « Improved predictability of stratospheric sudden warming events in an atmospheric general circulation model with enhanced stratospheric resolution ». *Journal of Geophysical Research Atmospheres*. <https://doi.org/10.1029/2009JD012643>.
- Masato, G., B. J. Hoskins, et T. J. Woollings. 2012. « Wave-breaking characteristics of midlatitude blocking ». *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 138 (666): 1285-96. <https://doi.org/10.1002/qj.990>.
- Mattis, Ina, Albert Ansmann, Dietrich Althausen, Volker Jaenisch, Ulla Wandinger, Detlef Müller, Yuri F. Arshinov, Sergej M. Bobrovnikov, et Ilya B. Serikov. 2002. « Relative-humidity profiling in the troposphere with a Raman lidar ». *Applied Optics*. <https://doi.org/10.1364/ao.41.006451>.
- Mattis, Ina, Albert Ansmann, Detlef Müller, Ulla Wandinger, et Dietrich Althausen. 2004. « Multilayer aerosol observations with dual-wavelength Raman lidar in the framework of EARLINET ». *Journal of Geophysical Research D: Atmospheres*. <https://doi.org/10.1029/2004JD004600>.
- McMurry, Peter H. 2000. « A review of atmospheric aerosol measurements ». *Atmospheric Environment*. [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(99\)00455-0](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(99)00455-0).
- Meadows, DH., DL Meadows, et E. I Goldsmith. 1972. « The Limits to Growth, Club of Rome ». *New York, Universe*.
- Measures, R. M. 1984. « Laser remote sensing fundamentals and applications. »
- Mégie, G. 1980. « Mesure de la pression et de la température atmosphériques par absorption différentielle lidar: influence de la largeur d'émission laser ». *Applied Optics*. <https://doi.org/10.1364/ao.19.000034>.
- Mégie, G., J. Y. Allain, M. L. Chanin, et J. E. Blamont. 1977. « Vertical profile of stratospheric ozone by lidar sounding from the ground ». *Nature*. <https://doi.org/10.1038/270329a0>.
- Melfi, S. H., J. D. Lawrence, et M. P. McCormick. 1969. « Observation of raman scattering by water vapor in the atmosphere ». *Applied Physics Letters* 15 (9): 295-97. <https://doi.org/10.1063/1.1653005>.
- Menut, L., B. Bessagnet, D. Khvorostyanov, M. Beekmann, N. Blond, A. Colette, I. Coll, et al. 2013. « CHIMERE 2013: a model for regional atmospheric composition modelling ». *Geoscientific Model Development* 6 (4): 981-1028. <https://doi.org/10.5194/gmd-6-981-2013>.
- Menut, L., R. Vautard, C. Flamant, C. Abonne, M. Beekmann, P. Chazette, P. H. Flamant, et al. 2000. « Measurements and modelling of atmospheric pollution over the Paris area: An overview of the ESQUIF Project ». *Annales Geophysicae* 18 (11): 1467-81. <https://doi.org/10.1007/s00585-000-1467-y>.
- Menzel, Annette, Holm Seifert, et Nicole Estrella. 2011. « Effects of recent warm and cold spells on European plant phenology ». *International Journal of Biometeorology*. <https://doi.org/10.1007/s00484-011-0466-x>.
- Müller, D., K. H. Lee, J. Gasteiger, M. Tesche, B. Weinzierl, K. Kandler, T. Müller, et al. 2012. « Comparison of optical and microphysical properties of pure Saharan mineral dust observed with AERONET Sun photometer, Raman lidar, and in situ instruments during SAMUM 2006 ». *Journal*
-

- of *Geophysical Research Atmospheres*. <https://doi.org/10.1029/2011JD016825>.
- Müller, Detlef, Albert Ansmann, Ina Mattis, M. Tesche, Ulla Wandinger, Dietrich Althausen, et G. Pisani. 2007. « Aerosol-type-dependent lidar ratios observed with Raman lidar ». *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 112 (16): 1-11. <https://doi.org/10.1029/2006JD008292>.
- Müller, Detlef, Ina Mattis, Ulla Wandinger, Albert Ansmann, Dietrich Althausen, et Andreas Stohl. 2005. « Raman lidar observations of aged Siberian and Canadian forest fire smoke in the free troposphere over Germany in 2003: Microphysical particle characterization ». *Journal of Geophysical Research D: Atmospheres*. <https://doi.org/10.1029/2004JD005756>.
- Murayama, Toshiyuki, Detlef Müller, Katsuya Wada, Atsushi Shimizu, Miho Sekiguchi, et Tatsuro Tsukamoto. 2004. « Characterization of Asian dust and Siberian smoke with multi-wavelength Raman lidar over Tokyo, Japan in spring 2003 ». *Geophysical Research Letters*. <https://doi.org/10.1029/2004GL021105>.
- Navas-Guzmán, Francisco, Giovanni Martucci, Martine Collaud Coen, María José Granados-Muñoz, Maxime Hervo, Michael Sicard, et Alexander Haeferle. 2019. « Characterization of aerosol hygroscopicity using Raman lidar measurements at the EARLINET station of Payerne ». *Atmospheric Chemistry and Physics*. <https://doi.org/10.5194/acp-19-11651-2019>.
- Nedeljkovic, Dusan, Alain Hauchecorne, et Marie Lise Chanin. 1993. « Rotational Raman Lidar to Measure the Atmospheric Temperature from the Ground to 30 km ». *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing* 31 (1): 90-101. <https://doi.org/10.1109/36.210448>.
- Nicolae, D., A. Nemuc, D. Müller, C. Talianu, J. Vasilescu, L. Belegante, et A. Kolgotin. 2013. « Characterization of fresh and aged biomass burning events using multiwavelength Raman lidar and mass spectrometry ». *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 118 (7). <https://doi.org/10.1002/jgrd.50324>.
- Nicolet, Marcel. 1984. « On the molecular scattering in the terrestrial atmosphere: An empirical formula for its calculation in the homosphere ». *Planetary and Space Science*. [https://doi.org/10.1016/0032-0633\(84\)90089-8](https://doi.org/10.1016/0032-0633(84)90089-8).
- O'Reilly, Christopher H., Shoshiro Minobe, et Akira Kuwano-Yoshida. 2015. « The influence of the Gulf Stream on wintertime European blocking ». *Climate Dynamics* 47 (5-6): 1545-67. <https://doi.org/10.1007/s00382-015-2919-0>.
- Paolo Di Girolamo, Benedetto De Rosa, Cyrille Flamant, Donato Summa, Olivier Bousquet, Patrick Chazette, Julien Totems, et Marco Cacciani. 2020. « Water vapour mixing ratio and temperature inter-comparison results in the framework of the hydrological cycle in the mediterranean experiment – special observation period 1 ». *Bulletin of Atmospheric Science and Technology*.
- Papayannis, A., V. Amiridis, L. Mona, G. Tsaknakis, D. Balis, J. Bösenberg, A. Chaikovski, et al. 2008. « Systematic lidar observations of Saharan dust over Europe in the frame of EARLINET (2000-2002) ». *Journal of Geophysical Research Atmospheres*. <https://doi.org/10.1029/2007JD009028>.
- Pappalardo, G., A. Amodeo, A. Apituley, A. Comeron, V. Freudenthaler, H. Linné, A. Ansmann, et al. 2014. « EARLINET: towards an advanced sustainable European aerosol lidar network ». *Atmospheric Measurement Techniques* 7 (8): 2389-2409. <https://doi.org/10.5194/amt-7-2389-2014>.
- Pappas, C., N. Hatzianastassiou, et B. D. Katsoulis. 2004. « Analysis of cold spells in the Greek region ».



- 
- Climate Research*. <https://doi.org/10.3354/cr027211>.
- Parey, S., et T. T.H. Hoang. 2016. « Changes in the distribution of cold waves in France in the middle and end of the 21st century with IPSL-CM5 and CNRM-CM5 models ». *Climate Dynamics* 47 (3-4): 879-93. <https://doi.org/10.1007/s00382-015-2877-6>.
- Pelon, J., C. Flamant, P. Chazette, J. F. Leon, D. Tanre, M. Sicard, et S. K. Satheesh. 2002. « 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* 107 (19): 1-13. <https://doi.org/10.1029/2001JD000402>.
- Penney, C. M., R. L. St. Peters, et M. Lapp. 1974. « Absolute rotational Raman cross sections for N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, and CO<sub>2</sub> ». *Journal of the Optical Society of America* 64 (5): 712. <https://doi.org/10.1364/josa.64.000712>.
- Petoukhov, Vladimir, et Vladimir A. Semenov. 2010. « A link between reduced Barents-Kara sea ice and cold winter extremes over northern continents ». *Journal of Geophysical Research Atmospheres*. <https://doi.org/10.1029/2009JD013568>.
- Planchon, Olivier, Hervé Quénol, Liviu Irimia, et Cristi Patriche. 2015. « European cold wave during February 2012 and impacts in wine growing regions of Moldavia (Romania) ». *Theoretical and Applied Climatology* 120 (3-4): 469-78. <https://doi.org/10.1007/s00704-014-1191-2>.
- Potier, E., A. Waked, A. Bourin, F. Minvielle, J. C. Péré, E. Perdrix, V. Michoud, V. Riffault, L. Y. Alleman, et S. Sauvage. 2019. « Characterizing the regional contribution to PM 10 pollution over northern France using two complementary approaches: Chemistry transport and trajectory-based receptor models ». *Atmospheric Research*. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2019.03.002>.
- Pougatchev, N., T. August, X. Calbet, T. Hultberg, O. Oduleye, P. Schlüssel, B. Stiller, K. St Germain, et G. Bingham. 2009. « IASI temperature and water vapor retrievals - Error assessment and validation ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 9 (17): 6453-58. <https://doi.org/10.5194/acp-9-6453-2009>.
- Prates, Cristina, Stefano Migliorini, Laura Stewart, et John Eyre. 2016. « Assimilation of transformed retrievals obtained from clear-sky IASI measurements ». *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*. <https://doi.org/10.1002/qj.2764>.
- Prior, John, et Mike Kendon. 2011. « The UK winter of 2009/2010 compared with severe winters of the last 100 years ». *Weather* 66 (1): 4-10. <https://doi.org/10.1002/wea.735>.
- Quaas, Johannes. 2012. « Evaluating the “critical relative humidity” as a measure of subgrid-scale variability of humidity in general circulation model cloud cover parameterizations using satellite data ». *Journal of Geophysical Research Atmospheres*. <https://doi.org/10.1029/2012JD017495>.
- Radlach, M., A. Behrendt, et V. Wulfmeyer. 2008. « Scanning rotational Raman lidar at 355 nm for the measurement of tropospheric temperature fields ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 8 (2): 159-69. <https://doi.org/10.5194/acp-8-159-2008>.
- Raman, C. V., et K. S. Krishnan. 1928. « A new type of secondary radiation ». *Nature*. <https://doi.org/10.1038/121501c0>.
- Ramanathan, V., P. J. Crutzen, J. Lelieveld, A. P. Mitra, D. Althausen, J. Anderson, M. O. Andreae, et al. 2001. « Indian Ocean Experiment : An integrated analysis of the climate forcing and effects of the
-

- great Indo-Asian haze carbon emerge as the major ». *J. Geophys. Res.* 106: 28,371-28,398.
- Randriamiarisoa, H., P. Chazette, P. Couvert, J. Sanak, et G. Mégie. 2006. « Relative humidity impact on aerosol parameters in a Paris suburban area ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 6 (5): 1389-1407. <https://doi.org/10.5194/acp-6-1389-2006>.
- Raut, J.-C., et P. Chazette. 2009. « Assessment of vertically-resolved PM<sub>10</sub> from mobile lidar observations ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 9 (21).
- Raut, J. C., et P. Chazette. 2007. « Retrieval of aerosol complex refractive index from a synergy between lidar, sunphotometer and in situ measurements during LISAIR experiment ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 7 (11): 2797-2815. <https://doi.org/10.5194/acp-7-2797-2007>.
- . 2008. « Vertical profiles of urban aerosol complex refractive index in the frame of ESQUIF airborne measurements ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 8 (4): 901-19. <https://doi.org/10.5194/acp-8-901-2008>.
- Raut, J C, et P Chazette. 2009. « Assessment of vertically-resolved PM<sub>10</sub> from mobile lidar observations ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 9: 8617-38. <https://doi.org/10.5194/acp-9-8617-2009>.
- Reagan, John A., M. Patrick McCormick, et James D. Spinhirne. 1989. « Lidar Sensing of Aerosols and Clouds in the Troposphere and Stratosphere ». *Proceedings of the IEEE*. <https://doi.org/10.1109/5.24129>.
- Reid, Jeffrey S., Edward J. Hyer, Randall S. Johnson, Brent N. Holben, Robert J. Yokelson, Jianglong Zhang, James R. Campbell, et al. 2013. « Observing and understanding the Southeast Asian aerosol system by remote sensing: An initial review and analysis for the Seven Southeast Asian Studies (7SEAS) program ». *Atmospheric Research*. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2012.06.005>.
- Reverdy, M., H. Chepfer, D. Donovan, V. Noel, G. Cesana, C. Hoareau, M. Chiriaco, et S. Bastin. 2015. « An EarthCARE/ATLID simulator to evaluate cloud description in climate models ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*. <https://doi.org/10.1002/2015JD023919>.
- Royer, P., P. Chazette, K. Sartelet, Q. J. Zhang, M. Beekmann, et J. C. Raut. 2011. « Comparison of lidar-derived PM<sub>10</sub> with regional modeling and ground-based observations in the frame of MEGAPOLI experiment ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 11 (20): 10705-26. <https://doi.org/10.5194/acp-11-10705-2011>.
- Royer, P., J. C. Raut, G. Ajello, S. Berthier, et P. Chazette. 2010. « Synergy between CALIOP and MODIS instruments for aerosol monitoring: Application to the Po Valley ». *Atmospheric Measurement Techniques*. <https://doi.org/10.5194/amt-3-893-2010>.
- Royer, Philippe. 2011. « Lidars à rétrodiffusion Rayleigh-Mie et Raman mobiles pour l'étude des cycles couplés des aérosols et de la vapeur d'eau ». [https://www.researchgate.net/publication/265013904\\_Lidars\\_a\\_retrodiffusion\\_Rayleigh-Mie\\_et\\_Raman\\_mobiles\\_pour\\_letude\\_des\\_cycles\\_couplés\\_des\\_aerosols\\_et\\_de\\_la\\_vapeur\\_deau](https://www.researchgate.net/publication/265013904_Lidars_a_retrodiffusion_Rayleigh-Mie_et_Raman_mobiles_pour_letude_des_cycles_couplés_des_aerosols_et_de_la_vapeur_deau)
- Royer, Philippe, Patrick Chazette, Melody Lardier, et Laurent Sauvage. 2011. « Aerosol content survey by mini N<sub>2</sub>-Raman lidar: Application to local and long-range transport aerosols ». *Atmospheric Environment* 45 (39): 7487-95. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2010.11.001>.
- Schlüssel, Peter, Tim H. Hultberg, Pepe L. Phillips, Thomas August, et Xavier Calbet. 2005. « The operational IASI Level 2 processor ». In *Advances in Space Research*.

- <https://doi.org/10.1016/j.asr.2005.03.008>.
- Schotland, R. M. 1966. « Some observations of the vertical profile of water vapor by a laser optical radar ». *Proceedings*, n° Fourth Symposium on Remote Sensing of the Atmosphere (University of Michigan, Ann Arbor, Michigan): 273-77.
- Schotland, Richard M., Kenneth Sassen, et Richard Stone. 1971. « Observations by Lidar of Linear Depolarization Ratios for Hydrometeors ». *Journal of Applied Meteorology*. [https://doi.org/10.1175/1520-0450\(1971\)010<1011:oblold>2.0.co;2](https://doi.org/10.1175/1520-0450(1971)010<1011:oblold>2.0.co;2).
- Schuster, G. L., M. Vaughan, D. MacDonnell, W. Su, D. Winker, O. Dubovik, T. Lapyonok, et C. Trepte. 2012. « Comparison of CALIPSO aerosol optical depth retrievals to AERONET measurements, and a climatology for the lidar ratio of dust ». *Atmospheric Chemistry and Physics*. <https://doi.org/10.5194/acp-12-7431-2012>.
- Seager, R., D. S. Battisti, J. Yin, N. Gordon, N. Naik, A. C. Clement, et M. A. Cane. 2002. « Is the Gulf Stream responsible for Europe's mild winters? ». *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 128 (586 PART B): 2563-86. <https://doi.org/10.1256/qj.01.128>.
- Seity, Y., S. Malardel, G. Hello, P. Bénard, F. Bouttier, C. Lac, et V. Masson. 2011. « The AROME-France convective-scale operational model ». *Monthly Weather Review* 139 (3): 976-91. <https://doi.org/10.1175/2010MWR3425.1>.
- Shang, Xiaoxia, et Patrick Chazette. 2015. « End-to-end simulation for a forest-dedicated full-waveform lidar onboard a satellite initialized from airborne ultraviolet lidar experiments ». *Remote Sensing*. <https://doi.org/10.3390/rs70505222>.
- Shang, Xiaoxia, Patrick Chazette, et Julien Totems. 2018. « Analysis of a warehouse fire smoke plume over Paris with an N2 Raman lidar and an optical thickness matching algorithm ». *Atmospheric Measurement Techniques*. <https://doi.org/10.5194/amt-11-6525-2018>.
- Sicard, Michaël, Patrick Chazette, Jacques Pelon, Jae Gwang Won, et Soon-Chang Yoon. 2002. « Variational method for the retrieval of the optical thickness and the backscatter coefficient from multiangle lidar profiles ». *Applied Optics*. <https://doi.org/10.1364/ao.41.000493>.
- Skyllakou, K., B. N. Murphy, A. G. Megaritis, C. Fountoukis, et S. N. Pandis. 2014. « Contributions of local and regional sources to fine PM in the megacity of Paris ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 14 (5): 2343-52. <https://doi.org/10.5194/acp-14-2343-2014>.
- Smith, Warren J. 1990. « Modern optical engineering ». In *Modern optical engineering*, édité par SPIE Press, Fourth edi, 246. McGraw Hill.
- Sroga, J. T., E. W. Eloranta, S. T. Shipley, F. L. Roesler, et P. J. Tryon. 1983. « High spectral resolution lidar to measure optical scattering properties of atmospheric aerosols 2: Calibration and data analysis ». *Applied Optics*. <https://doi.org/10.1364/ao.22.003725>.
- Stein, A. F., R. R. Draxler, G. D. Rolph, B. J.B. Stunder, M. D. Cohen, et F. Ngan. 2015. « NOAA's Hysplit atmospheric transport and dispersion modeling system ». *Bulletin of the American Meteorological Society* 96 (12): 2059-77. <https://doi.org/10.1175/BAMS-D-14-00110.1>.
- Stelitano, Dario, Paolo Di Girolamo, Andrea Scoccione, Donato Summa, et Marco Cacciani. 2019. « Characterization of atmospheric aerosol optical properties based on the combined use of a ground-based Raman lidar and an airborne optical particle counter in the framework of the Hydrological Cycle

- 
- in the Mediterranean Experiment - Special Observation Pe ». *Atmospheric Measurement Techniques*.  
<https://doi.org/10.5194/amt-12-2183-2019>.
- Strauch, R. G., V. E. Derr, et R. E. Cupp. 1971. « Atmospheric Temperature Measurement Using Raman Backscatter ». *Applied Optics* 10 (12): 2665. <https://doi.org/10.1364/ao.10.002665>.
- Su, Jia, M. Patrick McCormick, Yonghua Wu, Robert B. Lee, Liqiao Lei, Zhaoyan Liu, et Kevin R. Leavor. 2013. « Cloud temperature measurement using rotational Raman lidar ». *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 125: 45-50. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2013.04.007>.
- Summa, Donato, Paolo Di Girolamo, Cyrille Flamant, Benedetto De Rosa, Marco Cacciani, et Dario Stelitano. 2018. « Water vapour inter-comparison effort in the framework of the hydrological cycle in the mediterranean experiment - Special observation period (hymex-sop1) ». In *EPJ Web of Conferences*. <https://doi.org/10.1051/epjconf/201817608016>.
- Synge, E.H. 1930. « XCI. A method of investigating the higher atmosphere ». *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*.  
<https://doi.org/10.1080/14786443008565070>.
- Tesche, Matthias, Albert Ansmann, Detlef Müller, Dietrich Althausen, Ronny Engelmann, Min Hu, et Yuanhang Zhang. 2007. « Particle backscatter, extinction, and lidar ratio profiling with Raman lidar in south and north China ». *Applied Optics*. <https://doi.org/10.1364/AO.46.006302>.
- Tesche, Matthias, Detlef Müller, Silke Gross, Albert Ansmann, Dietrich Althausen, Volker Freudenthaler, Bernadett Weinzierl, Andreas Veira, et Andreas Petzold. 2011. « Optical and microphysical properties of smoke over Cape Verde inferred from multiwavelength lidar measurements ». *Tellus, Series B: Chemical and Physical Meteorology*. <https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2011.00549.x>.
- Tomassini, Lorenzo, Edwin P. Gerber, Mark P. Baldwin, Felix Bunzel, et Marco Giorgetta. 2012. « The role of stratosphere-troposphere coupling in the occurrence of extreme winter cold spells over northern Europe ». *Journal of Advances in Modeling Earth Systems*. <https://doi.org/10.1029/2012MS000177>.
- Tombette, M., P. Chazette, B. Sportisse, et Y. Roustan. 2008. « Simulation of aerosol optical properties over Europe with a 3-D size-resolved aerosol model: Comparisons with AERONET data ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 8 (23): 7115-32. <https://doi.org/10.5194/acp-8-7115-2008>.
- Tompkins, A. M. 2003. « Impact of temperature and humidity variability on cloud cover assessed using aircraft data ». *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*.  
<https://doi.org/10.1256/qj.02.190>.
- Totems, Julien, et Patrick Chazette. 2016. « Calibration of a water vapour Raman lidar with a kite-based humidity sensor ». *Atmospheric Measurement Techniques* 9 (3): 1083-94.  
<https://doi.org/10.5194/amt-9-1083-2016>.
- Totems, Julien, Patrick Chazette, et Jean Christophe Raut. 2019. « Accuracy of current Arctic springtime water vapour estimates, assessed by Raman lidar ». *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 145 (720): 1234-49. <https://doi.org/10.1002/qj.3492>.
- Twomey, S. 1974. « Pollution and the planetary albedo ». *Atmospheric Environment (1967)*.  
[https://doi.org/10.1016/0004-6981\(74\)90004-3](https://doi.org/10.1016/0004-6981(74)90004-3).
- . 1977. « The Influence of Pollution on the Shortwave Albedo of Clouds ». *Journal of the Atmospheric Sciences* 34 (7): 1149-52. [https://doi.org/10.1175/1520-0469\(1977](https://doi.org/10.1175/1520-0469(1977)
-

- 
- Vaughan, G, D P Wareing, S J Pepler, L Thomas, et V Mitev. 1993. « Atmospheric-Temperature Measurements Made By Rotational Raman-Scattering ». *Applied Optics* 32 (15): 2758-64. <https://www.osapublishing.org/ao/abstract.cfm?uri=ao-32-15-2758>.
- Vries, Hylke De, Reindert J. Haarsma, et Wilco Hazeleger. 2012. « Western European cold spells in current and future climate ». *Geophysical Research Letters* 39 (4): 1-6. <https://doi.org/10.1029/2011GL050665>.
- Wandinger, Ulla. 2006. « Raman Lidar ». In *Lidar*. [https://doi.org/10.1007/0-387-25101-4\\_9](https://doi.org/10.1007/0-387-25101-4_9).
- Wang, Y., K. N. Sartelet, M. Bocquet, et P. Chazette. 2013. « Assimilation of ground versus lidar observations for PM10 forecasting ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 13 (1): 269-83. <https://doi.org/10.5194/acp-13-269-2013>.
- . 2014. « Modelling and assimilation of lidar signals over Greater Paris during the MEGAPOLI summer campaign ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 14 (7): 3511-32. <https://doi.org/10.5194/acp-14-3511-2014>.
- Wang, Y., K. N. Sartelet, M. Bocquet, P. Chazette, M. Sicard, G. D'Amico, J. F. Léon, et al. 2014. « Assimilation of lidar signals: application to aerosol forecasting in the western Mediterranean basin ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 14 (22): 12031-53. <https://doi.org/10.5194/acp-14-12031-2014>.
- Weiden-Reinmüller, S. L. Von Der, F. Drewnick, Q. J. Zhang, F. Freutel, M. Beekmann, et S. Borrmann. 2014. « Megacity emission plume characteristics in summer and winter investigated by mobile aerosol and trace gas measurements: The Paris metropolitan area ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 14 (23): 12931-50. <https://doi.org/10.5194/acp-14-12931-2014>.
- Weitkamp, Claus. 2005. *Lidar : range-resolved optical remote sensing of the atmosphere. Springer series in optical sciences*,. <https://doi.org/10.1007/b106786>.
- Wild, Martin, Doris Folini, Christoph Schär, Norman Loeb, Ellsworth G. Dutton, et Gert König-Langlo. 2013. « The global energy balance from a surface perspective ». *Climate Dynamics* 40 (11-12): 3107-34. <https://doi.org/10.1007/s00382-012-1569-8>.
- WMO. 2018. « Guide to Instruments and Methods of Observation - Volume I - Measurement of Meteorological Variables ». [https://library.wmo.int/doc\\_num.php?explnum\\_id=10179](https://library.wmo.int/doc_num.php?explnum_id=10179).
- World Meteorological Organization. 1996. « Commission for Basic Systems (CBS) Working group on Satellites, Final Report », n° 1017. All Papers/Other/1 - Commission for Basic Systems Fourteenth Session.pdf.
- Wulfmeyer, Volker, R. Michael Hardesty, David D. Turner, Andreas Behrendt, Maria P. Cadetdu, Paolo Di Girolamo, Peter Schlüssel, Joël Van Baelen, et Florian Zus. 2015. « A review of the remote sensing of lower tropospheric thermodynamic profiles and its indispensable role for the understanding and the simulation of water and energy cycles ». *Reviews of Geophysics* 53 (3): 819-95. <https://doi.org/10.1002/2014RG000476>.
- Yang, Shuting, et Jens H. Christensen. 2012. « Arctic sea ice reduction and European cold winters in CMIP5 climate change experiments ». *Geophysical Research Letters*. <https://doi.org/10.1029/2012GL053338>.
-

# Liste des figures

Figure 1 : Schéma du cycle de l'eau (d'après de Marsily, 2017). Les différents réservoirs d'eau dans ses trois états sont détaillés avec leur volume associé en  $\text{km}^3$  (caractères noirs). Les flux entre ces réservoirs sont représentés par des flèches orange et précisés dans les encadrés sombres en  $\text{km}^3/\text{an}$ .....14

Figure 2 : Représentation schématique de la circulation atmosphérique générale (illustration tirée d'AOES Medialab, ESA). On retrouve les trois grandes cellules de la circulation méridienne : Hadley, Ferrel et polaire (cylindres concentriques bleus) entrecoupées par les jets subtropicaux et polaires (cylindres jaunes). Les régimes de vent majoritaires selon les zones climatiques tropicales, tempérés et polaires sont aussi détaillés (flèches bleu clair). .....15

Figure 3 : Croquis représentant les différentes sources d'aérosols naturels (marins, terrigènes, biogéniques et volcaniques) et anthropiques (trafic, chauffage et industries) ainsi que leurs impacts sur le climat (illustration tirée de Chazette, 2004). .....17

Figure 4 : Représentation des différents mécanismes de formation des aérosols selon leurs tailles. Ces mécanismes sont associés à des tailles typiques incarnées par les modes dans les différentes représentations en nombre, en surface ou en volume de la granulométrie des aérosols (Figure tirée des travaux de Buseck and Adachi, 2008). .....18

Figure 5 : Résumé illustré des différents effets des aérosols sur le climat (d'après Haywood and Boucher, 2000, © MetOffice). Les aérosols sont représentés par les points noirs et les gouttelettes d'eau par les cercles blancs, le rayonnement par les flèches noires. CNDC est l'acronyme pour la concentration en nombre des gouttelettes nuageuses et LWC signifie contenu en eau liquide.....19

Figure 6 : Représentation de la fonction de densité de probabilité du forçage radiatif effectif induit par le surplus anthropique des gaz à effet de serre (rouge), des aérosols (bleu) - en prenant en compte les interactions aérosols - vapeur d'eau - nuages - et le total (noir). Les barres d'erreur de couleurs en haut du graphique représentent l'intervalle de confiance à 95 % des forçages (d'après IPCC, 2013). .....21

Figure 7 : Diagramme schématisant les rétroactions climatiques des aérosols en interaction avec le rayonnement et les nuages. Le dérèglement induit par les GES et les aérosols va entraîner la modification des variables d'état de l'atmosphère, qui va rétroagir en premier lieu sur l'effet des aérosols et des nuages (D'après IPCC, 2013). .22

Figure 8 : Schéma de la chaîne fonctionnelle d'un lidar pour l'observation de l'atmosphère. L'émission est constituée d'une source laser dont le faisceau est souvent étendu et collimaté pour satisfaire les normes de sécurité oculaire. La lumière rétrodiffusée est reçue par le système de réception, focalisée et filtrée spatialement au foyer optique à l'aide d'un diaphragme. Le signal lumineux est ensuite recollimaté et séparé selon sa longueur d'onde ou sa polarisation. Un filtrage spectral fin (filtre interférentiel / Fabry-Pérot) est postérieurement opéré avant la focalisation sur un photomultiplicateur (PM) ou une photodiode à avalanche (APD). Le signal est alors transformé en courant ou en tension par la chaîne d'acquisition numérique (CAN). Schéma adapté du travail de J. Totems. ....29

Figure 9 : Transmission moyenne de l'atmosphère (en haut) et spectre d'éclairement solaire moyen à la surface de la Terre (en bas) en fonction de la longueur d'onde. Les longueurs d'onde du laser Nd:YAG : 1064 nm, 532 nm (fréquence doublée) et 355 nm (fréquence triplée) sont représentées en couleur. ....32

Figure 10 : Configurations de lidars distinguées par l'agencement de l'émission et de la réception. Le cylindre orange représente le système optique de réception. L'émission est symbolisée par la source laser en rouge. L'axe optique est matérialisé en trait pointillé noir. Schéma adapté du travail de J. Totems. ....33

---

Figure 11 : LAASURS en fonctionnement sur le toit du bâtiment du LSCE pendant le printemps 2019 dans le cadre de la calibration/validation de la mission ADM-Aeolus. Le schéma du module optique du lidar est représenté sur la gauche (d'après un schéma de J. Totems). .....	35
Figure 12 : Le lidar WALI en fonctionnement sous la trappe dédiée au LSCE. La voie élastique et le polychromateur sont couverts d'un voile noir pour limiter la lumière ambiante diffuse. ....	37
Figure 13 : Illustration temps – distance de la résolution spatiale ( $\Delta z$ ) d'un système en visée verticale. L'impulsion laser à une largeur temporelle $\Delta t_0$ et la fenêtre d'échantillonnage une largeur $\Delta t_r$ . Figure tirée de Chazette et al. (2016). ....	39
Figure 14 : Schéma du recouvrement entre le cône d'émission et le cône de réception d'un lidar quasi-monostatique paraxial. On observe une zone de non recouvrement, une zone de recouvrement partiel et une distance à partir de laquelle le recouvrement est total (Illustration de J.Totems). N.B : x est ici analogue à la distance $z - z_0$ des équations précédentes. ....	44
Figure 15 : Calcul du facteur géométrique a) et représentation de celui-ci b). $S_{log}$ est le logarithme du signal corrigé, $y$ est la droite de régression sur un intervalle où il est certain que le facteur de recouvrement a atteint l'unité. ....	45
Figure 16 : Illustration des fonctions de phase de la diffusion Rayleigh et de la diffusion de Mie selon la taille des diffuseurs (échelles non respectées). ....	50
Figure 17 : Exemple de profil lidar corrigé, noté ici ABC a). La courbe noire représente le signal total, la rouge, ce que serait le signal si l'atmosphère était composée exclusivement de molécules (dit signal Rayleigh). Sur le profil deux couches sont identifiables : une première proche du sol correspondant à la couche limite atmosphérique (CLA) et une deuxième la surplombant (transport d'aérosols. La figure (a) est tirée de l'article Chazette et al. (2019a). L'accumulation de profils corrigés sur une journée (le 28 mai 2020 ici) est également présentée en 2D (b). On y voit en couleur le signal $S_2$ corrigé (exprimé en dB) dessiner la structuration de l'atmosphère et notamment le développement de la CLA. ....	55
Figure 18 : Intensité relative (échelle logarithmique) des spectres de diffusion Rayleigh, Mie, Raman vibrationnelle et Raman rotationnelle pour les molécules de $N_2$ , $O_2$ et $H_2O$ avec une onde lumineuse incidente à 355 nm. Le pic d'intensité prépondérante en violet, à 355 nm, représente les diffusions élastiques Rayleigh (pour les molécules) et Mie (pour les particules). Ce pic est appelé raie de Cabannes (Cabannes 1944). L'enveloppe de pics bleus autour de cette raie principale est le spectre rotationnel des molécules de $N_2$ et $O_2$ dans leur état fondamental de vibration ( $\nu=0$ ). Les raies rouge verte et bleue et leurs enveloppes associées sont les pics de diffusion Raman vibrationnelle ( $\nu=1$ ) et les spectres ro-vibrationnels associés, respectivement pour les molécules de $O_2$ , $N_2$ et $H_2O$ . (Illustration réalisée par J. Totems) .....	59
Figure 19 : Spectre Raman rotationnel de $N_2$ et $O_2$ avec les intensités des raies pour deux températures distinctes (-20°C et +20°C). Les filtres $RR_1$ (basse valeur de $J$ ) et $RR_2$ (haute valeur de $J$ ) sont ceux utilisés sur le lidar WALI. Ils ont été mesurés à l'aide d'un spectroscopie avec une résolution spectrale de $0,25 \text{ cm}^{-1}$ . Un coefficient ( $\mathbf{rO2rN2} = \mathbf{0,27}$ ) est appliqué sur les sections efficaces de rétrodiffusion de $O_2$ (intensités des raies) pour rendre compte du mélange atmosphérique. En agrandissant la partie anti-Stokes du spectre (figure du haut), on met bien en évidence la dissymétrie du spectre en fonction de la température : pour de hautes valeurs de $J$ (à gauche), l'intensité va croissante avec la température, pour de petites valeurs de $J$ (à droite), l'intensité des raies va décroissante avec la température. ....	68
Figure 20 : Diagramme des niveaux d'énergie Raman rotationnels purs pour la molécule de $N_2$ . 8 niveaux sont représentés depuis le niveau fondamental ( $J = 0$ à $J = 7$ ). Les flèches indiquent les transitions permises entre les niveaux d'énergie. ....	69

---

---

Figure 21 : Relation entre la température en Kelvin et les sections efficaces de rétrodiffusion RR telles que vues via les filtres interférentiels du WALI. Ces sections sont représentées en couleur (orange pour  $RR_1$  et vert pour  $RR_2$ ) pour une plage de température de  $-80^\circ\text{C}$  à  $+40^\circ\text{C}$ . En trait plein noir, le rapport de ces deux sections efficaces appelé  $Q$  est tracé sur cette même plage de température (axe des Y à droite). Dans ce cas les filtres sont supposés orthogonaux à l'axe optique de réception du lidar et le rapport  $Q$  présenté ainsi suppose des rapports des gains et des facteurs géométriques égaux à 1. .... 73

Figure 22 : Courbe d'étalonnage en température du ratio  $Q$ . Pour une même altitude  $z$  et des temps concomitants, les valeurs de  $Q$  sont tracées en ordonnée en fonction de la température du profil d'étalonnage établi à l'aide de vols ULM et de radiosondages. La couleur des points fait référence à la barre de couleur sur la droite et renseigne sur l'altitude de mesure des données. Une fonction de  $T(Q_{fit})$  en trait plein gris est ensuite ajustée à ces données pour être appliquée à tous les profils lidar pour un suivi continu de la température. .... 74

Figure 23 : Erreurs d'étalonnage intrinsèquement liées à la fonction utilisée pour une plage de température de  $-80^\circ\text{C}$  à  $+40^\circ\text{C}$ . Les graphiques, dont l'axe des ordonnées est successivement agrandi de a) à d), représentent les erreurs pour cinq fonctions d'étalonnages différentes (équations A à D de l'équation 12). Pour une même courbe, le code couleur est préservé d'un graphique à l'autre. .... 75

Figure 24 : Schéma du polychromateur des voies Raman du WALI. Le faisceau arrive de la gauche par la fibre et est séparé par miroir dichroïque (MD) qui réfléchit les longueurs d'ondes inférieures à 365 nm. Du côté Raman rotationnel, un premier filtre interférentiel (FI) est placé avant un miroir semi-réfléchissant (MSR) qui sépare le faisceau vers les voies  $RR_1$  et  $RR_2$  avec leurs FI et leurs photomultiplicateurs (PM) propres. .... 77

Figure 25 : Spectres de transmission des filtres  $RR_1$  (traits pointillés) et  $RR_2$  (traits pleins) simulés pour plusieurs angles d'inclinaison  $\theta$ . Ici la simulation ne montre qu'un déplacement de la longueur d'onde centrale des filtres. .... 79

Figure 26 : Sections efficaces de rétrodiffusion Raman rotationnelle pour chaque inclinaison de chacun des filtres. Les sections efficaces  $RR_1$  sont tracées en traits pointillés et les  $RR_2$  en traits pleins. .... 79

Figure 27 : Gradient de  $Q$  (qui correspond, au premier ordre, à la pente des pseudo-droites  $Q = f(T)$ ). Trois combinaisons sont tracées en couleur et offrent une sensibilité accrue à la température par rapport à la configuration normale des filtres. .... 80

Figure 28 : Ratio  $Q$  en fonction de la température pour des couples d'angles d'incidences petits sur les filtres  $RR_1$  et  $RR_2$ . .... 81

Figure 29 : Erreur sur la température en fonction de la température. L'inversion des données acquises en incidence non normale est effectuée en utilisant les coefficients d'étalonnage calculés en incidence normale (courbe pointillée noire). .... 81

Figure 30 : Schéma en blocs du modèle direct. Il est composé des caractéristiques instrumentales, d'un modèle d'atmosphère initialisé par un profil de température et d'épaisseur optique des aérosols. Enfin le modèle de spectroscopie Raman rotationnelle (RR) permet de calculer les sections efficaces RR. Il est dit idéal car fournissant des signaux moyens non soumis au bruit de mesure. .... 83

Figure 31 : Conditions initiales du modèle direct. a) Les profils de température observés de jour (rouge) et de nuit (bleu) se réfèrent à l'axe des abscisses du bas. Ils ont été mesurés le 17 juin 2019 au Sud du Lac d'Annecy. Le profil d'épaisseur optique des aérosols (noir) se réfère à l'axe des abscisses du haut de la figure. b) Coefficient de rétrodiffusion total avec la présence d'un nuage au sommet de la couche limite ( $\sim 2$  km). .... 84

Figure 32 : Schéma du modèle inverse. Il utilise en entrées un profil de ratio  $Q(z)$  et un profil de température dédiés à l'étalonnage  $T_{etal}(z)$ . En sortie, on retrouve la température  $T_{lidar}(z)$  associée au ratio  $Q$ . .... 84

Figure 33 : Profils du biais entre la température de référence et la température inversée. Les graphiques a) à d) représentent respectivement le cas où l'on ne considère pas les fuites de signal élastique dans les filtres (a), le

---



cas où l'on considère les fuites de signaux moléculaires seulement (b), moléculaires et aérosols (c) et la présence d'un nuage à 2 km d'altitude (d).....	86
Figure 34 : Différence entre la température de référence $T_{Ref}$ et la température utilisée pour étalonner, $T_{Etal}$ (a). Biais entre la température inversée et $T_{Ref}$ si l'on considère tout le profil d'étalonnage (b, bleu) ou si l'on restreint l'étalonnage au-dessus de 2 km (b, rouge).....	87
Figure 35 : Facteurs géométriques simulés pour les voies $RR_1$ (orange) et $RR_2$ (bleu clair) et leur moyenne (pointillés noirs). Ils convergent à 300 m et leur différence relative (bleu foncé) décroît d'environ 10 % au niveau de l'instrument à moins de 5 % après 150 m de distance.....	88
Figure 36 : Biais sur l'estimation de température par lidar pour des facteurs géométriques (FG) égaux (bleu), et avec des écarts de l'ordre de 5 %, avec prise en compte (jaune) ou non (orange) lors de l'étalonnage. En b, le profil est agrandi au niveau des couches impactées par le FG.....	89
Figure 37 : Schéma en blocs du modèle direct-inverse avec l'analyse de Monte-Carlo. Pour une étude réaliste des erreurs aléatoires, des observations lidars réelles sont utilisées. L'étalonnage est supposé idéal, avec l'utilisation de signaux non bruités.....	91
Figure 38 : Signaux $RR_1$ (ab) et $RR_2$ (cd) corrigés du fond de ciel et de l'angle solide, simulés numériquement et observés à Lathuile le 17 juin 2019. Les profils observés ont une résolution temporelle d'une minute (moyenne de 1000 tirs laser) et une résolution verticale de 15 m (résolution brute divisée par 20). Une distinction est faite pour les mesures de nuit (a et c) et celle de jour (b et d) qui sont caractérisées par des niveaux de bruit significativement différents.....	91
Figure 39 : Erreur théorique sur la température en fonction de la température et du $SNR_Q$ (en couleur). Les échelles de l'axe des Y et de la barre de couleur sont logarithmique.....	93
Figure 40 : Profils de $SNR_Q$ (pointillés, axe des X linéaire en haut) et RMSD (traits pleins, axe des X logarithmique en bas) en fonction de l'altitude pour des simulations représentatives de mesures diurnes (a, jusqu'à 5 km) ou nocturnes (b, jusqu'à 10 km) du lidar WALI. Plusieurs résolutions verticales et temporelles sont tracées en couleurs et détaillées en légende.....	95
Figure 41 : Incertitude sur la température en fonction du rapport signal à bruit sur le ratio lidar Q ( $SNR_Q$ ). Quatre cas aux résolutions verticales et temporelles différentes sont présentés pour des mesures nocturnes.....	95
Figure 42 : Schéma en blocs du modèle direct-inverse avec l'analyse de Monte-Carlo pour un étalonnage non idéal. Une seule réalisation de la simulation de Monte-Carlo est utilisée pour étalonner. Ce schéma doit être répété k fois pour estimer le biais moyen de l'étalonnage sur k réalisations.....	96
Figure 43 : Biais moyen (a) et erreur quadratique (RMSD) moyenne (b) liés à l'étalonnage sur l'estimation de la température par lidar en fonction de l'intervalle d'altitude choisi pour des mesures diurnes. Les intervalles de température correspondant aux altitudes sont croissants, de quelques degrés (minimum ~5 K) jusque plusieurs dizaines de degrés Kelvin (maximum ~20 K).....	98
Figure 44 : Biais moyen (a) et erreur quadratique (RMSD) moyenne (b) liés à l'étalonnage sur l'estimation de la température par lidar en fonction de l'intervalle d'altitude choisi pour des mesures nocturnes. Les intervalles de température correspondant aux altitudes sont croissants, de quelques degrés (minimum ~5 K) jusque plusieurs dizaines de degrés Kelvin (maximum ~60 K).....	99
Figure 45 : RMSD (axe des X logarithmique en bas) en fonction de l'altitude pour des simulations représentatives de mesures diurnes (a, jusqu'à 5 km) ou nocturnes (b, jusqu'à 10 km) du lidar WALI. Plusieurs résolutions verticales et temporelles sont tracées en couleurs et détaillées en légende.....	100
Figure 46: Cold wave (CW) occurrence in France from 1950 to 2019. The maximum intensity (Y-axis) is the France-averaged temperature of the coldest day of each CW. The colour indicates the early or late onset of the CW (i.e. blue for December and yellow for February). The size of the disk indicates the severity of the	

	CW, computed as a function of its duration, maximum intensity and mean temperature. The year $n$ in black font centred in each disk relates to the winter of years $(n-1)/n$ .....	110
Figure 47:	Representation of the normalised occurrence of backward trajectories calculated with the HYSPLIT Lagrangian model in ensemble mode. A grid of 5-day-long runs is compiled. Back trajectories are initiated every 6 hr from 26 February 0000 UTC to 1 March 0000 UTC. They are initiated every 250 m from 1250 to 2750 m of altitude. For 26 February, the locations of the high and the two lows are represented schematically. ....	111
Figure 48:	Calibration curve of the lidar. The Q ratio is plotted against the coinciding radiosoundings. Coloured lines correspond to each radiosounding and a distinction is made for day and night with circle and star markers, respectively. The marker colour provides information on the altitude (coloured bar). The computed regression is plotted in solid black line. The dashed line represents the re-computation without data points further than 3 standard deviations from the original fit.....	114
Figure 49:	Radiosounding and lidar profile-to-profile comparison after temperature calibration: a) nighttime radiosonde on 22 February 0000 UTC, and b) daytime radiosonde on 22 February 1200 UTC. The grey lines with coloured dots represent the radiosounding temperatures while the thick blue lines and the blue areas represent the lidar-derived temperatures and their standard deviations for a 2-hour average, respectively. The coloured scale indicates the distance separating the lidar and the balloon during its ascension. ....	115
Figure 50:	Time series, from 22 to 27 February, of atmospheric temperature profiles derived from: a) lidar and b) ERA5 reanalysis product. Time of RS launches are indicated by grey lines every 12 hr on the top panel. The dataset division in three periods (P1, P2 and P3) is also highlighted by black horizontal braces on the same figure. ....	117
Figure 51:	Profiles of IASI (red), WALI (blue), and ERA5 reanalysis (green). The profiles are plotted up to 4 km AMSL during the three periods a) P1 (23 February), b) P2 (24 February) and c) P3 (26 February) for daytime and up to 6 km AMSL for nighttime during d) P1 (22 February), e) P2 (24 February) and f) P3 (26 February).....	119
Figure 52:	Profiles of Correlation (COR, red), Mean Bias (MB, blue) and centred root mean square error (RMSE, green) between IASI temperature profiles and corresponding lidar measurements: a) all the 26 lidar-IASI profiles comparison up to 4 km, b) restricted to the 9 diurnal profiles and c) 17 nighttime profiles up to 7 km. ....	121
Figure 53:	Sequential diagrams of the production procedures for the Numerical Weather Prediction Model operational products. a) For ERA5, two distinct products are available: a forecast run launched at $t_0 = 0600$ UTC and one at $t_0 = 1800$ UTC, both for 18 hours / forecast steps (green). At the same time, assimilation windows occur every 12 hours for a duration of 12 hours. b) For AROME, a forecast run is launched at $t_0 = 0000$ UTC for 24 hours / forecast steps (green). The assimilation windows start 30 min before the run and ends 30 min after $t_0$ (yellow). ....	123
Figure 54:	a) profiles of correlation coefficient (COR), b) mean bias (MB) and c) centred root mean square error (RMSE) between the lidar-derived temperature profiles and the corresponding model outputs. The coloured areas represent the variability of calculation for each forecast step.....	126
Figure 55 :	Cartes des champs de PM <sub>10</sub> modélisés en Europe de l'Ouest pour les 1 <sup>er</sup> décembre 2016 (gauche) et 21 janvier 2017 (droite), les deux jours les plus pollués de l'hiver 2016 – 2017. Les données sont issues des ré-analyses du Copernicus Atmospheric Monitoring Service utilisant le modèle de chimie-transport CHIMERE (Menut et al. 2013). ....	143
Figure 56 :	Séries temporelles de concentration en PM <sub>2,5</sub> mesuré au sol (en trait rouge entouré d'orange) par prélèvement et par lidar dans la zone de la couche limite présentant le plus fort coefficient d'extinction des	

aérosols (en trait bleu entouré de vert). Les enveloppes de couleurs représentent les écarts-types liés aux moyennes spatiales pour les concentrations au sol et temporelle pour le lidar. Les seuils réglementaires sont matérialisés par les traits noirs horizontaux en pointillés.....	164
Figure 57 : Carte de l'Europe de l'Ouest avec la localisation d'Annecy au centre (point rouge), dans les Alpes française (a). Carte du relief autour de la zone d'étude (b). Au Sud du lac, sur la commune de Lathuile, l'emplacement du camion instrumenté, MAS (« Mobile Atmospheric Station »), et la base de départ des ULM (« ULA base ») sont représenté en blanc. La trajectoire d'un vol d'ULM autour de la localisation du MAS dans un but d'étalonnage est tracé en gris/orange. Le modèle numérique de terrain (b) est issu de données mises à disposition par l'IGN (institut national de l'information géographique et forestière).....	170
Figure 58 : Schéma de la stratégie adoptée pour les mesures durant la campagne L-WAIVE. On retrouve le camion instrumenté MAS, les deux ULM et les mesures sur le lac. Dessin de J. Totems tiré de l'article de présentation de la campagne soumis prochainement (Chazette et al).....	171
Figure 59 : Profils de température potentielle (orange), rapport de mélange de vapeur d'eau (WVMR, bleu) et humidité relative (noir) selon l'altitude au-dessus du sol (AGL). Sur le côté les différentes influences sont explicitées. PBL correspond à « planetary boundary layer », la couche limite planétaire.....	172
Figure 60 : Série temporelles en fonction de l'altitude des données thermodynamiques mesurées par le WALI du 13 au 21 juin 2019 à Lathuile. La température $T$ (a) est tracée en couleur en degré Celsius, le rapport de mélange de vapeur d'eau $rH2O$ (b) est tracé en couleur en $g \cdot kg^{-1}$ , et l'humidité relative RH (%) est tracée en couleur avec des contours (%). Les résolutions temporelles et verticales sont de 20 min et 20 m puis 40 m au-dessus de 5 km. ....	173
Figure 61 : Nuage de points des données de treize vols ULM et des profils d'humidité du WALI concomitants. Les barres d'incertitudes correspondent aux données du WALI. ....	174
Figure 62 : Profils de biais moyen (bleu), corrélation (rouge) et écart quadratique moyen (vert) pour les profils d'humidité relative présentés en Figure 61. Les indicateurs sont calculés en % d'humidité relative avec l'ULM comme référence ( $T_{Lidar} - T_{ULM}$ ). ....	175
Figure 63 : a) Plan de vol du 21 juin 2019 de l'ULM embarquant le lidar ALIAS, le granulomètre optique et la sonde météorologique. L'humidité relative mesurée par la sonde est tracée en couleur de 50 % à 100 %. b) Distribution granulométrique en fonction de l'altitude pour le vol du 21 juin 2019 vers 11h, heure locale. L'échelle de couleur qui représente la concentration en nombre des aérosols est en échelle logarithmique. ....	177
Figure 64 : Section efficace d'extinction ( $\sigma_{extinction}$ , $cm^2$ ) en fonction de l'humidité relative. La couleur des points renseigne sur l'altitude de la mesure. Une régression est effectuée selon la loi présentée dans l'équation 88. Le résultat est un coefficient $\gamma$ dont la valeur est donnée en légende.....	178

---

# Liste des tableaux

Tableau 1 : Principales caractéristiques techniques du LAASURS.....	35
Tableau 2 : Principales caractéristiques techniques du WALL.....	37
Tableau 3 : Valeurs numériques, pour le niveau vibrationnel fondamental des molécules de N <sub>2</sub> et O <sub>2</sub> , des constantes de rotation, distorsion centrifuge, poids statistique du spin nucléaire, spin nucléaire et anisotropie du tenseur de polarisabilité.....	70
Tableau 4 : Coefficients de cinq fonctions d'étalonnage présentées en équation 71. Le calcul est effectué pour une plage de température de -80°C à +40°C. L'erreur maximale associée à chaque fonction est également indiquée. ....	76
Tableau 5 : Tableau des caractéristiques des filtres interférentiels utilisés pour les voies Raman rotationnelles du WALL. CWL représente la longueur d'onde centrale du filtre (« Central WaveLength »), FWHM représente la largeur à mi-hauteur du filtre (« Full – Width at Half Maximum »). Les transmissions maximales, au niveau de la longueur d'onde centrale et pour la longueur d'onde d'émission du laser sont notées respectivement T <sub>max</sub> , T <sub>CWL</sub> et T <sub>λ</sub> pour chacun des filtres. N <sub>eff</sub> représente l'indice de réfraction effectif du filtre interférentiel. Toutes les longueurs d'ondes sont données dans le vide, et les mesures sont faites à 22°C.....	77
Tableau 6 : Altitude maximale (Z <sub>max</sub> ) et rapport signal à bruit du ratio Q (SNR <sub>Q</sub> ) pour une erreur inférieure à un degré Kelvin dans le cas du lidar WALL. Des distinctions sont faites pour les mesures diurnes et nocturnes et quatre couples de résolutions temporelles et verticales.....	94
Tableau 7 : Propriétés optiques des aérosols mesurés par lidar. Restriction aux aérosols marins. Dans ce tableau, AERONET correspond au réseau international de photomètre solaire (« Aerosol Robotic Network »). SAMUM (« SAharan Mineral dUst experiMENT ») et INDOEX (« the INDIan Ocean EXperiment ») les acronymes de campagnes de mesures internationales. Et SODA (« Synergized Optical Depth of Aerosols ») est un produit mixte CALIPSO/CLOUDSAT fournissant l'épaisseur optique des aérosols au-dessus des océans. N.B : Pour Burton et al. (2012), les valeurs sont respectivement les 25 <sup>e</sup> – 75 <sup>e</sup> (5 <sup>e</sup> – 95 <sup>e</sup> ) percentiles. La même notation pour les autres références correspond à un intervalle (minimum – maximum). ....	137
Tableau 8 : Comme le Tableau 7, pour les poussières désertiques, pures ou mélangées à des aérosols d'autre origines (aérosols de feu de biomasse ou pollution, par exemple).....	138
Tableau 9 : Comme le Tableau 8 pour les aérosols de feux de biomasse (fraichement émis ou vieillis).....	139
Tableau 10 : Comme le Tableau 8 pour les aérosols de pollution urbaine. ....	140
Tableau 11 : Ratio lidar utilisés pour les observations spatiales des lidar CALIOP / CALIPSO et CATS / ISS (tableau tiré de Chazette et al., 2019a). ....	141
Tableau 12 : Coefficients utilisés pour le calcul de la pression de vapeur saturante par rapport à l'eau liquide et la glace. Les intervalles de températures sont les intervalles données pour ces coefficients dans l'article de Alduchov et Eskridge (1996). ....	168

## Annexe A : Liste des publications

### Articles dans des revues à comité de lecture :

- 2019 – Evidence of the complexity of aerosol transport in the lower troposphere on the Namibian coast during AEROCLO-sA. P.Chazette, C.Flamant, J.Totems, M.Gaetani, G.Smith, **A.Baron**, X.Landsheere, K.Desboeufs, J.-F.Doussin, and P.Formenti. *Atmospheric Chemistry and Physics*, DOI : 10.5194/acp-19-14979-2019
- 2020 – Remote sensing of two exceptional winter aerosol pollution events and representativeness of ground-based measurements. **A.Baron**, P.Chazette and J.Totems. *Atmospheric Chemistry and Physics*, DOI : 10.5194/acp-2019-464
- 2020 – Lidar ground-based and IASI spaceborne temperature sampling of the cold wave of February 2018 - Link to mesoscale modelling. **A.Baron**, P.Chazette and J.Totems. Soumis au *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*.
- 2020 – Trade-wind clouds and aerosols characterized by airborne horizontal lidar measurements during the EUREC<sup>4</sup>A field campaign. P.Chazette, J.Totems, **A.Baron**, C.Flamant and S.Bony. *Earth System Science Data*, DOI : 10.5194/essd-12-2919-2020
- 2020 – The lacustrine-water vapor isotope inventory experiment L-WAIVE. P.Chazette, C.Flamant, H.Sodemann, J.Totems, A.Monod, E.Dieudonné, **A.Baron**, A.Seidl, H.C. Steen-Larsen, P.Doira, A.Durand and S.Ravier. En discussion à *Atmospheric Chemistry and Physics*, DOI : 10.5194/acp-2020-1194

### Présentations lors de congrès et conférences :

- 2018 – Events of intense aerosol pollution over Paris Area during winter 2016-2017 observed by Raman lidar. **A.Baron**, P.Chazette and J.Totems. *EGU 2018 - Poster*, Abstract : Vol. 20, EGU2018-3433, 20
- 2019 – Ground-based lidar measurements within the framework of AEROCLO-SA, P.Chazette, C.Flamant, J.Totems, G.Smith, Gwendoline, **A.Baron**, X.Landsheere, K.Desboeufs, J.-F.Doussin and P.Formenti. *EGU 2019 - Poster*, Abstract : Vol. 21, EGU2019-5763, 2019
- 2019 – Calibration of a transportable vibrational and rotational Raman lidar using a meteorological probe aboard an ultra-light aircraft. J.Totems, P.Chazette and **A.Baron**. *EGU 2019 - Poster*, Abstract : Vol. 21, EGU2019-7893, 2019
- 2019 – The planetary boundary layer dynamics in the Etosha Pan region and its interaction with dust and biomass burning aerosols: highlights from the AEROCLO-sA field campaign. C.Flamant, J.-P.Chaboureau, J.Welton, M.Mallet, K.Schepanski, A.Chauvigné, M.Gaetani, P.Chazette, S.Lolli,

F.Waquet, **A.Baron**, M.D.Mallet, S.J.Piketh,L.Labbouz, and P.Formenti. *EGU 2019 - Oral*, Abstract : Vol. 21, EGU2019-5919, 2019

- 2019 – Cold wave of February 2018 above Europe observed by rotational Raman lidar. **A.Baron**, P.Chazette and J.Totems. *EGU 2019 - Oral*, Abstract : Vol. 21, EGU2019-4012, 2019
- 2020 – Relative humidity fields in the Annecy Alpine valley observed by Ro-Vibrational Raman lidar in the framework of L-WAIVE. **A.Baron**, P.Chazette and J.Totems. *EGU 2020 – Oral en ligne*, DOI : 10.5194/egusphere-egu2020-17672
- 2020 – The L-WAIVE campaign over the Annecy lake: An analysis of water vapor variability in complex terrain. P.Chazette, E.Dieudonné, A.Monod, H.Sodemann, J.Totems, **A.Baron**, C.Diana, P.Doira, A.Durand, F.Maignan, S.Ravier, A.Seidl, and C.Flamant. *EGU 2020 – Oral en ligne*, DOI : 10.5194/egusphere-egu2020-3665
- 2020 – Top-down lidar characterization of exceptional dust transport event above the Annecy lake during L-WAIVE in June 2019, J.Totems, P.Chazette and **A.Baron**. *EGU 2020 – Poster en ligne*, DOI : 10.5194/egusphere-egu2020-7637
- 2020 – Meteorological lidar- and IASI-derived vertical atmospheric profiles of temperature and water vapor. P.Chazette, J.Totems and **A.Baron**. *IASI conference 2020 – Abstract accepté pour un oral, conférence repoussée à 2021*
- 2020 – A new insight into the synergy between water vapor content and temperature given by Raman lidar observations. **A.Baron**, P.Chazette, C.Flamant, J.Totems, O.Caumont and N.Fourrié. *HyMeX workshop 2020 – Abstract accepté pour un oral, conférence repoussée à 2021*



**Titre :** Lidar Raman météorologique dédié à l'étude des cycles couplés des aérosols et de la vapeur d'eau

**Mots clés :** Lidar Raman, aérosols, température, cycle de l'eau, humidité relative, hygroscopicité

**Résumé :** Les cycles couplés des aérosols, de la vapeur d'eau et des nuages sont à l'heure actuelle un domaine de recherche dynamique au cœur d'enjeux climatiques et météorologiques. Une meilleure compréhension des interactions entre ces différents cycles atmosphériques doit permettre de mieux appréhender les processus conduisant à des événements météorologiques extrêmes et également de diminuer les incertitudes des projections climatiques, en grande partie liées aux interactions aérosols – nuages. Contribuant à ces efforts, les travaux présentés dans cette thèse sont fondés sur l'analyse d'observations expérimentales de terrain autour d'un instrument de télédétection émergent. Il s'agit d'un lidar Raman météorologique transportable capable de mesurer simultanément la température thermodynamique, le contenu en vapeur d'eau et les propriétés optiques des aérosols, dans la colonne atmosphérique. Cet instrument, développé au LSCE et nommé WALI, permet des observations continues dans la basse et moyenne troposphère avec une précision et des résolutions verticale et temporelle en adéquation avec les objectifs de ruptures énoncés par l'OMM. En premier lieu, le bilan de liaison de la chaîne d'acquisition de la température

basée sur la spectroscopie Raman rotationnelle, nouvellement implémentée sur le lidar, a été obtenue à l'aide d'une modélisation directe – inverse. Les premières mesures de température par lidar, conduites durant une période très contrastée en température marquée par l'occurrence d'une vague de froid, ont permis une comparaison avec les sorties de modèles de prévisions météorologiques à méso-échelle (AROME/Météo-France) et globale (ERA5/ECMWF) et l'instrument IASI embarqué sur les satellites de la série METOP. Lors d'une configuration météorologique hivernale analogue ayant induit des épisodes de pollution majeurs en Île-de-France, un suivi des propriétés optiques des aérosols a été effectué. Enfin, une campagne de mesure multi-instruments incluant un volet aéroporté a été conduite aux abords du lac d'Annecy, avec une stratégie originale couplant la télédétection et l'observation in situ. Elle a permis une analyse préliminaire du cycle de l'eau dans un environnement montagneux complexe, incluant les liens entre la vapeur d'eau atmosphérique, les nuages, les aérosols et le lac. Le lidar Raman météorologique s'avère être un outil idoine pour étudier ces processus.

**Title :** Meteorological Raman Lidar dedicated to the study of aerosols and water vapor coupled cycles

**Keywords :** Raman lidar, aerosols, temperature, water cycle, relative humidity, hygroscopicity

**Abstract :** The coupled cycles of aerosols, water vapor and clouds are currently a dynamic field of research at the heart of climate and weather challenges. A better understanding of the interactions between these atmospheric cycles should allow to perceive the processes leading to extreme weather events and to reduce the uncertainties of climate projections, largely related to aerosol-cloud interactions. In line with these efforts, the work presented in this thesis are based on the analysis of experimental field observations, around a new tool for remote sensing. It is a transportable meteorological Raman lidar capable of simultaneous measurements of the thermodynamic temperature, water vapor content and optical properties of aerosols in the atmosphere. This instrument, developed at LSCE and called WALI, allows continuous observations in the lower and middle troposphere with a precision, and vertical and temporal resolutions in line with the breakthrough requirements set by the WMO. Firstly, the link budget of the temperature acquisition channel based on rotational Raman spectroscopy, newly implemented on the lidar, has been

obtained using direct - inverse modeling. The first temperature measurements by lidar, carried out during a very contrasted period in terms of temperature marked by the occurrence of a cold spell, allowed a comparison with the outputs of mesoscale (AROME/Météo-France) and global (ERA5/ECMWF) weather prediction models and the IASI instrument onboard the METOP series satellites. During a similar winter meteorological configuration that induced major pollution events in Île-de-France, the optical properties of aerosols were monitored. Finally, a multi-instrument measurement campaign, involving aircrafts, was carried out on the shores of the Annecy lake, with an original strategy coupling remote sensing and in situ observations. They allowed preliminary analyses of the water cycle in a complex mountainous environment, including the links between atmospheric water vapor, clouds, aerosols and the lake. A meteorological Raman Lidar turns out to be a suitable tool to study these processes.