

**UNIVERSITE DE CONSTANTINE FACULTE DES SCIENCE DE  
L'INGENIEUR  
DEPARTEMENT D'ELECTRONIQUE**

**Résumé de soutenabilité de mémoire de magister en électronique**

**Présenter par : M<sup>er</sup> REBOUH SOFIANE**

**Diplôme préparer : Magister**

**Option : Dispositifs de l'électronique intégrée**

**Intitulé : Etude de la détection optique des composants  
atmosphérique**

La prévision des situations d'aérosols atmosphérique urbaine est une nécessité de notre société. En effet, ces situations, d'origine anthropique, sont d'années en années, passées d'un stade accidentel à un problème fréquent de santé publique. A défaut de pouvoir éliminer totalement ce problème, l'accent est mis sur la meilleure possibilité d'enrayer son développement rapidement. La connaissance de la dynamique de la basse atmosphère dans laquelle nous vivons en est alors l'un des meilleurs moyens. Même si les concentrations de nombreux polluants gazeux sont maintenant bien mesurées à l'aide de capteurs ponctuels ou de systèmes DOAS (Differential Optical Absorption Spectroscopy), il est important de disposer des cartographies en deux dimensions par méthode lidar (Light Detection and Ranging) de la concentration de ces polluants. Le lidar est un instrument qui nous donne la possibilité caractérisé la nature et la distribution des aérosols troposphériques afin d'introduire leurs effets, sur le bilan radiatif terrestre. Ce qui constitue un défi auquel est actuellement confrontée la recherche atmosphérique. Les aérosols, nuage et brume constituent une des principales sources d'erreur dans les prévisions du climat, par l'incertitude significative qu'ils introduisent dans l'évaluation du forçage radiatif. Ce fait résulte de la grande variabilité spatiale et temporelle de leur concentration et de leur composition,

car ils proviennent d'une grande variété de sources, présentent une large gamme de tailles de particule, et ont des durées de vie beaucoup plus courtes. Car ce système permet d'obtenir une

C'est dans ce cadre que s'inscrit cette étude en proposant une caractérisation fiable et précise des propriétés optiques et microphysiques d'aérosols et de nuages de phases thermodynamiques différentes à fin d'aboutir à mesurer la concentration d'aérosols et de particules nuageuses à l'aide de mesures de *LIDAR*.

Cette thèse s'articulera autour de trois chapitres.

Dans le premier chapitre nous allons introduire les différentes équations qui résument les propriétés dimensionnelles, morphologiques et physico-chimiques des particules nuageuses. La grande variabilité des propriétés microphysiques (forme, taille et phase) des particules nuageuses complexifiait grandement la modélisation des processus de diffusion et d'absorption de ces particules. Pour cela nous allons utiliser un modèle caractérisant des particules de nuage à phase thermodynamique mixte (*coated sphere*), on suppose, que ces particules de phase mixte se compose de deux couche (couche liquide couvre une couche solide ou l'inverse), afin d'étudier tout les phases thermodynamiques de nuage. Nous allons représenter le comportement optique des particules nuageuses en traçant les courbes d'efficacité d'extinction, absorption, le facteur d'asymétrie et l'albédo simple de diffusion, pour différentes longueurs d'onde utilisées dans la télédétection. Nous allons aussi utiliser la fonction de phase de diffusion pour déterminer les propriétés microphysiques des nuages. Cette fonction permet de distinguer la forme et phase thermodynamique de la particule. Dans le deuxième chapitre nous allons utiliser les principaux propriétés microphysiques et chimiques des aérosols mesurées par la campagne ESCOMPTE, car ces mesures sont essentiel pour la caractérisation des propriétés optiques des principaux types d'aérosols, nous allons tracer les variation des coefficients d'extinction, d'absorption, diffusion et rétrodiffusion en fonction de rayon des particules de chaque espèce chimique, qui nous ont permis de calculer les contributions à l'extinction, à l'absorption, à la diffusion et la contribution à rétrodiffusion, pour faire un diagnostic radiative de chaque espèce chimique.

Enfin dans le quatrième nous allons utiliser la méthode d'inversion de klett pour inverser les données lidar et obtenir les coefficients de rétrodiffusion, d'extinction et rapport coefficient d'extinction sur coefficients de rétrodiffusion mesurés en fonction de l'altitude. Nous allons utiliser les propriétés optiques des particules atmosphériques, et en particulier les efficacités d'extinction et de rétrodiffusion. Le choix d'une distribution dimensionnelle de taille

de type lognormale qui va nous permettre de calculer théoriquement les coefficients d'extinction et rétrodiffusion des particules qui constituent l'environnement d'une zone urbaine d'après le modèle de *Shettle et Fenn*. Afin de pouvoir obtenir l'évolution de la concentration d'aérosol en fonction d'altitude, d'un signal lidar (ultraviolet) relevé par la campagne ELO, et des informations microphysiques caractérisant les particules atmosphériques, issues de mesure lidar (infrarouge) lors d'un épisode de brume.

## Introduction générale

L'environnement et plus particulièrement la qualité de l'air est un des problèmes majeur rencontrés à l'heure actuelle dans les villes en terme de santé publique. Pour lutter plus efficacement contre la pollution atmosphérique il est important de mieux la quantifier. Même si les concentrations de nombreux polluants gazeux sont maintenant bien mesurées à l'aide de capteurs ponctuels ou de systèmes DOAS (Differential Optical Absorption Spectroscopy), il s'avère primordial de disposer de cartographies en deux dimensions par méthode lidar (Light Detection and Ranging) de la concentration de ces polluants mais aussi des aérosols atmosphériques qui jouent un rôle important dans le bilan radiatif terrestre.

Pour les aérosols et les nuages, les mesures de routine dans les réseaux standards, sont limitées aux mesures de masse de quelques catégories de taille. De nouveaux instruments tels que les compteurs optiques ou les analyseurs de mobilité différentielle électrique peuvent fournir des distributions de taille de 10 nm à plusieurs microns. Cependant, ils restent limités à des mesures ponctuelles au niveau du sol contrairement au lidar.

Les techniques lidar (LIght Detection And Ranging) de mesure des aérosols et nuages, qui utilisent une seule ou quelques longueurs d'onde, requièrent la connaissance *a priori* de l'indice de réfraction complexe et/ou de la forme de la distribution de taille (habituellement prise lognormale). En atmosphère urbaine, ces informations sont difficiles à obtenir à cause de la diversité des types d'aérosols et de distributions multimodales complexes.

C'est dans ce cadre que s'inscrit cette étude en proposant une caractérisation fiable et précise des propriétés optiques et microphysiques d'aérosols et de nuages de phases thermodynamiques différentes à fin d'aboutir à mesurer la concentration d'aérosols et de particules nuageuses à l'aide de mesures *de LIDAR*.

Cette thèse s'articulera autour de quatre chapitres :

Dans le premier chapitre nous allons introduire les différentes équations qui résument les propriétés dimensionnelles, morphologiques et physico-chimiques des particules nuageuses. La grande variabilité des propriétés microphysiques (forme, taille et phase) des particules nuageuses complexifiait grandement la modélisation des processus de diffusion et d'absorption de ces particules. Pour cela nous allons utiliser un model caractérisant des particules de nuage à phase thermodynamique mixte (*coated sphère*), on supposon, que ces particules de phase mixte se

compose de deux couche (couche liquide couvre une couche solide ou l'inverse), afin d'étudier toutes les phases thermodynamiques de nuage. Nous allons représenter le comportement optique des particules nuageuses en traçant les courbes d'efficacité d'extinction, d'absorption, le facteur d'asymétrie et l'albédo simple de diffusion, pour différentes longueurs d'onde utilisées dans la télédétection. Nous allons aussi utiliser la fonction de phase de diffusion pour déterminer les propriétés microphysiques des nuages. Cette fonction permet de distinguer la forme et la phase thermodynamique de la particule. Dans le deuxième chapitre nous allons utiliser les principaux propriétés microphysiques et chimiques des aérosols mesurées par la campagne ESCOMPTE, car ces mesures sont essentiel pour la caractérisation des propriétés optiques des principaux types d'aérosols, nous allons tracer les variation des coefficients d'extinction, d'absorption, de diffusion et rétrodiffusion en fonction de rayon des particules de chaque espèce chimique, qui nous ont permis de calculer les contributions à l'extinction , à l'absorption , à la diffusion et la contribution à rétrodiffusion, pour faire un diagnostique radiative de chaque espèce chimique.

Enfin dans le quatrième nous allons utiliser la méthode d'inversion de klett pour inverser les données lidar et obtenir les coefficients de rétrodiffusion, d'extinction et rapport coefficient d'extinction sur coefficients de rétrodiffusion mesures en fonction de l'altitude. Nous allons utiliser les propriétés optiques des particules atmosphériques, et en particulier les efficacités d'extinction et de rétrodiffusion. Le choix d'une distribution dimensionnelle de taille de type lognormale qui va nous permettre de calculer théoriquement les coefficients d'extinction et rétrodiffusion des particules qui constituent l'environnement d'une zone urbaine d'après le model de *Shettle et Fenn*. A fin de pouvoir obtenir l'évolution de la concentration d'aérosol en fonction d'altitude, d'un signal lidar (ultraviolet) relevé la campagne ELO, et des informations microphysiques caractérisant les particules atmosphérique, issues de mesure lidar (infrarouge) lors d'un épisode de brume.

## **Chapitre I : Caractérisation des Propriétés microphysiques et optiques des nuages et brumes**

*Les propriétés radiatives des nuages et brumes dépendent fortement de leurs propriétés microphysiques. Pour cela nous allons faire l'analyse des sensibilités des paramètres optiques aux variations de propriétés microphysiques des nuages en phase thermodynamique différente.*

*Il est donc nécessaire d'établir des méthodes de calcul capables de modéliser la diffusion et l'absorption de la lumière par des particules nuageuses présentant des phases thermodynamiques différentes, et de forme géométrique supposer sphérique (gouttelettes d'eau et particules de glace de forme sphériques). Nous allons utiliser un modèle géométrique (coated sphere) interprétant les particules en phase thermodynamique mixte. Les propriétés optiques des nuages dans les trois phases peuvent être calculées à l'aide de la théorie de Lorentz-Mie.*

Le lidar émet une onde électromagnétique, dans le domaine spectral optique pour des longueurs d'onde allant de l'ultraviolet ( $\sim 0.2\mu\text{m}$ ) à l'infrarouge ( $\sim 10\mu\text{m}$ ). Dans la suite, nous allons utiliser les mesures effectuées avec un lidar émettant un faisceau laser à une longueur d'onde égale à  $0.5\mu\text{m}$  qui sont exploitées pour les aérosols et  $3.7\mu\text{m}$  pour les brumes.

L'émission de cette impulsion lumineuse par une source laser est rétrodiffusée par les aérosols (molécules en suspension dans l'air) et les particules nuageuses. Ces interactions sont régies principalement par deux types de diffusion, la diffusion de Mie pour les particules (supposées comme des sphères homogènes) et la diffusion de Rayleigh pour les molécules.

Le signal analysé est caractérisé par son coefficient de rétrodiffusion  $\beta$  [ $\text{km}^{-1}.\text{sr}^{-1}$ ] mais aussi par son coefficient d'extinction  $\alpha$  [ $\text{km}^{-1}$ ] résultant de la somme des contributions dues à l'extinction et à l'absorption du faisceau lumineux.

A fin de calculer la concentration des particules et des aérosols en suspension dans l'air mesuré à l'aide du system lidar nous allons déterminé les caractéristiques microphysiques et optiques de ces éléments.

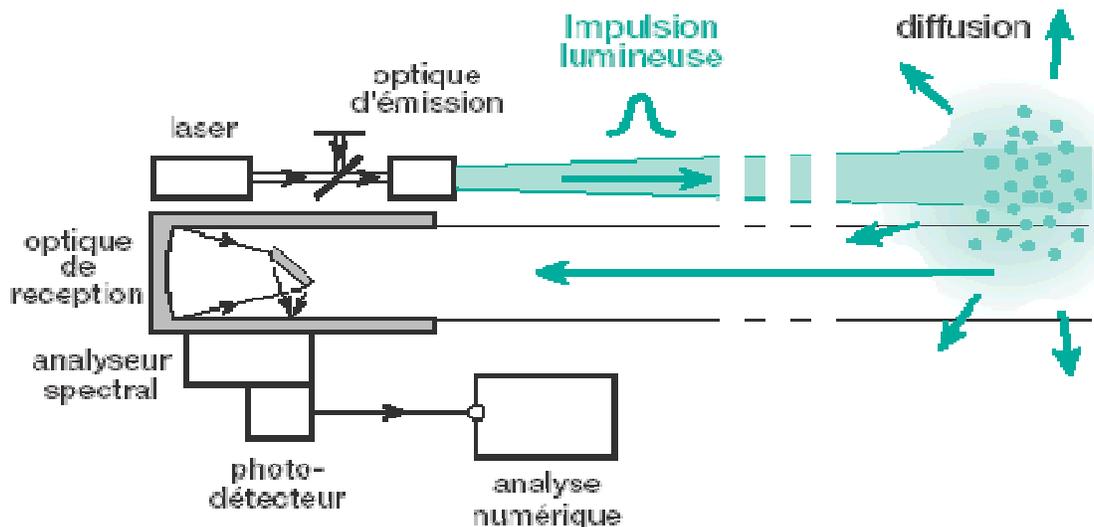


Schéma de fonctionnement du lidar simplifié.

## I-1. Paramètres microphysiques et optiques

### I-1.1. Propriétés microphysiques des particules nuageuses

Dans cette partie, nous introduisons les différentes équations qui résument les propriétés dimensionnelles, morphologiques et physico-chimiques des particules nuageuses. La plupart des propriétés radiatives des nuages peuvent être décrites à partir de quelques paramètres optiques pertinents. Ces paramètres dépendent, bien évidemment, de la composition microphysique des nuages caractérisée par une série de grandeurs physiques[1].

Les nuages sont constitués d'une population de particules de taille, de concentration, de répartition spatiale et même de composition variables. Les variabilités microphysiques d'un nuage chaud (constitué de gouttelettes d'eau de formes sphériques) peuvent être caractérisées par les modifications des distributions dimensionnelles en taille  $n(r)=n(r)=dN/dr$ , des gouttelettes.  $n(r)dr$  correspond alors à la concentration de particules dont les diamètres sont compris entre  $r$  et  $r+dr$ .

$$C_{tot} = N = \int_0^{\infty} n(D)dD = \int_0^{\infty} \frac{dN}{dD} dD \quad \text{I-1}$$

$C_{tot}$  ou  $N$  représente la concentration totale des particules et s'exprime généralement en nombre de particules par  $cm^3$ .

La quantité d'eau contenue dans une unité de volume de nuage ou teneur en eau liquide ( $LWC$ ) s'exprime par l'intermédiaire de la distribution dimensionnelle en volume  $dV/dr$  et de la masse volumique de l'eau  $\rho_w$  :

$$LWC = r_w = \frac{\rho}{6} \int_0^{\infty} D^3 n(D) dr = r_w \int_0^{\infty} \frac{dV}{dD} dD \quad \text{I-2}$$

Cette grandeur représente donc une masse de particules par unité de volume du nuage et s'exprime en gramme par  $m^3$ .

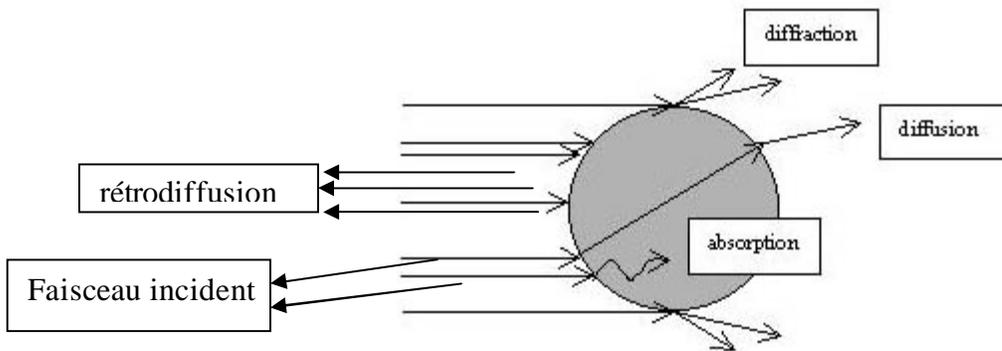
*Hansen et Travis [02]* ont défini un paramètre de la dimension d'un diamètre [ $\mu m$ ] comme étant le troisième moment de la distribution dimensionnelle en nombre divisé par le deuxième moment. Ce diamètre, appelé diamètre effectif ou diamètre efficace  $D_{eff}$  est significatif pour lier les propriétés microphysiques des nuages à leurs impacts radiatifs (propriétés optiques). Il correspond à un rayon moyen pondéré par la surface projetée,  $A$ , des particules.

$$D_{eff} = \frac{\int_0^{\infty} D^3 n(D) dD}{\int_0^{\infty} D^2 n(D) dD} \quad \text{I-3}$$

Le diamètre moyen  $D_m$  de la distribution est Le types de diamètres utilisés pour décrire les propriétés microphysiques des nuages et aérosols:

$$D_m = \frac{\int_0^{\infty} D n(D) dD}{\int_0^{\infty} n(D) dD} \quad \text{I-4}$$

### I-1.2. Caractérisation optique des particules (brumes, nuages)



**Figure I-1 :** diffusion, absorption et rétrodiffusion d'un faisceau lumineux incident par une particule unique.

Les expressions des différents paramètres optiques sont établis pour une particule dans l'annexe A. Dans cette section, nous nous limiterons à présenter les quantités qui seront estimées par la suite à partir de mesures directes ou indirectes. Les paramètres optiques doivent donc être appliqués à un cas

réaliste de nuage composé d'un ensemble de particules défini par une distribution dimensionnelle en taille. D'autre part, nous serons amenés par la suite à caractériser différents types de nuages pour plusieurs longueurs d'ondes  $\lambda$ . En effet, les mesures en télédétection sont basées sur les variations de certains paramètres optiques en fonction de la longueur d'onde et de l'indice complexe des particules, afin de restituer des paramètres microphysiques de grande importance dans les modèles climatiques globaux tel que le rayon médian.

Le paramètre définissant l'extinction provoquée par un ensemble de particules de tailles variables et de distribution dimensionnelle  $n(D)$ ,  $D$  représente le rayon d'une particule et s'exprime généralement en  $km^{-1}$  :

$$G_{ex}(I, m) = \int_0^{\infty} p D^2 Q_{ex}(D, I, m) n(D) dD \quad I-5$$

$Q_{ex}$  désigne l'efficacité d'extinction quantifiant l'atténuation de l'énergie incidente par une particule.

Dans le cas d'un nuage constitué de gouttelettes d'eau de grande taille ( $Q_{ex}$  tend alors vers 2), on peut démontrer facilement que le coefficient d'extinction dépend directement de certains paramètres microphysiques :

$$G_{ex} = \frac{3LWC}{2r_w R_{eff}} \quad I-6$$

D'autre part, l'extinction est aussi reliée à l'épaisseur optique du milieu  $\tau$ , grandeur sans dimension correspondant à l'intégrale du coefficient d'extinction sur une tranche d'atmosphère :

$$t(I, m) = \int_0^{\infty} G_{ex}(I, m, z) dz \quad I-7$$

Le coefficient de diffusion,  $\sigma_{sc}$ , et l'albédo de diffusion simple,  $\omega_{sc}$ , s'exprime alors de la façon suivante :

$$G_{ex}(I, m) = a_{ext}(I, m) = \int_0^{\infty} p D^2 Q_{sc}(D, I, m) n(D) dr \quad I-8$$

$$G_b(I, m) = b(I, m) = \int_0^{\infty} p D^2 Q_b(D, I, m) n(D) dD \quad I-9$$

$$w_{sc}(I, m) = \frac{G_{sc}(I, m)}{G_{ex}(I, m)} = \frac{G_{sc}(I, m)}{G_{sc}(I, m) + G_{ab}(I, m)} \quad \text{I-10}$$

où  $Q_{sc}$  correspond à l'efficacité de diffusion d'une particule de rayon  $R$  et d'indice de réfraction complexe  $m$ , irradié par un rayonnement de longueur d'onde  $\lambda$ .  $\sigma_{ab}$  désigne le coefficient d'absorption exprimé également en  $km^{-1}$ .

L'albédo de diffusion simple est particulièrement important pour la résolution du transfert radiatif puisqu'il représente la probabilité pour qu'un photon soit diffusé plutôt qu'absorbé lors de son interaction avec une particule à une longueur d'onde donnée.

La section efficace de diffusion totale  $C_{sc}$  pour une particule de rayon  $r$  est alors déterminée par :

$$C_{sc} = pD^2Q_{sc} \quad \text{I-11}$$

Un autre paramètre défini par l'intermédiaire de  $\sigma'$ , le facteur d'asymétrie  $g$ , peut être utilisé pour caractériser la diffusion par un ensemble de particules :

$$g = \frac{\int_0^J 2p \sin q F_{11}(q) \cos q dq}{kS_{sca}} = \frac{1}{2} \int_{-1}^1 P_{11}(m) m dm \quad \text{I-12}$$

$P_{11}$  : premier coefficient  $P_{11}$  de la matrice de diffusion, (annexe A)

$F_{11}$  : Fonction de phase non normalisée (annexe A)

$$m = \cos q$$

La valeur de  $g$  est comprise entre  $-1$  et  $1$  et permet de déterminer la quantité de lumière diffusée vers l'avant ou vers l'arrière. Pour une valeur positive de  $g$  la diffusion en direction de lumière incidente sera prépondérante alors que pour une valeur négative, elle sera principalement dirigée dans une direction opposée à la direction de la lumière incidente (rétro diffusion). Une valeur nulle de  $g$  indique une diffusion isotrope. Dans les modèles de climat l'influence des nuages sur les radiations incidentes est fortement tributaire du choix de la valeur du facteur d'asymétrie.

## I-2 Modèles directs de diffusion et d'absorption de la lumière

La composition microphysique des nuages dépend fortement de leur état thermodynamique. Les nuages en phase mixte et solide peuvent ainsi être constitués de gouttelettes d'eau liquide ou surfondue cohabitant avec des particules de glace. On suppose que les gouttelettes sont de forme sphérique.

Nous proposons d'introduire un modèle microphysique combinant gouttelettes d'eau sphériques et particules de glace de même forme orientées aléatoirement dans l'espace. Chaque nuage pourra ainsi être représenté par une composante en phase liquide (gouttelettes d'eau) et une composante en phase solide (particule de glace). Les propriétés optiques liées à chaque composante seront alors calculées à l'aide de la théorie de Lorentz-Mie pour des particules sphériques de rayons compris entre 0.5  $\mu\text{m}$  et 50  $\mu\text{m}$

- Calcul des paramètres optiques dans le cadre de la théorie de Lorentz-Mie

Le domaine d'applicabilité de la théorie de Lorentz-Mie est généralement défini par deux critères qui sont la forme de la particule et le facteur d'échelle entre sa taille et la longueur d'onde du rayonnement incident. Ce facteur est appelé le paramètre de taille  $X$ . Il est défini dans le cas général d'une particule de forme irrégulière par la relation suivante :

$$X = \frac{2\rho D_{eq}}{\lambda} \quad \text{I-13}$$

où  $\lambda$  désigne la longueur d'onde du rayonnement incident et  $D_{eq}$  le rayon de la sphère de surface projetée équivalente à celle de la particule. Cette théorie présente des solutions analytiques pour des paramètres de taille compris entre 1 et 100 et dans le cas des particules sphériques.

Ainsi, la détermination des principaux paramètres optiques caractérisant la diffusion de la lumière par une particule sphérique se révèle être particulièrement simplifiée par la géométrie du problème. En effet, l'onde électromagnétique sphérique engendrée par la diffusion d'une onde plane incidente par une sphère homogène peut être décrite à l'aide des relations (A.14) établies dans l'annexe A.

Dans un repère en coordonnées sphériques, les composantes du champ diffusé, à très grande distance  $R$  de la sphère et dans une direction d'angle  $(\theta, \varphi)$  par rapport à la direction incidente, peuvent s'écrire [03]:

$$\begin{aligned}
 E_q = H_j &= \frac{i}{kR} e^{-ikr+iwt} \cos j S_2(q) \\
 -E_j = H_q &= -\frac{i}{kR} e^{-ikr+iw} \sin j S_1(q)
 \end{aligned}
 \tag{I-14}$$

Dans ces relations, les mêmes notations ne sont utilisées que dans l'annexe A., et  $H$  qui désigne la composante magnétique du champ électromagnétique diffusé.

On peut démontrer dans ce cas, que les éléments  $S_1$  et  $S_2$  de la matrice d'amplitude ne dépendent que de l'angle de diffusion  $\theta$ , de l'indice de réfraction complexe  $m$  du diffuseur par rapport à son environnement et de son paramètre de taille  $X$ . Ils s'expriment par l'intermédiaire d'une somme des coefficients complexes de Mie,  $a_n$  et  $b_n$ , pondérés par les polynômes de Legendre associés,  $\pi_n$  et  $\tau_n$  :

$$\begin{aligned}
 S_1(q) &= \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} [a_n p_n(\cos q) + b_n t_n(\cos q)] \\
 S_2(q) &= \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} [b_n p_n(\cos q) + a_n t_n(\cos q)]
 \end{aligned}
 \tag{I-15}$$

$$\text{ou } \begin{cases} t_n(\cos q) = \frac{d}{dq} P_n^1(\cos q) \\ p_n(\cos q) = \frac{1}{\sin q} P_n^1(\cos q) \end{cases} \quad \text{et } P_n^1 \text{ un polynôme de Legendre}
 \tag{I-16}$$

$a_n$  et  $b_n$  sont les coefficients de Mie dans la phase homogène (liquide ou solide). Ils sont obtenus en regardant les conditions aux limites à la frontière de la particule:

$$\begin{cases} E_q^{diff} + E_q^{if} = E_q^{int} \\ E_f^{diff} + E_f^{if} = E_f^{int} \end{cases} \quad \text{et} \quad \begin{cases} H_q^{diff} + H_q^{if} = H_q^{int} \\ H_q^{diff} + H_q^{if} = H_q^{int} \end{cases}
 \tag{I-17}$$

Leur forme, est ici donnée [04]: auprès

$$\begin{cases} a_n = \frac{y_n'(mx) y_n(x) - m y_n(mx) y_n'(x)}{y_n'(mx) x_n(x) - y_n(mx) x_n'(x)} \\ b_n = \frac{m y_n'(mx) y_n(x) - y_n(mx) y_n'(x)}{m y_n'(mx) x_n(x) - y_n(mx) x_n'(x)} \end{cases}
 \tag{I-18}$$

Avec  $c$  paramètre de taille,  $m = n_2 + n_1$  indice de réfraction complexe et  $y$  et  $x$ , fonctions de Bessel du premier et deuxième type, obtenues en résolvant l'équation d'onde.

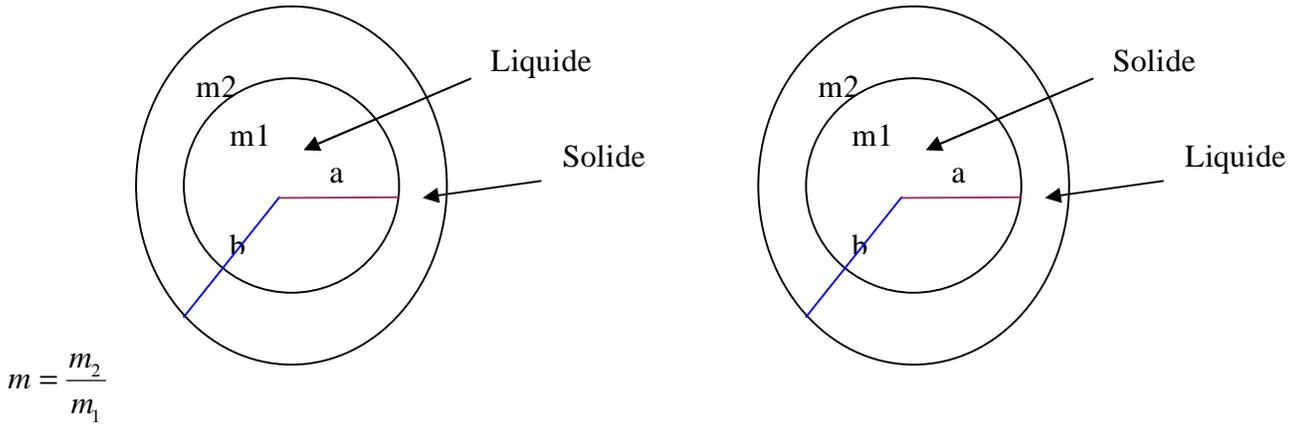
Les coefficients de Mie d'une sphère,  $a_n$  et  $b_n$  en phase mixte c'est à dire sphère composée de deux couche (coated sphère) [05]. La couche intérieure de la sphère à un rayon intérieur  $a$ , avec un

paramètre de taille  $X = \frac{2pa}{l}$ , son indice de réfraction intérieur est  $m_1$ .  $b$  est le rayon de la couche extérieure de la sphère avec un paramètre de taille  $Y = \frac{2pb}{l}$  et indice de réfraction  $m_2$ , figure (I-2), les deux coefficients de Mie  $a_n$  et  $b_n$  sont donnés par la forme suivante [06]:

$$a_n = \frac{(\tilde{D}_n / m_2 + n / y) y_n(y) - y_{n-1}(y)}{(D_n / m_2 + n / y) x_n(y) - x_{n-1}(y)} \quad b_n = \frac{(m_2 \tilde{G}_n + n / y) y_n(y) - y_{n-1}(y)}{(m_2 G_n + n / y) x_n(y) - x_{n-1}(y)} \quad \text{I-19}$$

$$\overline{D}_n = \frac{D_n(m_2 y) - A_n c_n(m_2 y) / y_n(m_2 y)}{1 - A_n c_n(m_2 y) / y_n(m_2 y)} \quad \overline{G}_n = \frac{D_n(m_2 y) - B_n c_n(m_2 y) / y_n(m_2 y)}{1 - B_n c_n(m_2 y) / y_n(m_2 y)} \quad \text{I-20}$$

$$A_n = y_n(m_2 x) \frac{m D_n(m_1 x) - D_2(m_2 x)}{m D_n(m_1 x) c_n(m_2 x) - c_n(m_2 x)} ; B_n = y_n(m_2 x) \frac{D_n(m_1 x) / m - D_n(m_2 x)}{D_n(m_1 x) c_n(m_2 x) / m - c_n(m_2 x)} ; \quad \text{I-21}$$



**Figure I-2** : Modèle de particule (coaed sphère)

Lorsque la lumière incidente est non polarisée, l'intensité diffusée est déterminée par l'équation (A.22) annexe A où le premier élément,  $P_{11}$ , de la matrice de diffusion est fonction du carré des amplitudes complexes  $S_1$  et  $S_2$ , tel que:

$$\frac{P_{11}(q)}{4p} = \frac{|S_1(q)|^2 + |S_2(q)|^2}{2k^2 C_{sc}} \quad \text{I-22}$$

### **I-3. Propriétés des fonctions de phase de diffusion des particules nuageuse :**

Nous avons mis en évidence, à partir de quelques tests de sensibilité sur la fonction de phase de diffusion, et le diagramme polaire de diffusion, les principales caractéristiques « signatures » optiques de nuages constitués exclusivement des particules de glace et de gouttelettes d'eau sphériques.

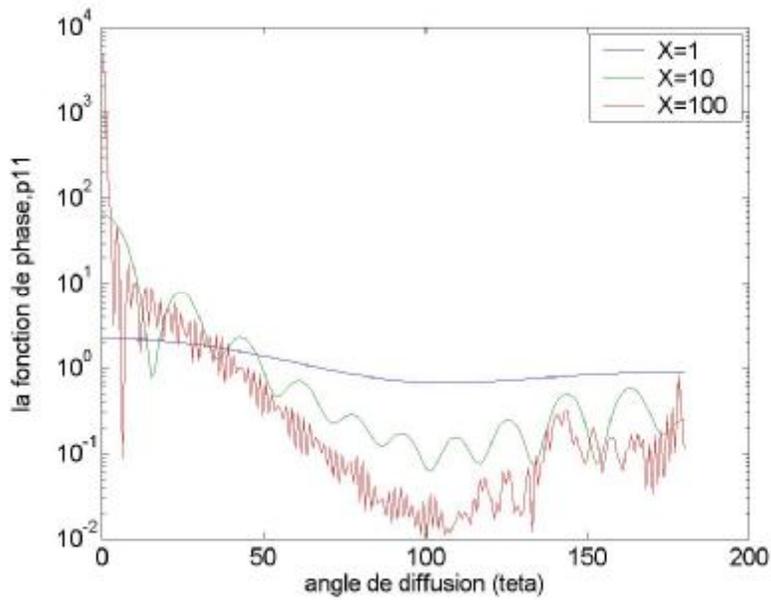
#### **I-3.1 Diffusion avant et arrière : information sur la taille des particules :**

Les différentes fonctions de phases et les diagrammes polaires de diffusion tracés ci dessous montrent également qu'une augmentation de la longueur d'onde provoque une diminution de la quantité d'énergie diffusée vers l'avant ( $0^\circ < \theta < 5^\circ$ ) dans les deux phases (liquide et solide). En effet, le pic dû à la diffraction de *Fraunhofer* a tendance à s'atténuer lorsque le paramètre de taille décroît.

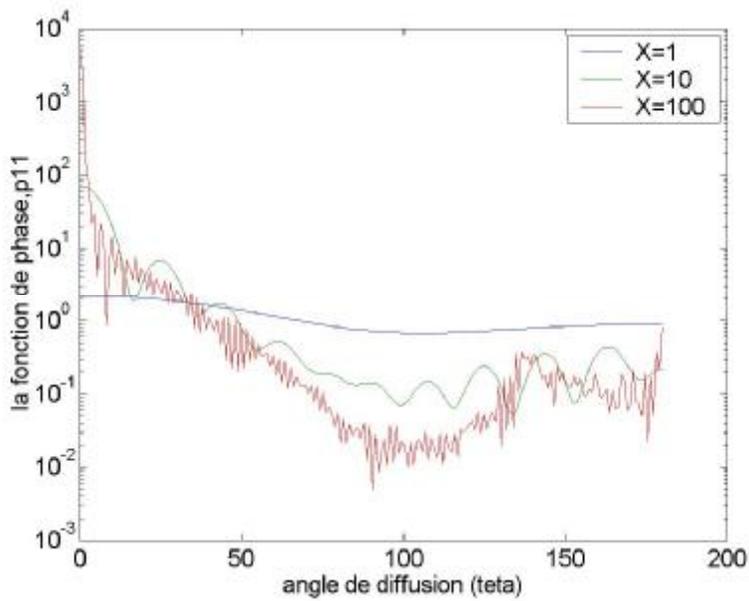
A l'inverse, lorsque la longueur d'onde augmente, la partie du diagramme polaire et de la fonction de phase correspondant à la diffusion latérale ( $65^\circ < \theta < 140^\circ$ ) augmente et le pic de diffusion arrière ( $\theta \sim 180^\circ$ ), appelée gloire ou anti-couronne, diminue. Dans ce cas là, les effets d'absorption, provoqués par l'augmentation de la partie imaginaire de l'indice de réfraction complexe des particules, sont les principaux responsables du comportement particulier de la fonction de phase.

Sachant que l'indice de réfraction imaginaire de glace est plus important que celles des gouttelette d'eau, signifie que les particules de glace absorbent d'avantage de lumière, surtout à  $\lambda = 3.7 \mu m$ . Néanmoins, la diminution du paramètre de taille joue également un rôle dans l'augmentation de l'énergie diffusée latéralement. En effet, puisque les fonctions de phase présentées sont normalisées et que la diffusion avant est moins importante pour les plus grandes longueurs d'ondes, une partie de l'énergie totale diffusée va l'être dans la zone de diffusion latérale et ce en vertu des lois de conservation de l'énergie.

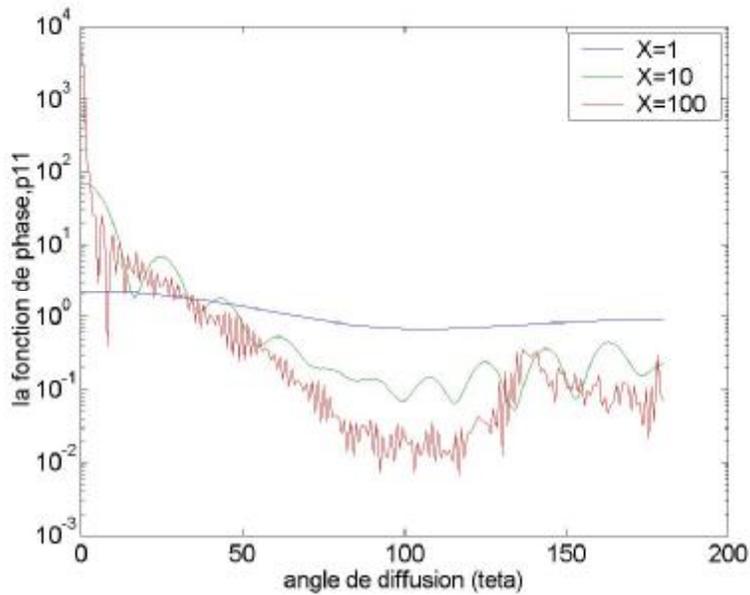
Ces constatations importantes indiquent qu'une grande partie de l'information concernant la taille des particules peut être extraite du comportement de la fonction de phase et les diagrammes polaires de diffusion pour des angles correspondant à la diffusion avant et dans une moindre mesure à la diffusion latérale. Cette assertion est en partie corroborée par les figures II-2 à II-13, où les fonctions de phase et les diagrammes polaires de diffusion sont données à des longueurs d'onde  $\lambda = 0.532 \mu m$ ,  $\lambda = 1.8 \mu m$  et  $\lambda = 3.7 \mu m$  pour des particules uniques pour les deux phases (liquide et solide) avec des paramètres de tailles différentes.



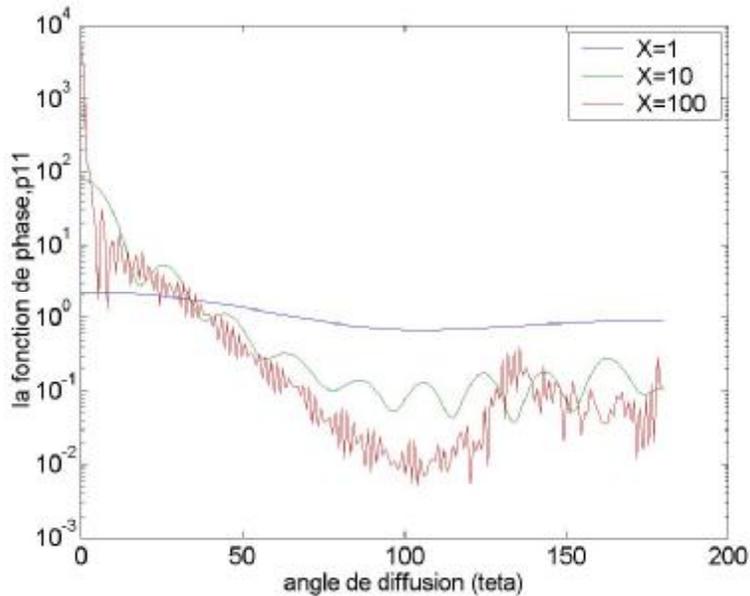
**Figure I-3** Fonctions de phase normalisées pour une particule de nuage d'eau sphérique unique de différentes tailles à une longueur d'onde  $\lambda = 0.532 \text{ nm}$



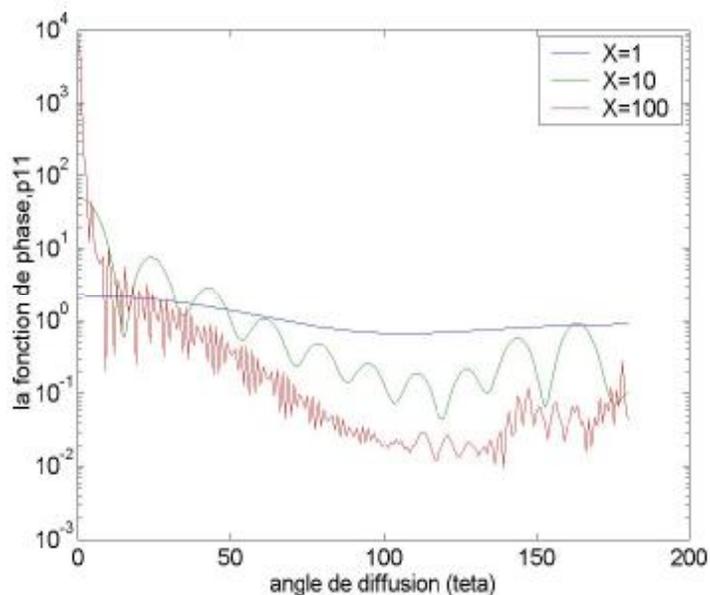
**Figure I-4** Fonctions de phase normalisées pour une particule de nuage de glace sphérique unique de différentes tailles à une longueur d'onde  $\lambda = 0.532 \text{ nm}$



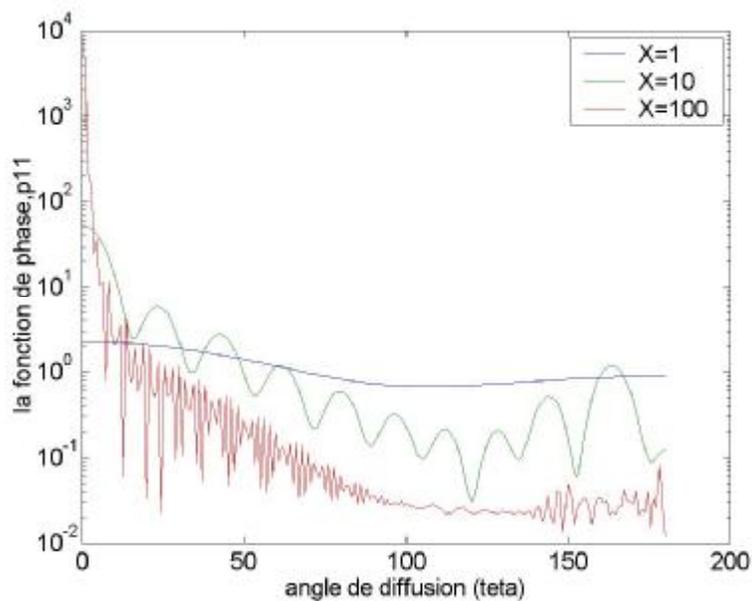
**Figure I-5** Fonctions de phase normalisées pour une particule de nuage d'eau sphérique unique de différentes tailles à une longueur d'onde  $\lambda = 1.8 \text{ mm}$



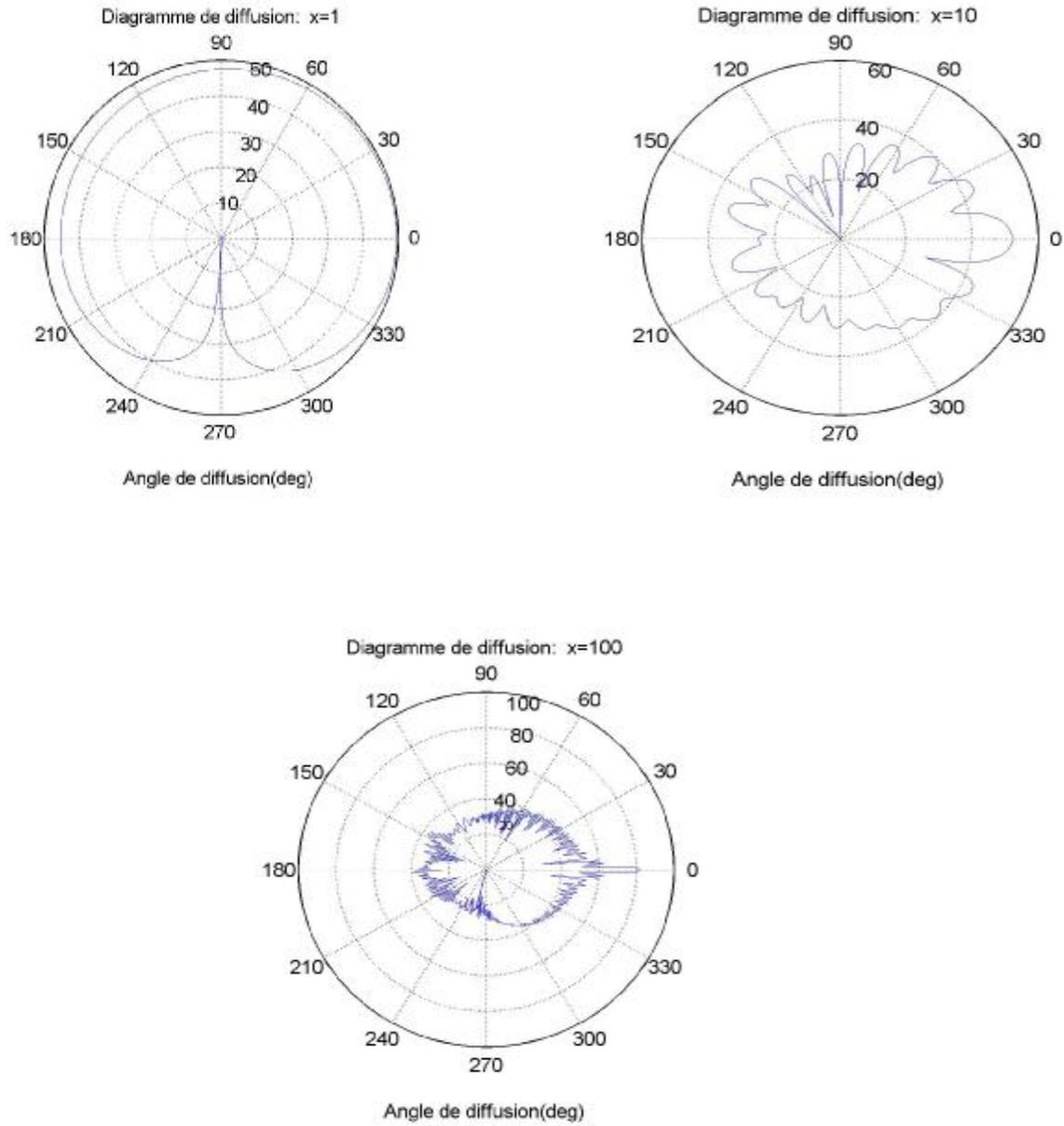
**Figure I-6** Fonctions de phase normalisées pour une particule de nuage de glace sphérique unique de différentes tailles à une longueur d'onde  $\lambda = 1.8 \text{ mm}$



**Figure I-7** Fonctions de phase normalisées pour une particule de nuage d'eau sphérique unique de différentes tailles à une longueur d'onde  $\lambda = 3.7 \text{ mm}$



**Figure I-8** Fonctions de phase normalisées pour une particule de nuage de glace sphérique unique de différentes tailles à une longueur d'onde  $\lambda = 3.7 \text{ mm}$



**Figure I-9 :** Diagramme de diffusion pour une particule sphérique d'eau de différentes tailles à une longueur d'onde  $\lambda = 3.7 \mu\text{m}$

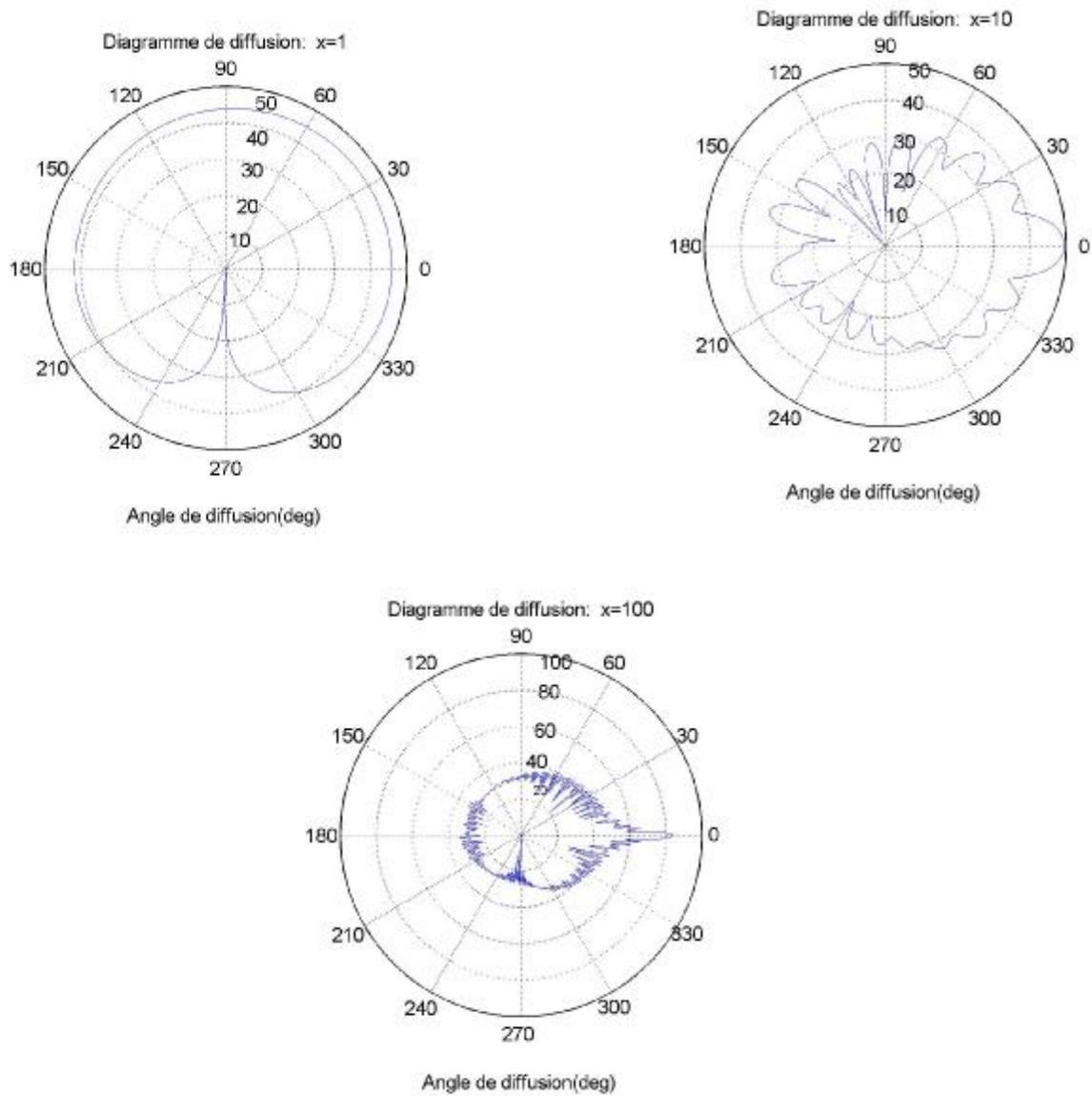
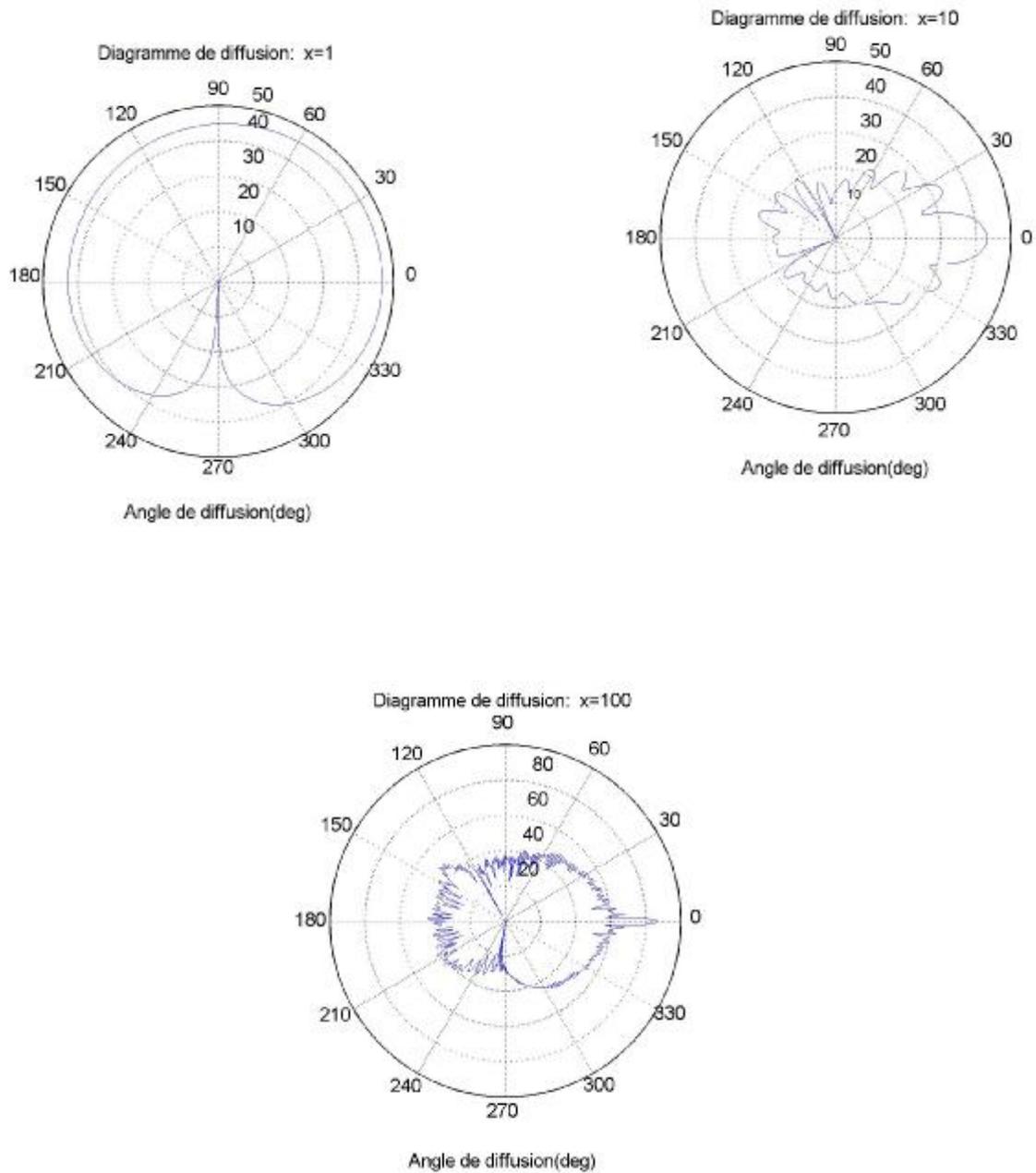
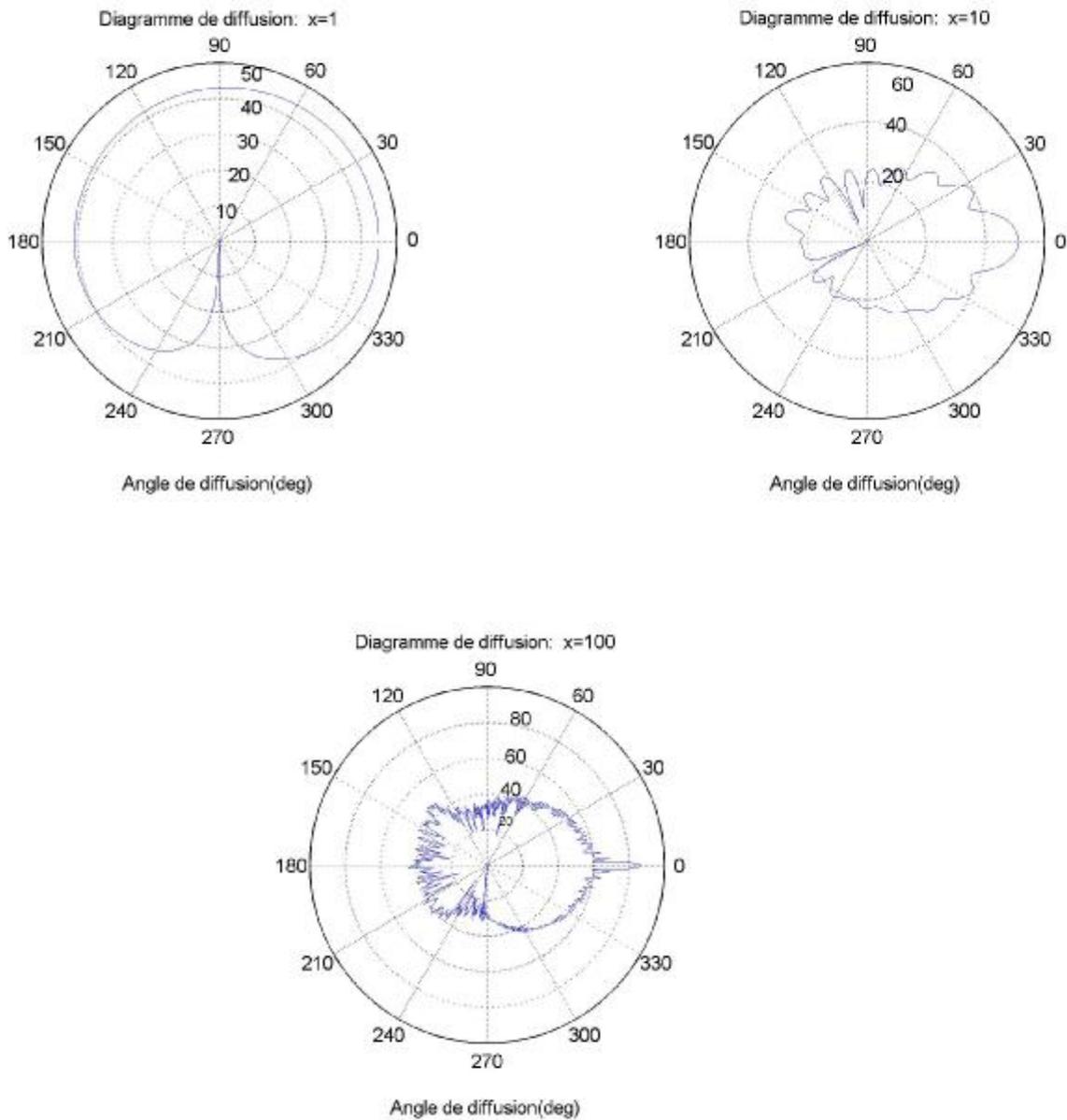


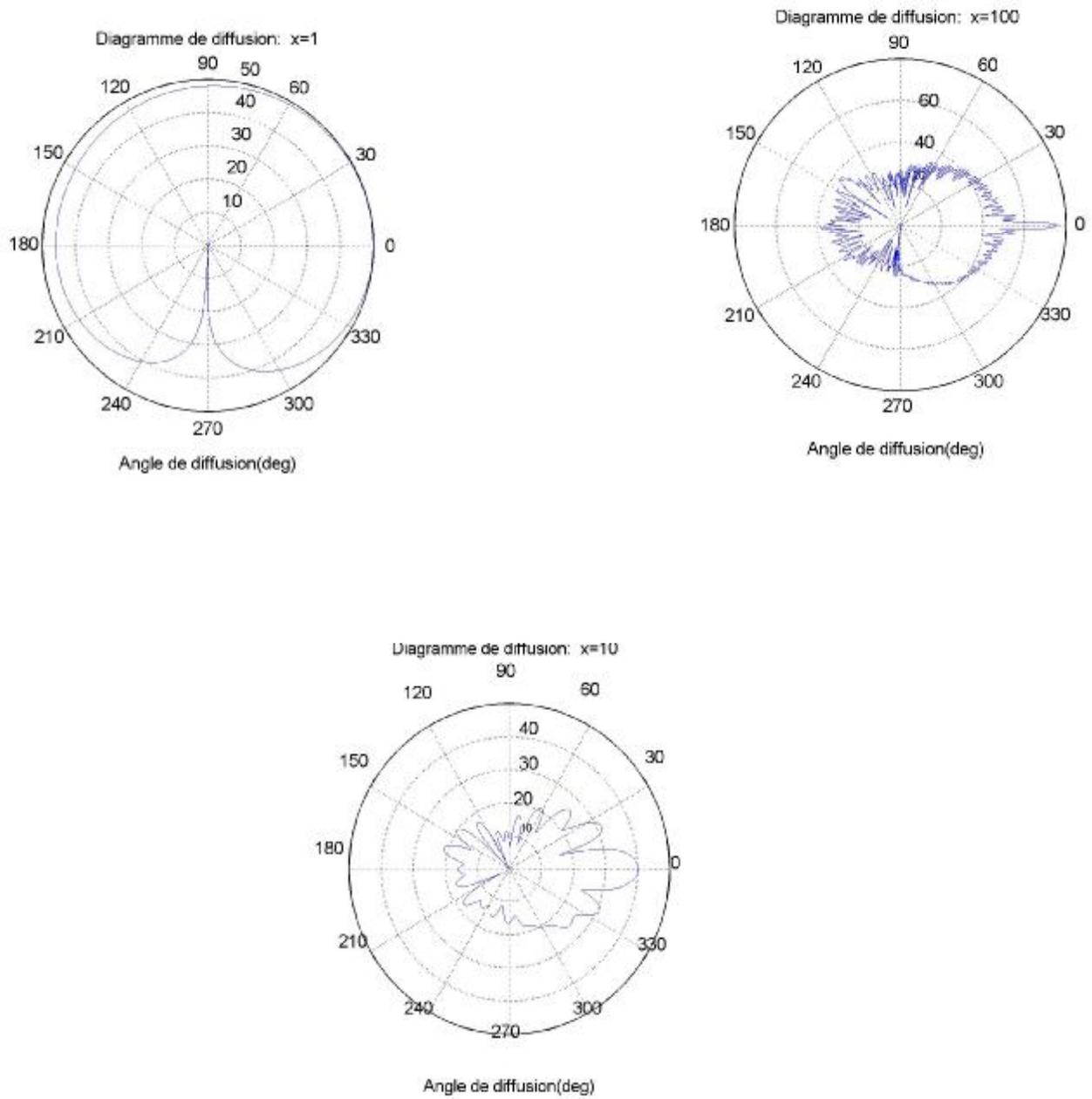
Figure I-10 : diagramme de diffusion pour une particule sphérique de glace de différentes tailles à une longueur d'onde  $\lambda = 3.7 \text{ mm}$



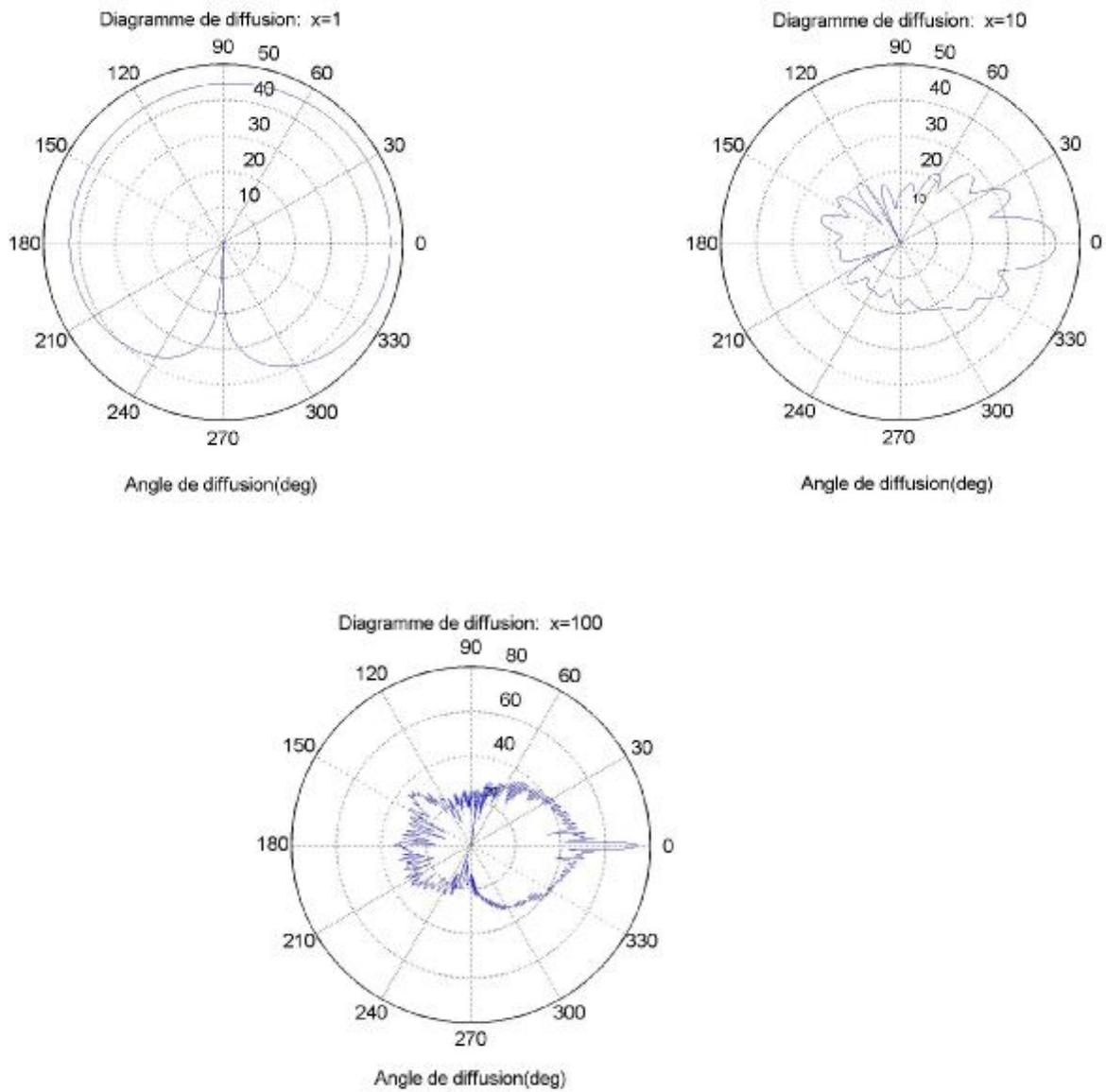
**Figure I-11** : diagramme de diffusion pour une particule sphérique d'eau de différentes tailles à une longueur d'onde  $\lambda = 1.8 \mu m$



**Figure I-12** : diagramme de diffusion pour une particule sphérique de glace de différentes tailles à une longueur d'onde  $\lambda = 1.8 \text{ mm}$



**Figure I-13** : diagramme de diffusion pour une particule sphérique d'eau de différentes tailles à une longueur d'onde  $\lambda = 0.532 \mu m$



**Figure I-14** : diagramme de diffusion pour une particule sphérique de glace de différentes tailles à une longueur d'onde  $\lambda = 0.532 \text{ } \mu\text{m}$

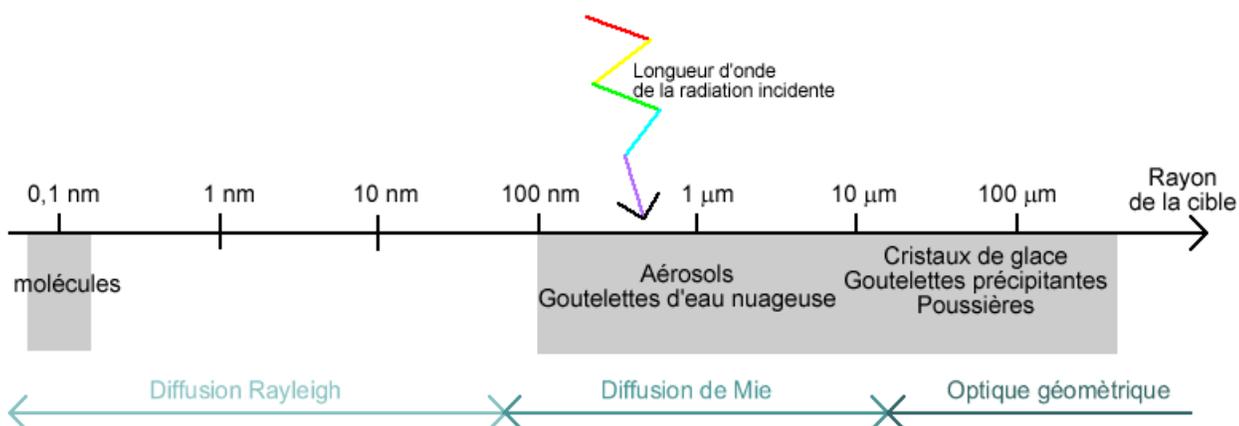
### I-3.2 Approximation de Rayleigh : limite inférieure du domaine de diffusion de Mie [01]

Les oscillations des fonctions de phase et diagramme polaire de diffusion dans le cas d'une particule unique, observées sur la figure II-3 à II-14, sont provoquées par les propriétés des fonctions de Riccati-Bessel. Ces fonctions permettent de calculer les coefficients de Mie  $a_n$  et  $b_n$  (Eq. I-15). Les oscillations ont tendance à disparaître lorsque l'on calcule une fonction de phase pour un ensemble de particules mais aussi quand le paramètre de taille devient petit.

En effet, pour  $X=1$ , la théorie de Mie se simplifie et s'approche d'une loi ne dépendant plus de  $a_n$  et  $b_n$ . Dans le cas d'une lumière incidente non polarisée, la section efficace de diffusion volumique s'exprime alors par la théorie de Rayleigh et présente un comportement quasi-isotrope :

$$s(q) = \frac{X^6}{2k^2} \left| \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right|^2 (1 + \cos^2 q) \quad \text{I-23}$$

Dans cette section, nous venons de décrire qualitativement certaines caractéristiques microphysiques qu'il est possible d'estimer à partir de la détermination de la fonction de phase normalisée de particules sphériques dans un nuage en phase thermodynamique différente. Nous allons maintenant étudier les propriétés des principaux paramètres optiques intégrés caractérisant la diffusion, l'absorption et l'extinction.



**Figure I-15 :** Domaine de diffusion de rayonnement solaire en fonction de diamètre des particules ( $\lambda = 532 \text{ nm}$ )

#### I-4. Calculs des propriétés des paramètres optiques caractérisant les gouttelettes d'eau de nuages

Les fonctions d'amplitude complexes  $S_1$  et  $S_2$  permettent de calculer les efficacités d'extinction et de diffusion,  $Q_{ex}$  et  $Q_{sc}$  (définies par les équations A.26) en fonction du paramètre de taille  $X$  de la sphère, sous forme d'une somme des coefficients de Mie[05]:

$$\sigma_i = C_i, \text{ ou } i = sc, ex$$

$$Q_{sc} = \frac{S_{sca}}{pr^2} = \frac{1}{X^2} \int_0^p \left[ |S_1(q)|^2 + |S_2(q)|^2 \right] \sin q dq = \frac{2}{X^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \left[ |a_n|^2 + |b_n|^2 \right] \quad \text{I-24}$$

$$Q_{ex} = \frac{S_{ex}}{pr^2} = \frac{4}{X^2} \Re[S(0^\circ)] = \frac{2}{X^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \Re(a_n + b_n) \quad \text{I-25}$$

avec  $S(0^\circ) = S_1(0^\circ) = S_2(0^\circ)$ , ce qui signifie que l'efficacité d'extinction ne dépend pas de l'état de polarisation de l'onde incidente.  $r$  désigne le rayon de la particule sphérique (ici,  $r_{eq} = r$ ).

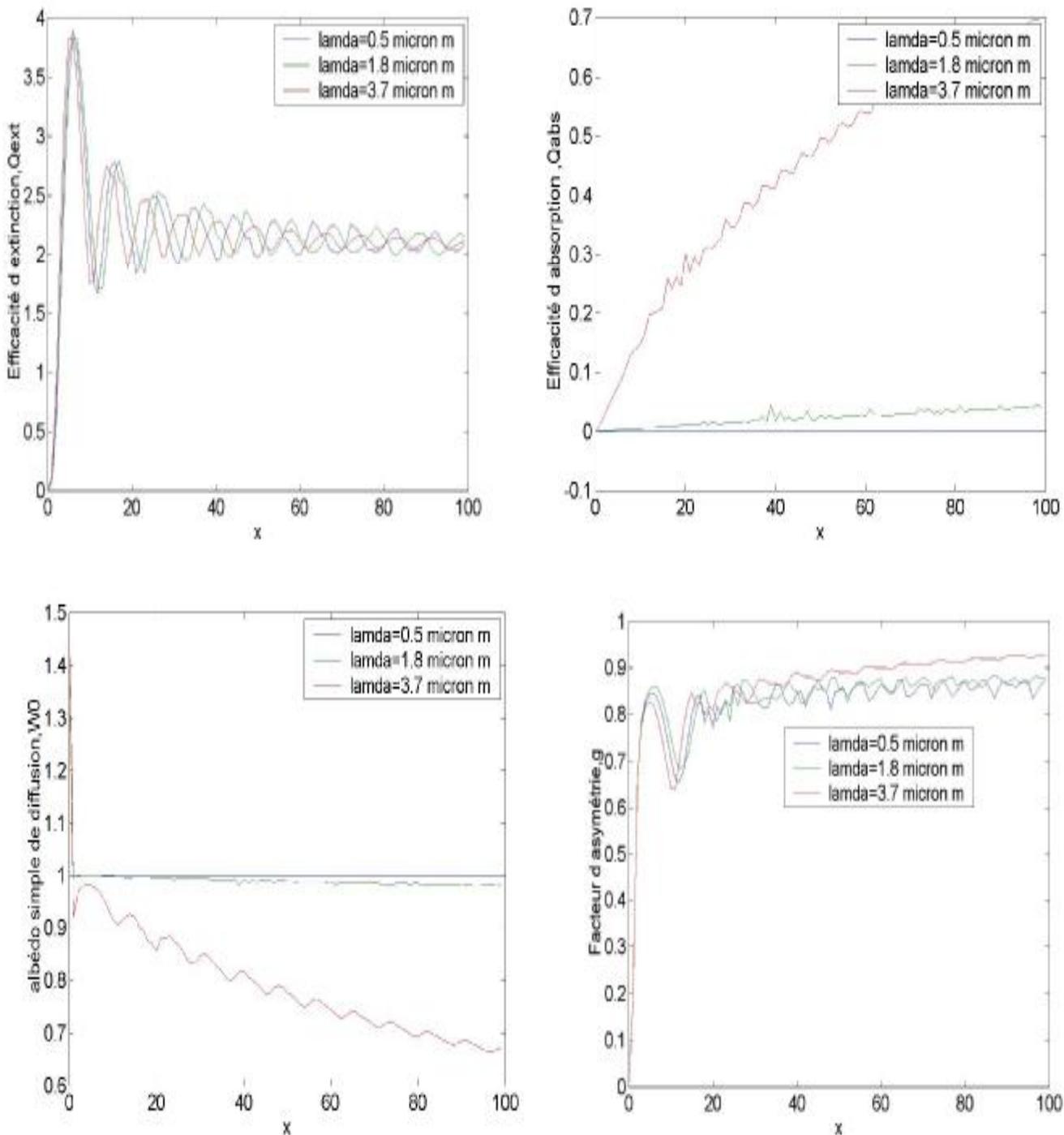
L'albédo de diffusion simple,  $w_{sc}$ , et le facteur d'asymétrie,  $g$ , peuvent s'écrire, à partir des deux relations ci-dessus, sous la forme:

$$w = \frac{Q_{sc}}{Q_{ex}} = \frac{\sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \left[ |a_n|^2 + |b_n|^2 \right]}{\sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \Re(a_n + b_n)}, \quad \text{I-26}$$

$$g = \frac{1}{X^2 Q_{sc}} \int_0^p \left[ |S_1(q)|^2 + |S_2(q)|^2 \right] \cos q \sin q dq = \frac{4}{X^2 Q_{sc}} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{n(n+2)}{n+1} \Re(a_n \bar{a}_{n+1} + b_n \bar{b}_{n+1}) + \frac{4}{X^2 Q_{sc}} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \Re(a_n \bar{b}_n) \quad \text{I-27}$$

Nous avons tracés les variations des efficacités d'extinction, d'absorption, l'albédo de diffusion simple et le facteur d'asymétrie en fonction du paramètre de taille, *Figure II-16*) pour trois longueurs d'onde utilisé dans la télédétection, dans le cas d'une particule unique.

L'efficacité d'extinction est caractérisée par une série d'oscillations qui converge vers une valeur limite de 2 pour des particules de grandes tailles, quel que soit l'indice de réfraction complexe de la particule. La particule intercepte alors deux fois plus de lumière qu'il n'en arrive sur sa section géométrique. La diffraction de la lumière sur les bords de la particule contribue, en effet, pour moitié à l'extinction totale. Les oscillations résultent, quant à elles, de phénomènes d'interférences entre les rayons transmis sans déviation à travers la particule et les rayons diffractés.



**Figure I-16** Variations des paramètres optiques d'une gouttelette d'eau en fonction du paramètre de taille pour trois longueurs d'ondes utilisées en télédétection (0.5, 1.8 et 3.7  $\mu\text{m}$ )

En revanche, l'efficacité d'absorption de la particule augmente avec le paramètre de taille selon une loi puissance. D'autre part, l'absorption, négligeable à  $\lambda = 0.8 \mu\text{m}$ , devient significative lorsque la

partie imaginaire de l'indice complexe de réfraction augmente. A  $\lambda=3.7 \mu\text{m}$  et pour de grosses gouttelettes d'eau, la particule absorbe une partie importante du rayonnement arrivant sur sa section géométrique.

Les variations de l'albédo de diffusion simple résument en partie les phénomènes constatés par l'étude du comportement des efficacités d'extinction et d'absorption. Dans le visible, la diffusion est presque conservative ( $\omega_{sc}\sim 1$ ) quel que soit le paramètre de taille considéré. Dans le proche infra rouge, où l'absorption devient significative, l'albédo devient très sensible aux diamètres des particules.

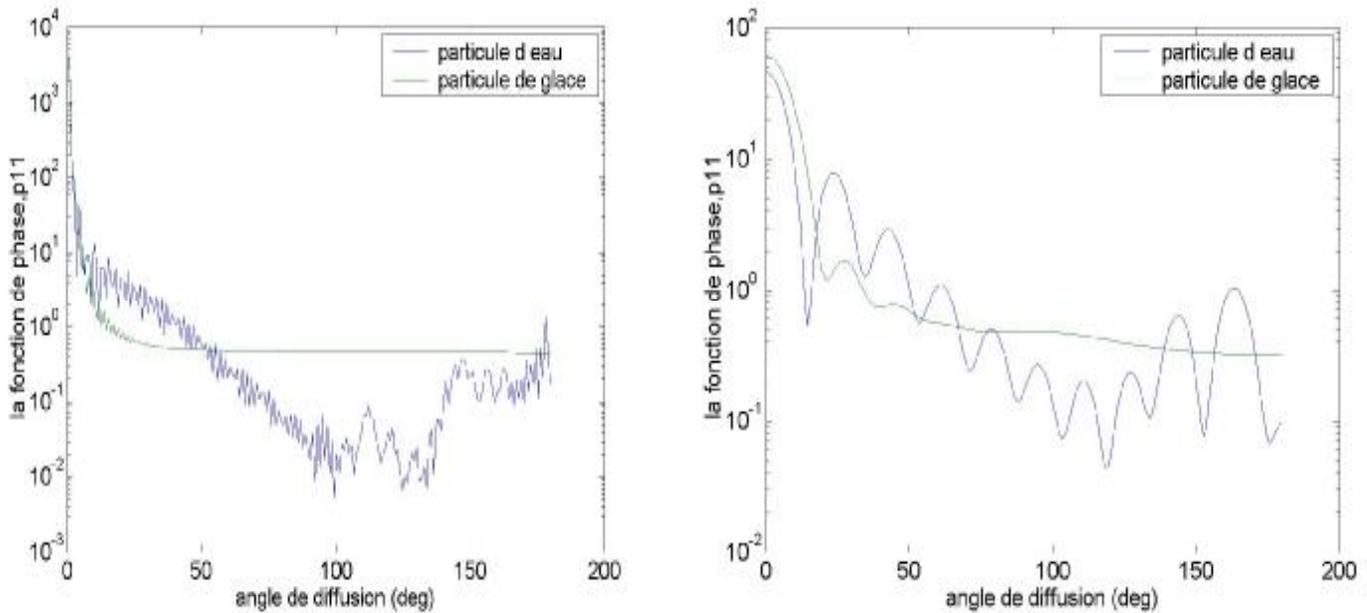
Enfin, le facteur d'asymétrie reste à peu près constant et tend vers une valeur proche de 0.88 pour de grandes valeurs de  $X$  dans le visible. Pour des longueurs d'ondes plus absorbantes et à partir d'un paramètre de taille élevé, l'absorption augmente drastiquement. La partie diffusée par la particule se trouve alors concentrée dans le domaine de diffusion avant car les effets de diffraction prédominent. Ces phénomènes conduisent à une valeur très élevée proche de 0.92 pour une longueur d'onde de  $3.7 \mu\text{m}$ . En revanche, pour un rayon typique de gouttelettes d'eau de  $6 \mu\text{m}$ , le facteur d'asymétrie sera respectivement de l'ordre de 0.85, 0.83 et 0.70 pour des longueurs d'onde de 0.8, 1.6 et  $3.7 \mu\text{m}$ .

## **I-4 Reconnaissance de phase et de forme d'une particule nuageuse**

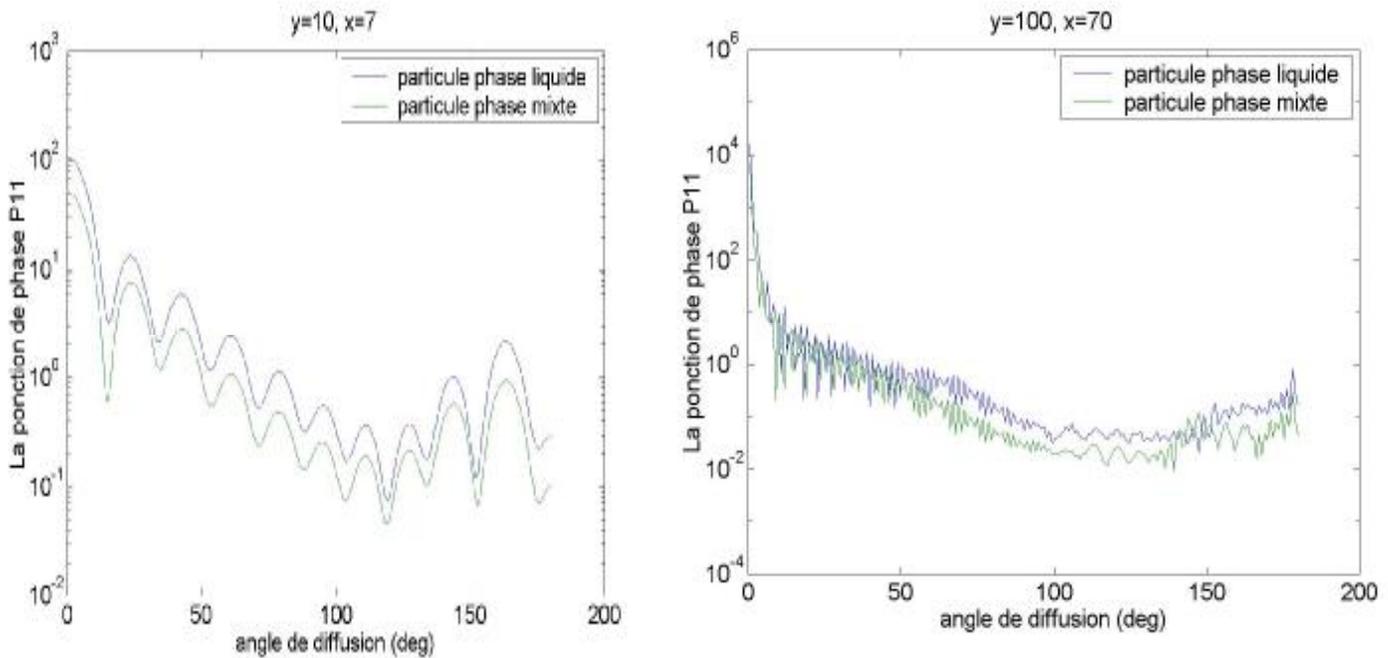
### **I-4-1 Reconnaissance de phase**

L'exploitation des différences entre les fonctions de phase de gouttelettes d'eau et de particules de glace ou mixte pour une longueur d'onde (ici,  $\lambda=3.7 \mu\text{m}$ ) permet de proposer une méthode de reconnaissance de phase très simple.

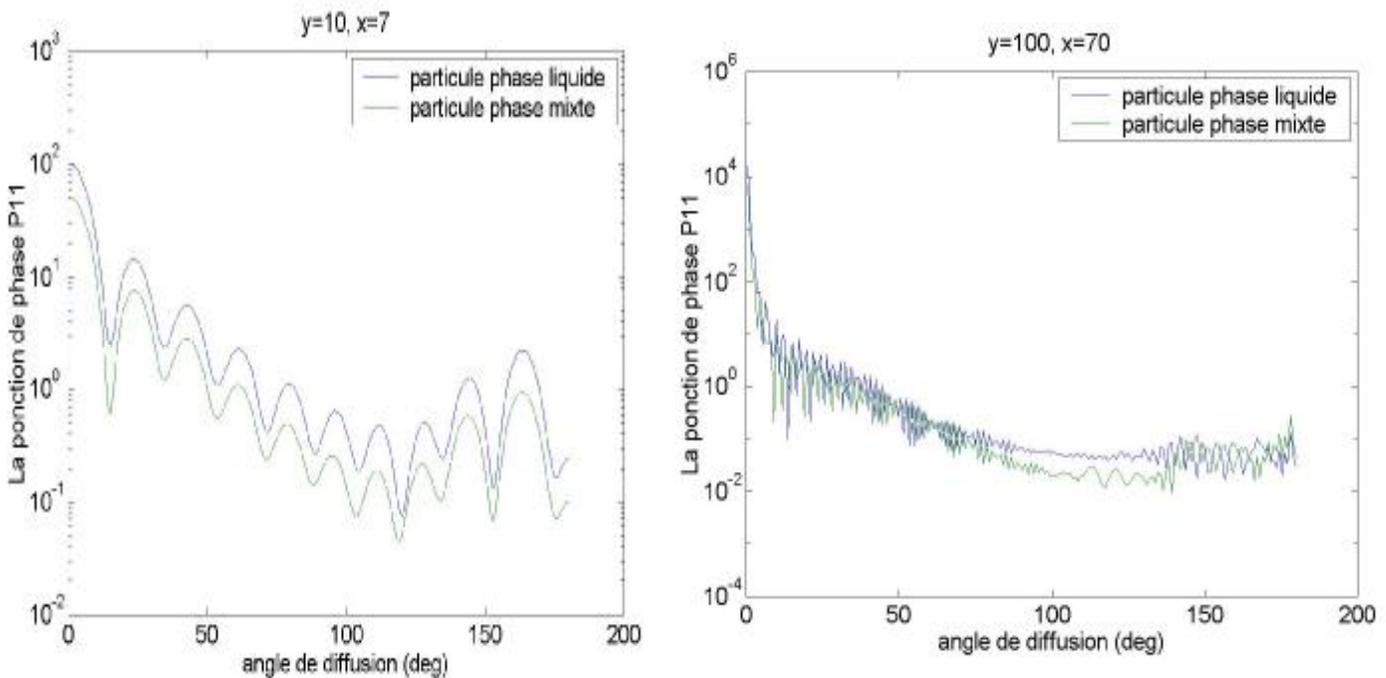
Les figures que nous avons obtenues I-17 à I-19 exposent les fonctions de phase normalisées d'une distribution de gouttelettes d'eau, d'une particule de glace et des particules en phase mixtes (l'eau entour la glace et la glace qui entour l'eau), *Figure (I-2)*. Ces particules ont la même forme et le même paramètre de taille moyenne.



**Figure I-17 :** Fonctions de phase normalisées calculées à partir de gouttelettes d'eau de paramètre et particule de glace, de taille moyenne égal à 10 et 100 à une longueur d'onde  $\lambda = 3.7 \text{ mm}$



**Figure I-18 :** Fonctions de phase normalisées de gouttelettes d'eau et de particules en phase mixte (l'eau enduit le sphère de glace), avec un paramètre de taille moyenne égale 10 et 100 p une longueur d'onde  $\lambda = 3.7 \text{ mm}$



**Figure I-19 :** Fonctions de phase normalisées calculées de gouttelettes d'eau de paramètre et particule phase mixte (la partie solide enduit le sphère de d'eau), avec un paramètre taille moyenne égale 10 et 100 à une longueur d'onde  $\lambda = 3.7 \text{ mm}$

Les Figures I-18 et I-19 montrent que les particules d'eau diffusent plus de lumière presque dans tout l'intervalle que les particules de phase mixte cela est due à la différence qui existe entre l'indice de réfraction, l'eau et les particules phases thermodynamiques mixtes.

Concernant la figure I-17, on constate que les gouttelettes d'eau sphériques diffusent plus de lumière dans l'intervalle angulaire  $[10^\circ, 55^\circ]$  que les particules de glace. Néanmoins cet intervalle n'est valable que lorsque la taille des particules de glace est proche de celle des gouttelettes d'eau. Dans notre cas elles sont la même forme. La limite basse de l'intervalle étant en effet très discutable, il est plus prudent de considérer que les gouttelettes d'eau diffusent généralement plus de lumière que les particules de glace dans un domaine d'angles compris entre  $20^\circ$  et  $60^\circ$ .

La figure I-17 montre également que l'énergie diffusée dans la région latérale  $[65^\circ, 135^\circ]$  en présence de particules de glace est sensiblement plus élevée que celle relative aux gouttelettes d'eau. Cette zone angulaire est liée aux phénomènes de réfraction et dépend donc principalement de la forme et de l'indice de réfraction des particules

### **I-4-2. Sensibilité à la taille des particules**

Nous avons étudié la variation de la fonction de phase pour différentes tailles de particules (1, 10 et 100), afin d'étudier les variations de la fonction de phase à une modification de la taille des particules. La sensibilité de cette fonction de phase est particulièrement marquée pour une gamme d'angles inférieurs à  $10^\circ$  et devient très importante pour de grandes particules. Ceci est la conséquence des phénomènes de diffraction prépondérants dans le domaine de diffusion avant pour les particules de grande taille.

La diffusion latérale,  $80^\circ < \theta < 120^\circ$ , s'avère être elle aussi sensible aux effets de tailles. Enfin, la diffusion arrière et en particulier le pic de rétro diffusion apporte une information non négligeable sur la dimension des particules.

### **Conclusion**

Dans ce chapitre, nous avons vu que la grande variabilité des propriétés microphysiques (forme, taille et phase) des particules nuageuses complexifiait grandement la modélisation des processus de diffusion et d'absorption dans les nuages de glace et en phase mixte. Afin d'étudier tout les phases de nuage un modèle de nuage à phase mixte a été développé (*coated sphere*). Les propriétés optiques peuvent ainsi être calculées sur un grand domaine de taille, à partir de la théorie de Mie pour les particules sphériques.

Nous verrons dans le deuxième chapitre le calcul des propriétés optiques de chaque espèce chimique d'aérosol pour pouvoir calculer l'impacte radiatif ou la concentration d'aérosols.

# Chapitre II : Caractérisation des propriétés optiques d'aérosols

*Après avoir rappelé les notions fondamentales des aérosols, nous présentons dans le détail les propriétés essentielles des aérosols qui nous intéressent lors de ce travail.*

*Nous allons présenter la composition chimique et la distribution en taille des aérosols atmosphérique. Ces propriétés microphysiques sont cruciales car elles déterminent, la manière dont le rayonnement du système LIDAR (chapitre III) va interagir avec une population de particules.*

*Nous avons utilisé les mesures in situ et ESCOMPTE [07] afin de déterminer les propriétés optiques de l'aérosol ( $G_{ext}$ ,  $G_{sc}$ ,  $G_{abs}$ ,  $G_b$ ) et ( $w_0$ ,  $g$ ), à 0% d'humidité et à humidité ambiante. Toutes ces propriétés et en particulier  $G_{ext}$  et  $G_b$  sont utilisées pour mesurer la concentration d'aérosols et de particules à l'aide de mesures LIDAR.*

## II.1 Propriété chimique de l'aérosol:

Les sources d'aérosols sont diverses et produisent des particules présentant des composants chimiques et des caractéristiques de taille variées les particules atmosphériques se composent généralement de plusieurs espèces chimiques produites soit naturellement (comme les sels marins ou les poussières minérales), soit issues des activités anthropiques (sulfate d'ammonium, nitrates, carbone organique et particules de suie).

### II.1.a. L'aérosol cristallin (D) :

L'aérosol d'origine terrigène est généré par l'érosion éolienne des sols. Lorsque le vent dépasse la vitesse de trois mètres par seconde, les composés cristallins sont soulevés du sol. L'émission de l'aérosol minéral est fortement liée au type ainsi qu'à la rugosité du sol. Les régions sources sont principalement les déserts de l'hémisphère Nord (Sahara) mais aussi les régions sèches où la végétation a été réduite par les activités humaines. Ces poussières minérales « anthropiques » constituent 50 % de la concentration atmosphérique globale. Tout au long de l'année, les poussières désertiques provenant du continent africain sont transportées au-dessus de l'atlantique Nord [08].

L'estimation de la concentration en poussières est complexe à évaluer et dépend des différents épisodes climatiques. Le plus souvent, la distribution granulométrique des poussières minérales est caractérisée avec un mode submicronique (accumulation) et par un mode croisé [09].

### II.1.b les sels marins (SS) :

Ils représentent une composante totalement naturelle des aérosols troposphériques. L'aérosol marin est produit principalement par l'éclatement des bulles d'air produites par l'action du vent en surface [10]. Sous l'action des vagues déferlantes, deux sortes de gouttelettes sont projetées dans l'atmosphère : les gouttes de film et les gouttes de jet [11]. La goutte de jet sèche sera d'un diamètre compris entre 7.5 et 150  $\mu\text{m}$ . Les gouttes de film sont, elles, submicroniques et concentrées sur la gamme 0.05-3  $\mu\text{m}$ .

### II.1.c les sulfates (AS)

L'aérosol de sulfate est un aérosol de type secondaire, produit par réactions chimiques dans l'atmosphère à partir de gaz précurseurs, c'est-à-dire le  $\text{SO}_2$  pour la source anthropique (principalement liée à la combustion fossile) et volcanique, et le DMS (*Sulphure de Diméthyle*) pour la source biogénique dans l'hémisphère Nord (Tableau 3-1). Les sulfates représentent une

composante importante du mode fin et sont généralement associés avec l'ammonium sur le mode accumulation

### **II.1.e Les nitrates (N)**

Les nitrates proviennent de la condensation des l'oxydes d'azote. Le nitrate (N) peut être fixé ,soit sur le mode accumulation , soit sur le coarse mode. Dans le cas ou (N) se trouve sur le mode fin, celui ci est généralement associé à l'ammonium sous la forme  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  [12], Cependant  $\text{NH}_4\text{NO}_3$ , peut se dissocier et former le composé  $\text{HNO}_3$  capable de ce fixer sur les sels marins du coarse mode.

### **II-1.f les aérosols (OC + BC)**

Les particules carbonées sont émises dans l'atmosphère suite à des processus de combustions incomplètes provenant des véhicules automobiles, fumées industrielles ou des feux de biomasse.

On ne peut distinguer, ni sur des critères chimiques, ni sur des critères morphologiques, les particules suies de diesel et celles émises par les feux de savanes. On ne peut non plus attribuer de formules chimiques précises car elles sont formées de carbone organique à divers états de polymérisation .Le stade ultime de la condensation est le graffite, carbone élémentaire arrangé en molécules cycliques. Les aérosols sont constitués d'un cœur de graphite, entouré d'une pellicule qui présente de nombreuses fonctions organiques oxygénées. Quand ces fonctions organiques sont abondantes, les particules sont incolores ou faiblement colorées ;on a alors du carbone organique particulaire (OC).Quand C'est le noyau de graphite qui domine,les particules sont grises ou noires,constituant le carbone suie (*ou black carbone* (BC)). La qualité de la combustion détermine la qualité globale de particules émise, mais aussi l'abondance relative de carbone suie [13].l'aérosol carboné est généralement retrouvé sur le mode *accumulation* et on peut repérer une fraction importante de ce mode .Notons dans la suite de ce manuscrit, nous considérons la matière organique particulaire (POM),à la place de (OC),qui inclut, en plus du carbone,les atomes d'hydrogène et oxygène . La quantité de la matière organique particulaire est souvent calculée à partir du rapport ( $\text{POM/OC} = 1.3$ ) [ 14].

- *indice de réfraction à 0 % d'humidité*

Bien que l'indice de réfraction, soit en réalité, une propriété optique de l'aérosol puisque il joue un rôle important dans le processus d'extinction en déviant la direction du rayonnement incident et éventuellement en absorbant, nous le définissons ici car il est directement relié a la composition chimique de l'aérosol. Cet indice de réfraction noté  $m$  dépend de la longueur d'onde et de l'humidité relative. Il s'écrit de la manière suivante ;

$$m = m_r + im_i$$

II-1

La partie réelle  $m_r$  fixe la vitesse de propagation du milieu. La partie imaginaire  $m_i$  est reliée à l'absorption des aérosols. La partie réelle est généralement comprise entre 1.33 (aérosols saturé d'eau) et 1.55 (aérosols minéral), mais peut atteindre la valeur de 1.75 dans le visible dans le cas de suies. L'indice imaginaire est compris entre  $2.10^{-8}$  pour les aérosols purement diffusant (comme les sels marins) et 0.66 pour les aérosols absorbants comme les particules de suie. Les valeurs référencées dans la littérature pour les différents types d'aérosols sont reportées dans le *Tableau III-1* L'indice de réfraction varie en fonction de l'humidité relative. La condensation de la vapeur d'eau à la surface de l'aérosol entraîne une diminution de son indice qui va tendre vers celui de l'eau  $m_{r,h2o}=1.33$  ;  $m_{i,h2o}=0$  à 550nm, [15]. Cette variation sera comme nous le verrons par la suite, modélisée par les relations de *Hanel* [16]

L'indice de réfraction est une propriété cruciale dans la détermination de l'impact de l'aérosol sur le climat. D'après *Pilinis* [17], une variation de 1.40 à 1.45 de la partie réelle  $m_r$  d'un aérosol composé de sulfate, nitrate et de matière carbonée suffit à augmenter le forçage radiatif directe de 30% au sommet de l'atmosphère. Dans le cas des poussières minérales, *Liao et Seinfeld* [18] Indique que le forçage radiatif exercé au sommet de l'atmosphère est très sensible à la partie imaginaire de l'indice de réfraction de l'aérosol minéral

Types d'aérosols	$m_r$	$m_i$	références
(AS)	1.53	$6.00 \cdot 10^{-3}$	[19]
(BC)	1.75	0.44	[20]
	1.95	0.66	[19]
	1.85	0.56	[21]
(OC)	1.55	0.05	[22]
(N)	1.53	$6.00 \cdot 10^{-3}$	[19]
(D)	1.53	$5.50 \cdot 10^{-3}$	[19]
(SS)	1.50	$1.0 \cdot 10^{-8}$	[19]

**Tableau II-1** : indice de réfraction ( $m$ ) à 0% d'humidité relative et à 550 nm pour les principale espèces d'aérosols, selon [23].

## II-2. Propriétés microphysiques et optiques des l'aérosols à humidité ambiante

### II-2-1 Propriété microphysique d'aérosol

- **La distribution de taille**

La distribution en taille de l'aérosol est une de ses propriétés essentielles .celle-ci détermine, entre autre, dans les problèmes radiatifs, la manière dont le rayonnement solaire (ou tellurique) va interagir avec la particule .Les deux principaux modes considérés de la distribution de taille, le mode *accumulation* ( $D \approx 0.1 \mu m$ ) et le *coarse* mode ( $D \approx 1 \mu m$ ). Ainsi, la plupart des études proposent plutôt l'utilisation de plusieurs distributions en loi lognormale de façon à caractériser les différents modes d'une distribution en taille.Cette distribution lognormale (en nombre) est donnée par :

$$n(D) = \frac{dN}{dD} = \sum_{i=1}^n \frac{C_{tot}}{D\sqrt{2p} \ln(e)} \exp\left(-\frac{\ln^2(D/D_m)}{2\ln^2(e)}\right) \quad \text{II-2}$$

Cette distribution est définie par trois paramètres ( $D_m, e, C_{tot}$ ) qui présentent respectivement le rayon géométrique moyen, l'écart type géométrique ,et la concentration en particules.

Les différentes valeurs existant actuellement concernant ( $D_m, e$  ) sont reportées dans les *Tableaux* III-2 et III-3. Notons que la valeur  $D_m$  est toujours référencée à 0% d'humidité relative .cette convention permet de comparer les différentes distributions en taille sur les différents sites de mesures. La variation de la valeur de  $D_m$  avec l'humidité relative est présentée *Tableaux* III-4.

Types d'aérosols	$D_m$	$e$	références
(AS)	0.03	2.0	[24]
	0.0285	2.0	[19]
	0.0212	2.24	[09]
(BC)	0.0118	2.0	[25]
	0.03	2.0	[19]
	0.03	2.0	[21]
	0.035	1.54	[26]
(OC)	0.03-0.06	1.7-2	[27]
	0.3	1.8	[28]
(N)	#	#	

**Tableau II-2** : propriétés de la distribution lognormale a 0% humidité relative pour les principales espèces d'aérosols anthropique, selon [23].

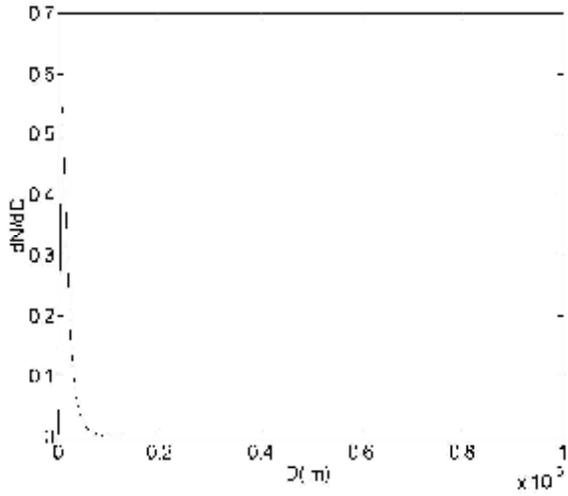
Types d'aérosols	$D_m$	$e$	références
(D)	0.07	1.95	.[09]
	0.39	2.0	
	1.9	2.15	
	0.05	1.56	.[19]
	0.27	2.67	
	4.0	2.4	
	0.57	1.53	[29]
	0.75	1.60	[28]
	0.30/0.24	2.0/2.0	[30]
	(SS)	0.08	1.5
0.23		2.1	
0.209		2.03	[09]
1.75		2.03	
1.17		1.46	[29]
0.20		2.0	[28]

**Tableau II-3:** propriétés de la distribution lognormale a 0% humidité relative pour l'aérosol naturel (D & S).

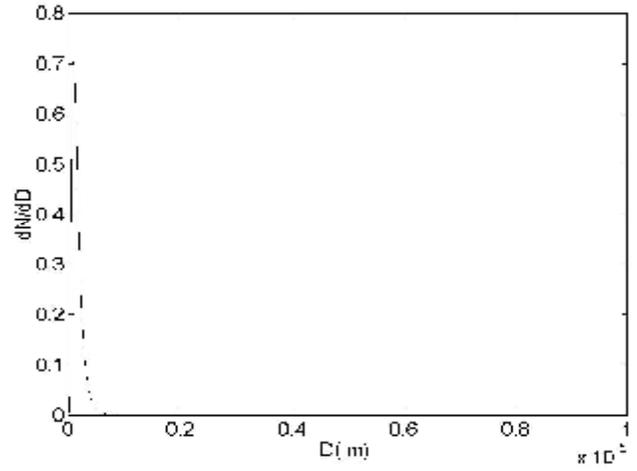
Types d'aérosols	mode	$D(0)_m$	$D(h)_m$	$e$
(AS)	Accumulation	0.040	0.050	1.74
(BC)	Accumulation	0.28	#	1.94
(POM)	Accumulation coarse	0.027	0.034	1.86
		0.291	0.364	1.95
(N)	coarse	0.505	0.628	1.61
(SS)	coarse	0.350	0.440	1.75
(D)	Accumulation	0.036	#	1.97
	coarse	0.554	#	1.98

**Tableau II-4:** Caractéristiques de la log-normale ( $D_m, e$ ) de chaque espèce.  $D_m(0)$  et  $D_m(h)$  représente le rayon « en nombre » respectivement à 0 % d'humidité (référéncée dans la littérature tableau 1-2et 1-3) et à humidité ambiante. [07].

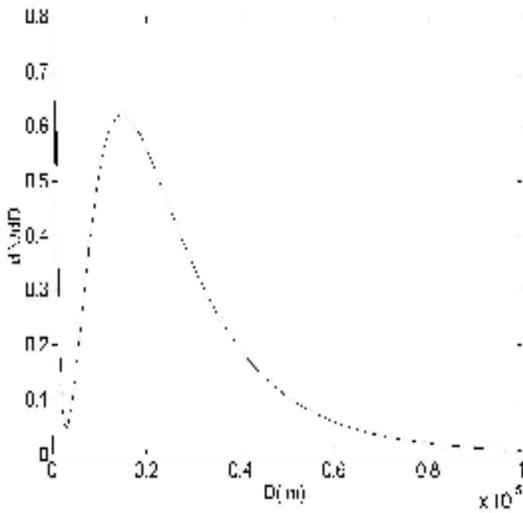
Nous avons tracé les distributions de tailles normalisées de type lognormale des différentes espèces chimiques, figure II-1 à II-6, en s'appuyant sur les mesures ( $D_m, e$ ) obtenues par Marc Mallet [07].



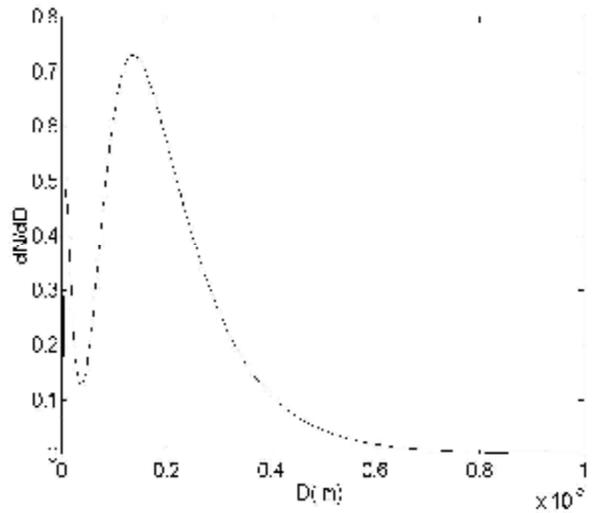
**Figure II-1 :** Distribution de taille normalisée (BC) en mode Accumulation



**Figure II-2 :** Distribution de taille normalisée (AS) en mode Accumulation



**Figure II-3 :** Distribution de taille normalisée (POM) en deux modes



**Figure II-4 :** Distribution de taille normalisée (D) en deux modes

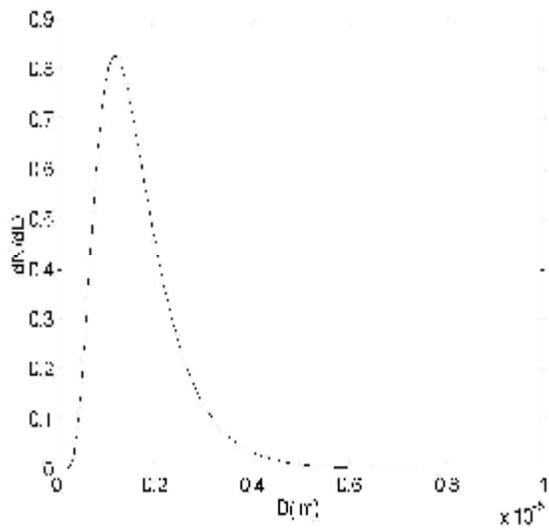


Figure II-5: Distribution de taille normalisée (N) en « coars » mode

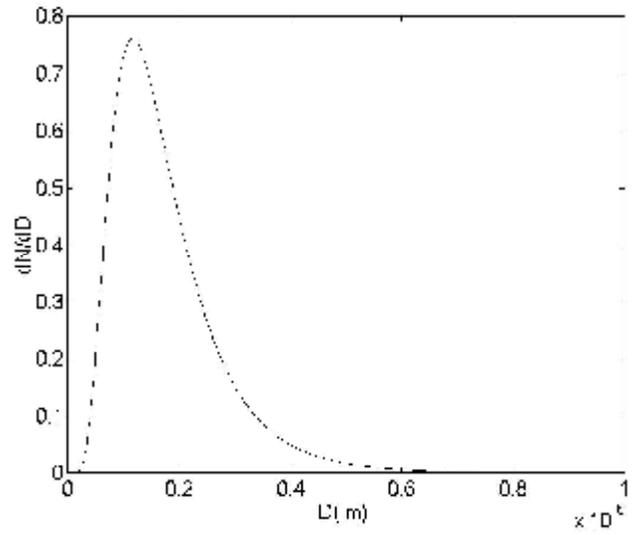


Figure II-6: Distribution de taille normalisée (SS) en « coarse » mode

**II-2-2 L'indice de réfraction des aérosols a humidité ambiante :**

Les paramètres de la distribution en taille ( $D_m, e$ ) présentés dans le tableau 1-4 sont considérés à humidité ambiante. De façon à déterminer les propriétés optiques des aérosols à humidité ambiante, les indices de réfraction de chaque espèce chimique reportés dans la littérature à l'état sec doivent être convertis a humidité ambiante. Cette conversion est modéliser à l'aide des relations de *Hanel* [16] qui permettent d'obtenir les composantes réelles ( $m_r$ ) et imaginaire ( $m_i$ ) d'une espèce chimique à humidité ambiante :

$$m_{r(h)} = m_{r(0)} + (m_{r(h2o)} - m_{r(0)}) (D_{m(0)} / D_{m(h)})^3 \quad \text{et} \quad m_{i(h)} = m_{i(0)} + (m_{i(h2o)} - m_{i(0)}) (D_{m(0)} / D_{m(h)})^3 \quad \text{II-3}$$

Il est à noter que les indices de réfractons complexes dépendent de la longueur d'onde. Toutefois pour ne pas alourdir les équations, cette dépendance n'apparaît pas explicitement dans les équations II-3, mais il est claire qu'elle a été considérée pour toutes les espèces solaire.

La relation III-2-2-1 met en évidence les paramètres à estimer pour effectuer cette correction. Ceux ci sont l'indice de réfraction de l'eau pure, donnée dans la littérature ( $m_{r(h2o)}=1.33$ ,  $m_{i(h2o)}=0$  à 550nm ), les indices de réfraction à l'état sec des différentes espèces chimiques. ( $D_{m(h)}$ ) est le rayon médian à humidité ambiante ,et ( $D_{m(0)}$ ) le rayon médian 0% d'humidité (Tableau 1-4).

\*Espèces hydrophile :

Les indices de réfractons pour (N)et (AS) à l'état sec(0) sont indiqués et proviennent du Modèle *Water Soluble* [25]. L'indice de réfraction des (SS) provient du *Oceanic Model* [19] et celui de la matière organique particulaire provient de *Von Hoyningen-Huene* [22].les valeurs à humidité ambiante sont reportées dans le *Tableau III-5* à 532 nm.

HR (%)	$m_{r(SS)}$	$m_{i(SS)}$	$m_{r(POM)}$	$m_{i(POM)}$	$m_{r(AS\&N)}$	$m_{r(AS\&N)}$
37.5	1.444	$7.38 \cdot 10^{-9}$	1.438	0.0035	1.466	0.0040

**Tableau II-5 :** indice de réfraction des espèces hydrophiles à humidité ambiante a 532 nm[07]

\*Espèces hydrophobes :

Pour le carbone suie, nous utilisons un indice de réfraction  $m_{bc}$  d'une étude récente, ou *Marley et al* [21] utilisent  $m_{bc} = 1.87 + 0.569i$  à 532 nm. Cette valeur peut être considérée comme une moyenne entre celle du graphite pur directement à la source (environ  $2.0 + 1.0i$  [31]) et celle d'un aérosol plutôt âgé (environ  $1.75 + 0.45i$  [07]). Pour les poussière minérales, la valeur  $m_d = 1.53 + 5.5 \cdot 10^{-3}i$  à 532 nm [07] est utilisée.

**II-3 Résultats des calculs des Propriétés optiques de l'aérosol :**

A partir des propriétés physico-chimiques des aérosols à l'état sec trouvées dans la littérature et à humidité ambiante obtenue par la station AERONET [07]. Il est clair que les particules ne sont pas sphériques, mais compte tenu de la presque équiprobabilité des orientations, une sphéricité équivalente peut être considérée pour la plupart des particules (à l'exception peut être de certain Dust). A titre indicatif, les Figures II-8 à II -13 donnant la spécificité relative des coefficients d'extinction, d'absorption, de diffusion et rétrodiffusion ainsi obtenue. Nous avons reporté dans les différentes figures les propriétés suivantes ( $dG_{ext}/dD$ ,  $dG_{sc}/dD$ ,  $dG_{abs}/dD$ ,  $dG_b/dD$ ) en fonction des diamètres des particules de chaque espèce chimique, ces courbes Figures (III-8 à III-13b) montrent la variation des différents coefficients par rapport à la distribution de taille de chaque espèce chimique, ainsi les propriétés optiques ( $G_{ext}$ ,  $G_{sc}$ ,  $G_{abs}$ ,  $G_b$ ) présentés dans les tableaux III-6 et III-7 avec humidité relative et à 0 % humidité (état sec des particules).

$$\text{Avec} \quad dG_i / dD = p D^2 Q_i n(D), \quad i = \text{ext, sc, abs, b} \quad \text{II-4}$$

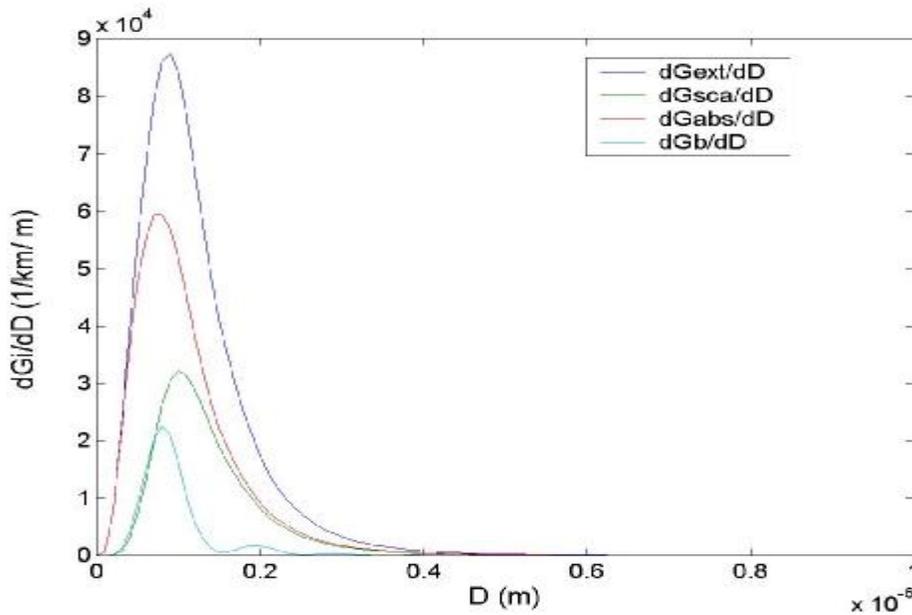
$$G_i = \int_{D_{min}}^{D_{max}} p D^2 Q_i n(D) dD , \quad i = ext, sc, abs, b \tag{II-5}$$

$$a_{ext} = G_{ext} \text{ et } b_{back} = G_b \tag{II-6}$$

**II-3-a Le carbone suie (BC):**

Cette espèce chimique n'a pas la propriété de condenser la vapeur d'eau, donc on ne peut calculer les propriétés optiques qu'à 0% d'humidité. La figure II-8 montre la variation des coefficients d'extinction, d'absorption de diffusion et de rétrodiffusion en fonction du rayon de la particule. La variation de ces coefficients prennent presque la même forme de courbe que celle de la distribution de taille normalisé (figure II-1). Pour D diamètre de particule égale à 0.1 *nm* le coefficient d'extinction et de rétrodiffusion prennent la valeur maximale.

Le coefficient d'extinction calculé  $G_{ext}$  est égal à  $0.012 \text{ km}^{-1}$  implique une contribution à l'extinction de 20 % , la figure II-14, illustre l'importance de cette espèce anthropique qui interagit essentiellement dans les processus d'absorption du rayonnement solaire ou terrestre. Cette propriété d'absorption est due à l'importance de l'indice de réfraction imaginaire du BC. Le coefficient de rétrodiffusion est égal à 0.0016 avec une contribution moyenne à la rétrodiffusion de 11 % (Figure II-17). L'albédo simple de diffusion est égal à 0.34 (Tableau 3-6).



I- Figure III-8 : Propriétés optiques du (BC) à 532 nm en mode accumulation et à 0% humidité ambiante

**3-b Sulfate**

***d'ammonium (AS):***

Les figures II-9a et II-9b montrent que le sulfate d'ammonium a un coefficient d'extinction et de diffusion supérieure aux autres espèces chimiques, avec un coefficient de rétrodiffusion important. Les coefficients d'extinction, de rétrodiffusion, d'absorption et de diffusion à l'humidité ambiante sont supérieurs à ceux obtenus à 0% d'humidité, ceci est dû à la variation de l'indice de réfraction.

Nos résultats indiquent un coefficient d'extinction  $G_{\text{ext}}$  égal à  $0.026 \text{ km}^{-1}$  à 532 nm (Tableau II-6), entraîne une contribution moyenne à l'extinction de 45% (Figure II-14) avec un coefficient d'absorption très faible égale à 0.0005, puisque cette espèce est considérée comme étant diffusante.

Ce résultat indique que (AS) est l'espèce anthropique participante le plus à l'extinction particulaire et ayant un coefficient de rétrodiffusion important par rapport aux autres espèces chimiques (égal à 0.0062), une pente maximale du coefficient de rétrodiffusion à  $D$  égal à  $0.1 \text{ m}$ . Ce qui implique une contribution moyenne à la rétrodiffusion de 44 % (Figure II-17). L'albédo simple de diffusion moyen vaut  $w_0=0.97$  à l'humidité ambiante et 0.95 à 0 % d'humidité, ce qui indique que (AS) absorbe très peu de rayonnement à 532 nm (Figure 3-9).

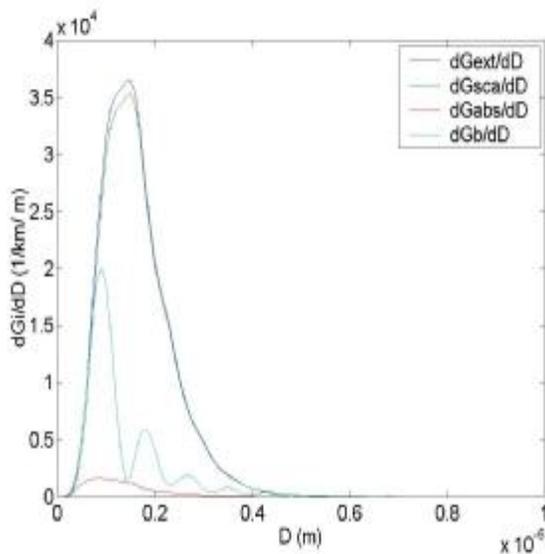


Figure II-9-a : Propriétés optiques du (AS) à 532 nm en mode accumulation et à 0 % humidité

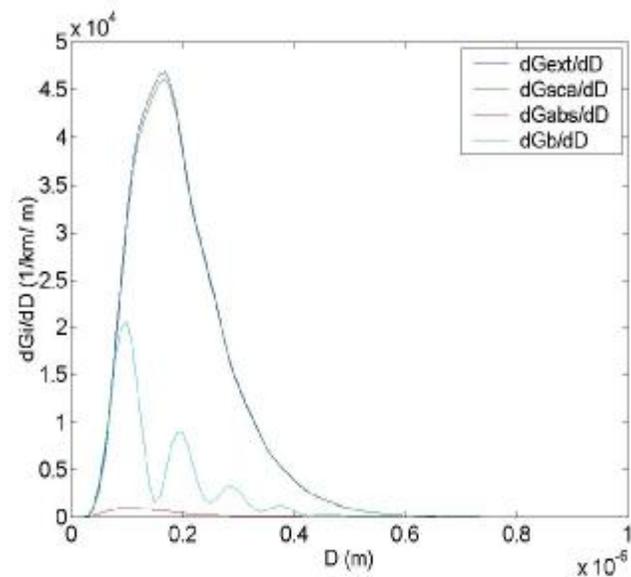


Figure II-9-b : Propriétés optiques du (AS) à 532 nm en mode accumulation et à humidité ambiante

### II-3-c les Nitrates (N)

Les figures II-10a et II-10b montrent que la variation du coefficient de rétrodiffusion est plus importante que celle des autres coefficients à partir de  $D = 0.5 \mu\text{m}$  dans les deux cas (humidité ambiante et à 0% d'humidité), ceci est due à la distribution de taille du nitrate (coarse mode), ou le diamètre de la particule est supérieure au micron, ce qui implique une capacité de rétrodiffusion supérieure. On remarque aussi que le coefficient d'absorption est presque nul.

On note un coefficient d'extinction  $G_{\text{ext}} = 0.0021 \text{ km}^{-1}$  (Tableau II-6), entraîne une contribution faible ( $\approx 5 \%$ ) à l'extinction du rayonnement à 532 nm (Figure II-14).

Le coefficient de rétrodiffusion est moins important dans les deux états à l'humidité ambiante et 0% humidité, respectivement égale à 0.0015 et 0.0010 (Tableau II-6), et une contribution moyenne à la rétrodiffusion de 7 % (Figure II-17).

Concernant les autres propriétés optiques, l'albédo de simple diffusion est égal à 0.93 à humidité ambiante et à 0.89 à 0 % d'humidité

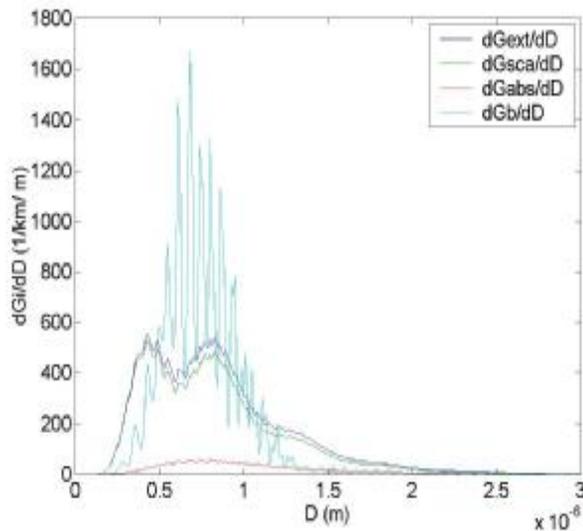


Figure II-10-a: Propriétés optiques du (N) à 532 nm en « coarse » mode et à 0% humidité

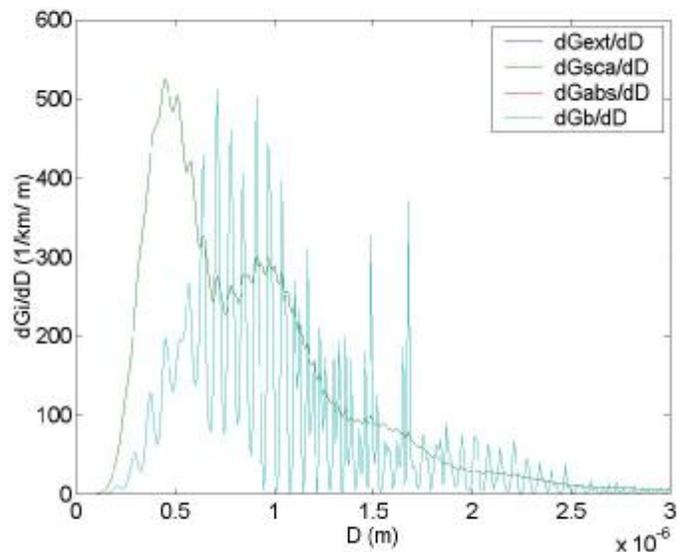


Figure II-10-b: Propriétés optiques du (N) à 532 nm en « coarse » mode et à humidité ambiante

### II-3-d La matière organique particulaire (POM) :

Les calculs des coefficients d'extinction indiquent, Figure II-14 une contribution à l'extinction des POM de 16 % pour le mode *accumulation*, supérieur à celle du *coarse* mode  $\approx 4\%$ . Contrairement au coefficient d'absorption, le coefficient d'extinction à humidité ambiante est

plus important que celui obtenu à 0% humidité pour les deux modes parce que l'indice de réfraction imaginaire à l'état sec est supérieur de celui à l'humidité ambiante (Tableau II-6). Le coefficient de rétrodiffusion pour les deux modes  $G_b=0.0037$  à humidité ambiante et  $G_b=0.0012$  à 0% d'humidité. Le facteur d'asymétrie logiquement plus important pour le mode *coarse*.

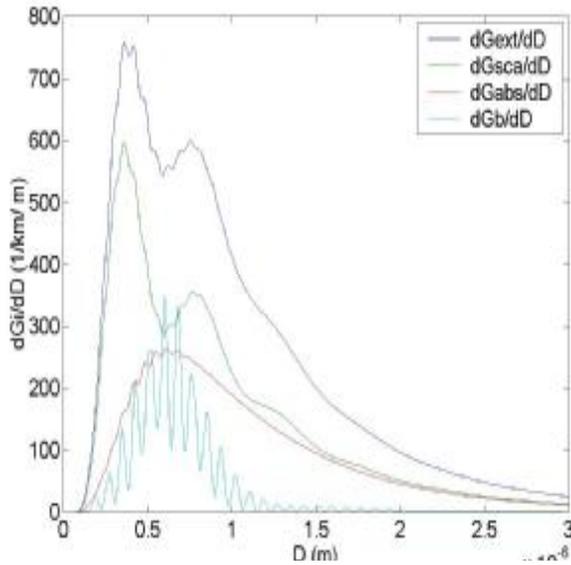


Figure II-11-a : Propriétés optiques du (POM) à 532 nm mode en accumulation et à

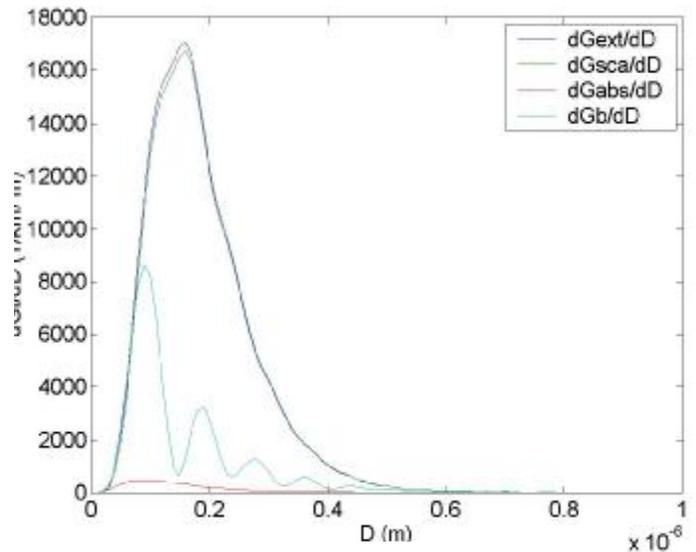


Figure II-11-b : Propriétés optiques du (POM) à 532 nm en mode

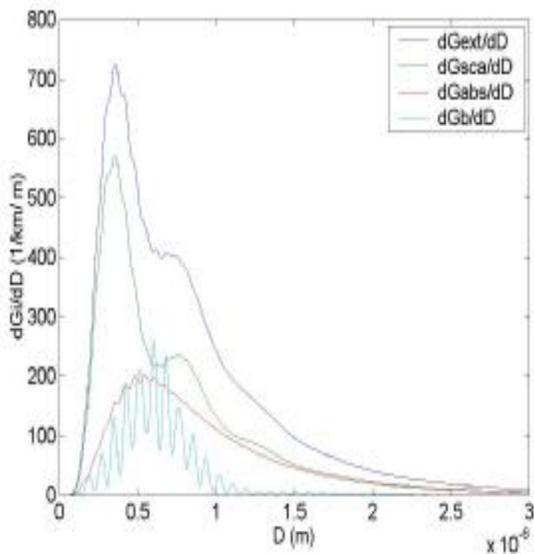


Figure II-11-c : Propriétés optiques du (POM) à 532 nm « coarse » mode et à 0% d' humidité

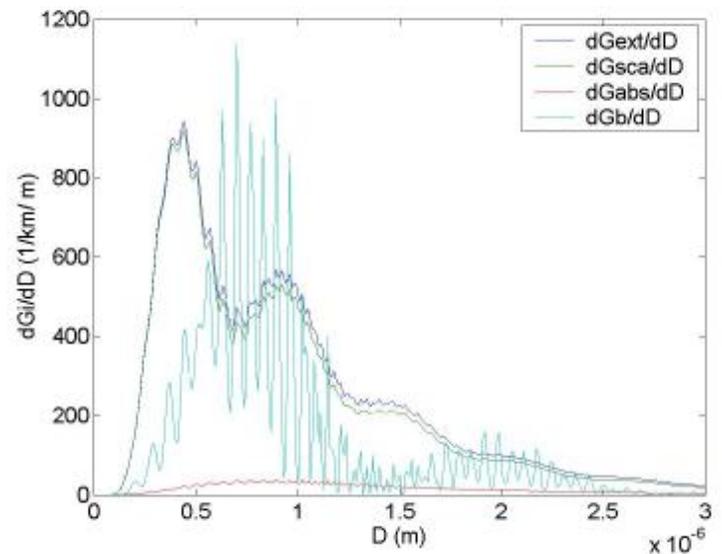


Figure II-11-d : Propriétés optiques du (POM) à 532 nm « coarse » mode et à humidité ambiante

### II-3-e L'aérosol naturel (D & SS)

En zone non polluée, l'aérosol marin peut contribuer de manière sensible à l'extinction du rayonnement à 532 nm [32]. Néanmoins, en zone fortement polluée, sa contribution est fortement affaiblie. La même remarque que pour le nitrate concernant la variation du coefficient de rétrodiffusion, ou ce dernier augmente fortement par rapport aux autres coefficients lorsque le rayon de la particule dépasse 0.5  $\mu\text{m}$  pour les deux états.

Le coefficient d'extinction des sels marins à humidité ambiante  $G_{\text{ext}}=0.001 \text{ km}^{-1}$ , implique une contribution de 3 % à l'extinction, ceci est principalement due à la diffusion du rayonnement, car les sels marins n'absorbent pas le rayonnement à 532 nm ( $w_0=0.99$ ). ainsi à 0 % d'humidité le coefficient d'absorption est nulle.

Un faible coefficient de rétrodiffusion égale 0.0007 à humidité ambiante, implique une contribution à la rétrodiffusion faible de 5 % .

Concernant l'aérosol minéral (D), ce type d'aérosol ne possède pas la propriété de condenser la vapeur d'eau sur sa surface.

$G_{\text{ext}} = 0.005 \text{ km}^{-1}$  (Tableau II-6) implique une contribution de 8 % (figure II-14) à l'extinction à humidité ambiante pour le mode accumulation et  $G_{\text{ext}} = 10^{-3}$  en coarse mode.

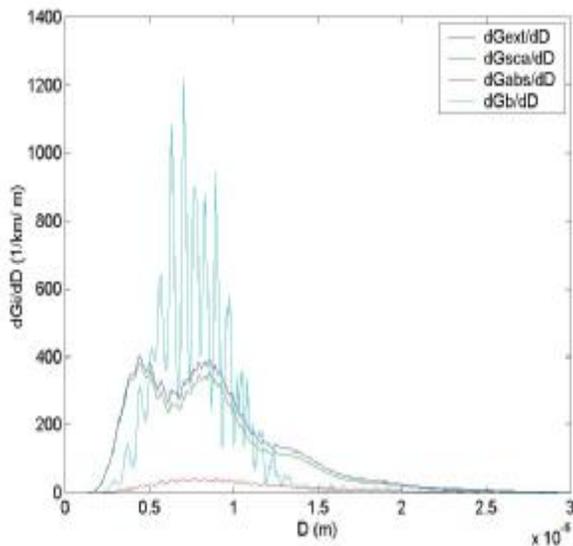


Figure II-12-a : propriétés optiques du (SS) à 532 nm « coarse » mode et à 0 % humidité ambiante

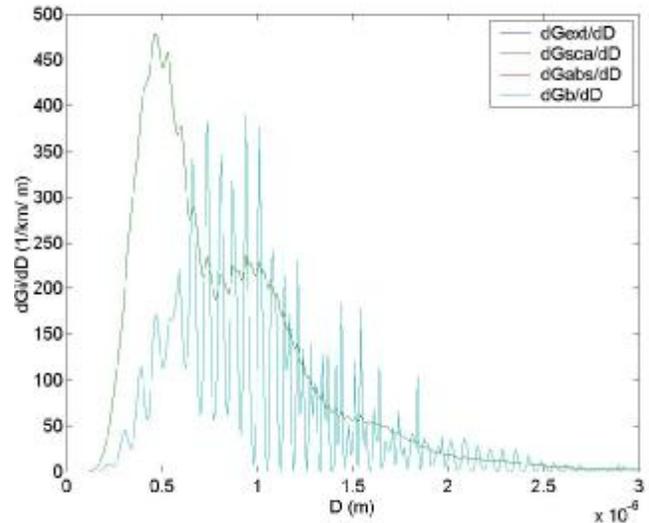


Figure II-12-b : propriétés optiques du (SS) à 532 nm « coarse » mode et à humidité ambiante

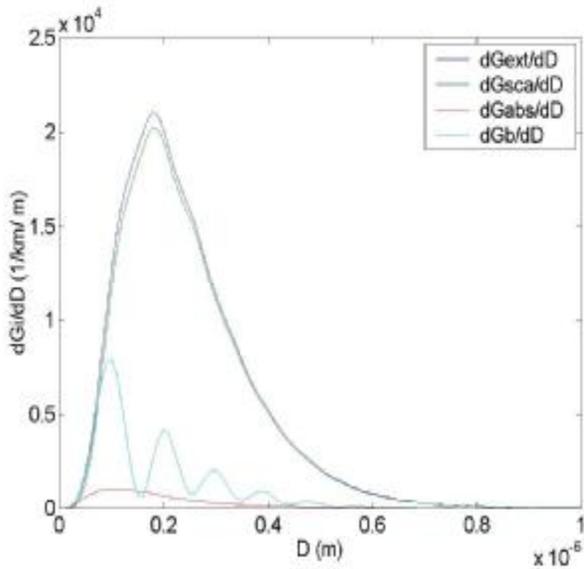


Figure II-13-a : Propriétés optiques du (D) à 532 nm mode accumulation et 0% humidité

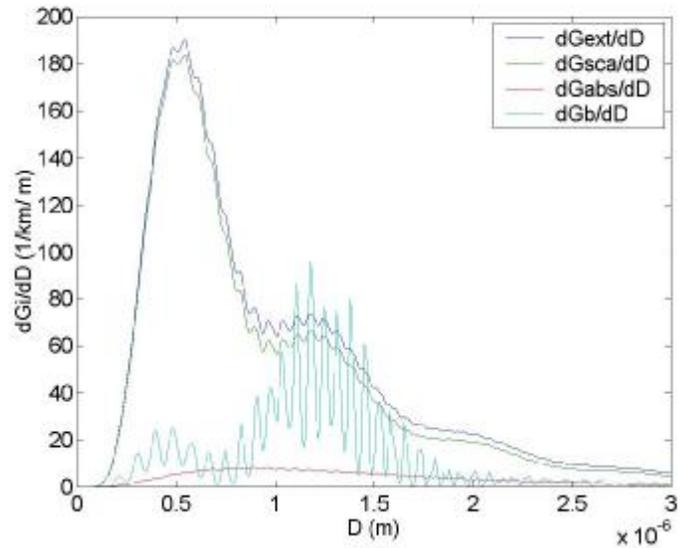


Figure II-13-b : Propriétés optiques du (D) à 532 nm coarse mode à 0% humidité

Type d'aérosols	mode	$G_{ext}$	$G_{sca}$	$G_{abs}$	$G_b$	$w_0$
(AS)	Accumulation	0.0261	0.0256	0.0005	0.0062	0.98
(BC)	Accumulation	0.0124	0.0044	0.0080	0.0016	0.34
(POM)	Accumulation	0.0092	0.0089	0.0002	0.0025	0.96
	coarse	0.0023	0.0021	0.0001	0.0012	0.91
(N)	coarse	0.0021	0.0020	0.0001	0.0010	0.95
(SS)	coarse	0.0011	0.0011	0.0000	0.0007	0.99
(DUTS)	Accumulation	0.0051	0.0049	0.0002	0.0010	0.96
	coarse	1.0e-003 *	0.4573	0.4203	0.0370	0.1193

Tableau II-6 propriétés optiques de chaque mode et pour chaque espèce chimique à humidité ambiante

Type d'aérosols	mode	$G_{ext}$	$G_{sca}$	$G_{abs}$	$G_b$	$w_0$
(AS)	Accumulation	0.0169	0.0161	0.0007	0.0050	0.95
(POM)	Accumulation	0.0055	0.0038	0.0016	0.0012	0.69
	coarse	0.0015	0.0010	0.0006	0.0002	0.66
(N)	coarse	0.0014	0.0012	0.0001	0.0015	0.85
(SS)	coarse	$0.75e^{-3}$	$0.75 e^{-3}$	0.0000	$0.71 e^{-3}$	0.99

Tableau II-7 propriétés optiques de chaque mode et pour chaque espèce chimique à 0 % humidité

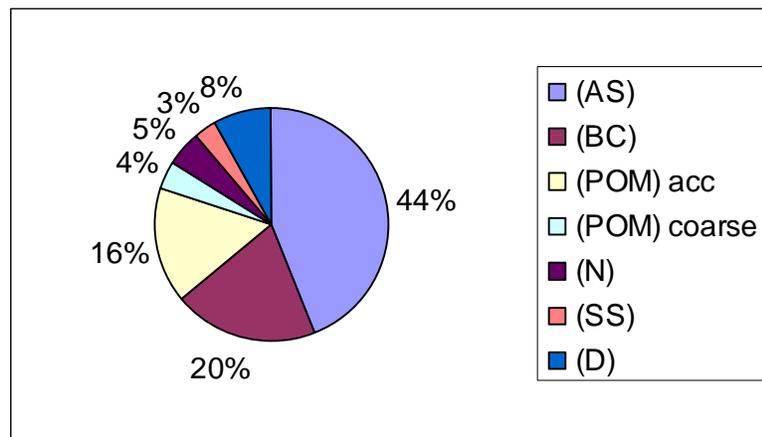
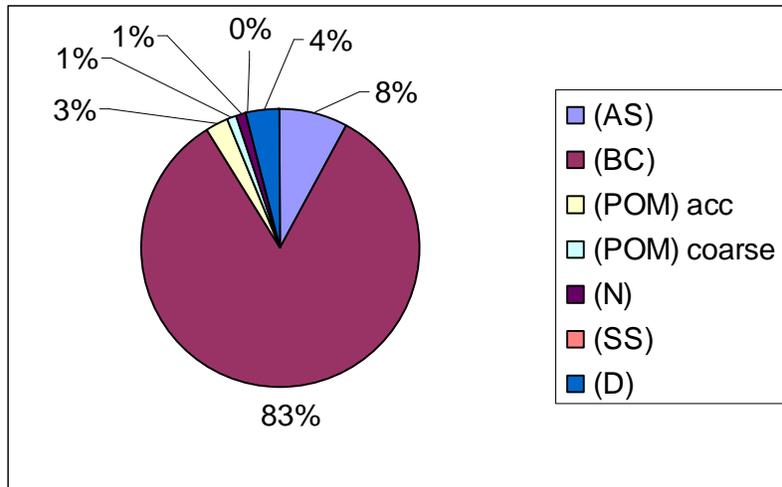
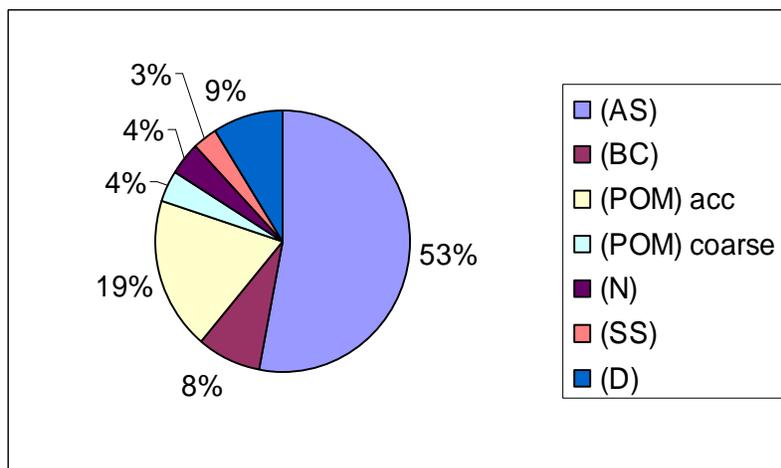


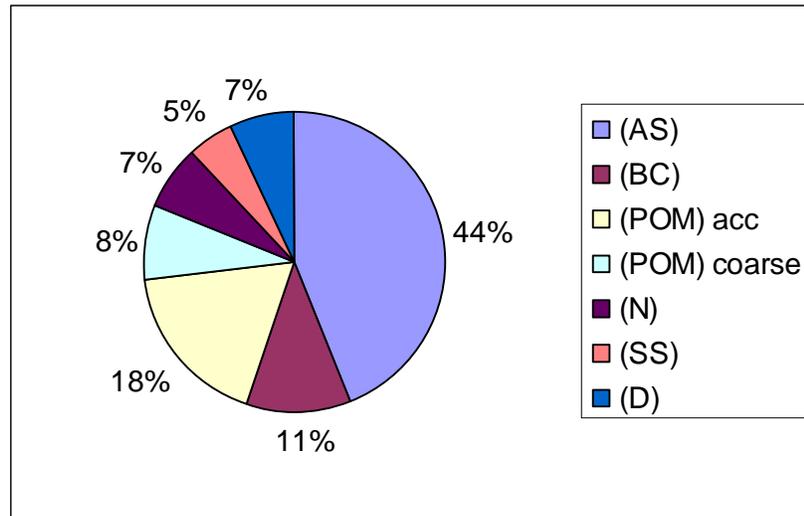
Figure II-14 contribution des différentes espèces à l'extinction à 532 nm



**Figure II-15** contribution des différentes espèces à l'absorption à 532 nm



**Figure II-16** contribution des différentes espèces à la diffusion à 532 nm



**Figure II-17** contribution des différentes espèces à la rétrodiffusion à 532 nm

### Conclusion :

Cette étude avait pour objectif principal de calculer les propriétés optiques des différents types d'aérosols anthropiques en milieu péri urbain. Pour cela, nous avons utilisé les propriétés microphysiques mesurées par in situ et ESCOMPTE, associées à la théorie de Mie, nous ont permis de déterminer leurs propriétés optiques cruciales : ( $G_{ext}$ ,  $G_{sc}$ ,  $G_{abs}$ ,  $G_b$ ) et ( $w_{0,}$ ) et de montrer l'influence de l'humidité sur les propriétés microphysique et optique des aérosols. Afin que nous puissions utiliser ces caractéristiques pour mesurer le taux de concentration d'aérosols par LIDAR dans le chapitre III.

## CHAPITRE III : Application LIDAR

*Dans ce chapitre nous allons décrire le système LIDAR et la méthode utilisée pour inverser les données lidar, afin de faire le diagnostic de l'atmosphère. Nous allons utiliser toutes ces caractéristiques microphysiques et optiques de chaque espèce chimique (aérosols, nuage et brume) étudiées dans les chapitres précédents. Nous allons simuler une composition physico-chimique d'aérosols urbain donnée par le model de Shettle et Fenn [20] en s'appuyant sur les mesures LIDAR ,ainsi nous allons calculé la concentration d'aérosols.*

### III-1 Principe du lidar

Le lidar consiste à envoyer des impulsions laser dans l'atmosphère et à mesurer leur rétrodiffusion en fonction du temps (Figure III-1) Le faisceau laser est à la fois diffusé et absorbé par les molécules (gaz) et par les aérosols, contenus dans l'atmosphère. L'extinction augmente avec la quantité d'aérosols et avec la concentration en molécules, une partie de cette lumière est rétrodiffusée vers l'émetteur. Pour augmenter l'angle solide de réception, un télescope placé coaxialement au laser est utilisé. Le fait que le laser soit pulsé permet une détection en fonction du temps  $t$  et donc de la distance  $z$  entre le laser et le point de mesure ( $z=c.t/2$ ,  $c$  étant la vitesse de la lumière dans l'air).

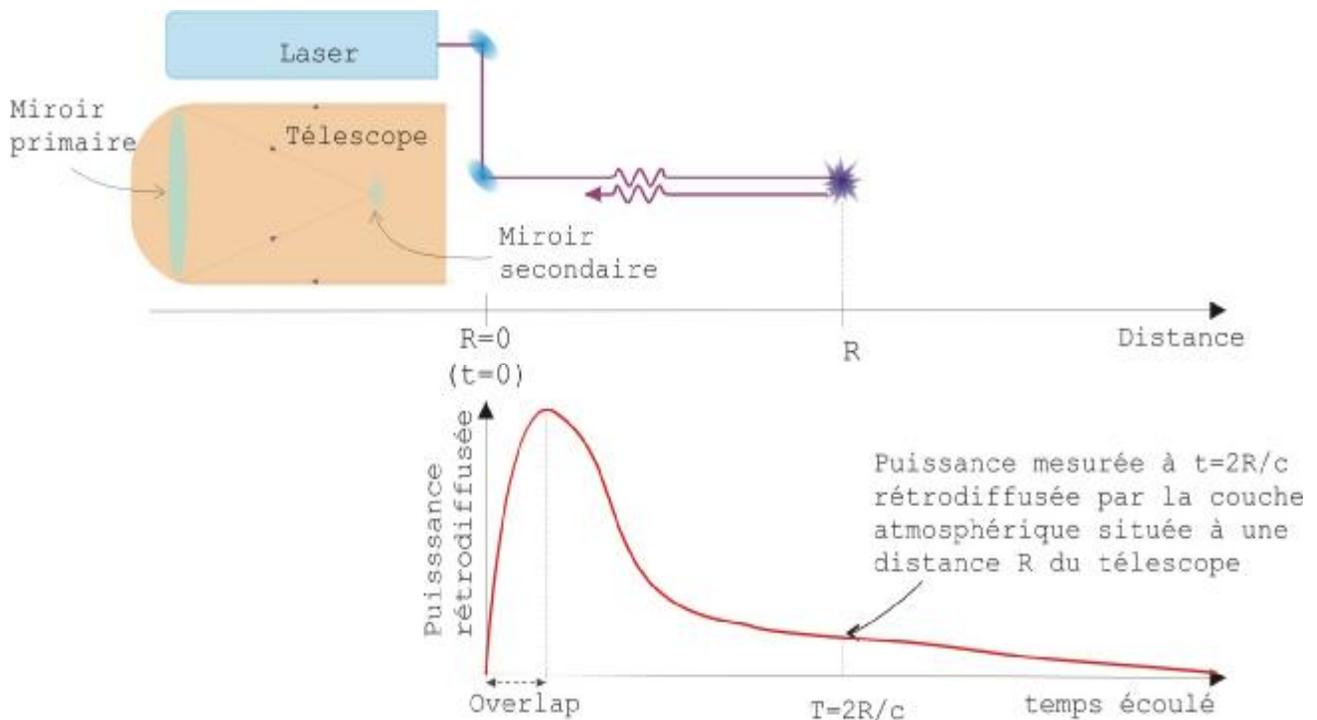


Figure III-1. Schéma de principe du lidar aérosols.

### III-1-1. L'équation lidar

L'intensité lumineuse rétrodiffusée  $I(z, I)$ , à la longueur d'onde  $I$  et à la distance  $z$ , a pour expression dans le cas d'une diffusion élastique (en négligeant la diffusion multiple) [33][34] :

$$I(z, I) = I_0(0, I) \frac{A_0}{z^2} b(z, I) \Delta z c(z, I) \exp\left(-2 \int_0^z G_{ext}(z, I) dz\right) \quad \text{III-1}$$

-  $I_0(0, I)$  : est l'intensité lumineuse émise à la longueur d'onde  $I$  par le laser.

-  $A_0/z$  : est l'angle solide d'acceptance du récepteur optique ( $A_0$  est l'aire de détection effective du télescope).

-  $b(z, I)$  : est le coefficient volumique total de rétrodiffusion.

-  $\Delta z = \frac{c\Delta t}{2}$  avec  $\Delta t$  la durée d'impulsion du laser. La résolution spatiale est limitée par la largeur

de l'impulsion du laser, mais en pratique par la rapidité de l'électronique du système de détection.

-  $c(z, I) = k(I)Y(z)$  est l'efficacité de détection, où  $Y(z)$  représente le recouvrement entre les champs de vision de l'émetteur et du récepteur.  $Y(z)$  est appelé facteur de compression géométrique.  $k(I)$  correspond au facteur de transmission spectrale du système de détection (monochromateur, filtres spectraux, réflectivité des miroirs...).

-  $a_{ext}(z, I)$  est le coefficient d'extinction atmosphérique total.

-  $\exp\left(-2 \int_0^z a_{ext}(z, I) dz\right)$  exprime la loi de Beer-Lambert pour un aller-retour de la lumière

entre 0 et  $z$ .

### IV-1-2. Inversion de l'équation lidar

L'inversion des signaux lidar équivaut à résoudre l'équation III-1 en supposant que la détection s'effectue à la même longueur d'onde que celle du laser (diffusion élastique).  $J(z)$  est définie comme étant le produit des différents paramètres physiques du système :

$$J(z) = I_0(0, I) \cdot c(z, I) \cdot A_0 \cdot \frac{c \Delta t}{2} \quad \text{III-2}$$

Ces différents paramètres du système peuvent être évalués avant la mesure lidar et dépendent exclusivement du système. De plus, la compression géométrique  $Y(z)$ , peut être calculée séparément et tend vers 1 après une certaine distance, et devient donc indépendante de  $z$  au-delà.  $J(z)$  tend alors vers une constante quand la compression géométrique est atteinte.

On définit alors  $L(z, I)$  comme étant :

$$L(z, I) = \ln(z^2 \cdot I(z, I)) = \ln(\text{cte}) + \ln(b(z, I)) - 2 \int_0^z a(r, I) dr \quad \text{III-3}$$

On dérive cette équation par rapport à  $z$  et on obtient l'équation suivante :

$$\frac{dL(z, I)}{dz} = \frac{1}{b} \cdot \frac{db(z, I)}{dz} - 2a_{ext}(z, I) \quad \text{III-4}$$

Après avoir décrit le principe du LIDAR, il est intéressant d'interpréter les mesures obtenues par ce système. Pour cela il faut inverser l'équation LIDAR pour obtenir la concentration d'aérosols.

### III-2 Approximation de l'atmosphère homogène par zone

Si l'atmosphère est considérée comme étant homogène par zone,  $b$  est alors constant sur chacune de celles-ci. Dans chacune des zones comprises entre  $z_1$  et  $z_2$  on obtient donc :

$$\frac{dL(z, I)}{dz} \cong -2a_{ext}(z, I) \Leftrightarrow a_{ext}(z, I) = -\frac{1}{2} \frac{dL(z, I)}{dz} \quad \text{III-5}$$

Ceci est à la base de la méthode d'inversion des pentes. Sur chaque intervalle où  $L = L(z)$  apparaît comme étant presque une droite, l'ajustement de la pente de la droite obtenue par la méthode des moindres carrés sur la courbe  $L$  est utilisé comme la meilleure estimation de  $dL/dz$ . De plus, une atmosphère inhomogène peut, en première approximation, être considérée comme homogène sur de petits intervalles, la méthode des pentes permet alors de déterminer  $a_{ext} = a_{ext}(z)$ . En regardant l'équation III-4, il est clair que ceci équivaut à ce que  $b^{-1} |db/dz| \ll 2a_{ext}$  au moins sur la plus grande partie de la courbe de  $L$ . Cependant cette

hypothèse n'est pas bien justifiée pour de nombreuses situations intéressantes comme des conditions de nuages, de brouillard, de panache et de poussières.

### III-3 Méthode d'inversion de Klett

Pour pouvoir résoudre de manière analytique l'équation III-4 lorsque  $db/dz \neq 0$ , il faut nécessairement connaître la relation entre  $a_{ext}(z, I)$  et  $b(z, I)$ . Cette relation est bien connue dans le cas des gaz :

$$a_{ext}^{molec} / b_{molec} = 8\rho / 3 \quad \text{III-6}$$

Mais cette relation devient très difficile à déterminer dans le cas de la diffusion par des aérosols, de par la diversité de leurs formes, taille et composition. Cependant, de nombreuses études théoriques et expérimentales montrent que dans les cas où la contribution des particules domine par rapport à celle des gaz atmosphériques ( $b \approx b_{aero}$  et  $a \approx a_{aero}$ , dans le cas contraire il faudra soustraire les paramètres Rayleigh), cette relation peut s'écrire sous la forme d'une loi de puissance [35]:

$$b(z, I) = C_0 a_{ext}(z, I)^{K_{klett}} \quad \text{III-7}$$

où  $C_0$  est une constante et  $K_{klett}$  coefficient qui dépend de la longueur d'onde et des propriétés des aérosols il est généralement compris entre 0,67 et 1. Ces valeurs sont des valeurs empiriques moyennes déterminées à partir d'expériences[36],[37].

A partir de l'équation IV-7, l'équation IV-4 devient :

$$\frac{dL}{dz} = \frac{K_{klett}}{a_{ext}(z, I)} \frac{d a_{ext}(z, I)}{dz} - 2 a_{ext}(z, I) \quad \text{III-8}$$

Cette équation est une équation du type *Bernoulli* ou *Ricatti* homogène dont la solution générale s'écrit :

$$a_{ext}^{-1}(z, I) = \exp\left[-\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{1}{K_{klett}} \frac{dL}{dr} dr\right] \left[ C_I - 2 \int_{z_0}^z \frac{1}{K_{klett}} \exp\left(-\int_r^z \frac{1}{K_{klett}} \frac{dL}{dr'} dr'\right) dr \right] \quad \text{III-9}$$

Or pour  $z = z_0$  dans la formule précédente,  $a_{ext}(z_0, I) = C_I$ . Si  $K_{klett}$  est considérée comme une constante, la solution suivante peut être obtenue

$$a_{ext}(z, I) = \frac{e^{\frac{L(z, I) - L(z_0, I)}{K_{klett}}}}{\frac{1}{a_{ext}(z_0, I)} + \frac{2}{K_{klett}} \int_{z_0}^z e^{\frac{L(r, I) - L(z_0, I)}{K_{klett}}} .dr} \quad \text{III-10}$$

|

où  $z_0$  est une distance de référence prise au niveau du sol.

Cependant, cette méthode a tendance à donner des résultats aberrants. Mais, ces problèmes peuvent être résolus en choisissant d'intégrer l'équation III-9 à partir d'une distance de référence  $z_m$  (prise vers la fin du signal lidar) de telle sorte que la solution est générée pour  $z \leq z_m$  plutôt que pour  $z \geq z_0$ . La solution de l'équation III-4 (en l'absence de diffusion multiple et pour des effets d'absorption par les gaz négligeables) est alors :

$$a_{ext}(z, I) = \frac{e^{\frac{L(z, I) - L(z_m, I)}{K_{klett}}}}{\frac{1}{a_{ext}(z_m, I)} + \frac{2}{K_{klett}} \int_z^{z_m} e^{\frac{L(r, I) - L(z_m, I)}{K_{klett}}} .dr} \quad \text{III-11}$$

$a_{ext}(z, I)$  est une valeur limite, calculée pour une distance  $z_m$  se situant à la fin du signal telle que  $z \leq z_m$ .  $z_m$  est choisi grand de telle sorte qu'il n'y ait plus d'aérosols.

$$(b_{aero}(z_m)) = a_{ext}^{aero}(z_m) = 0.$$

Jusqu'à présent, le coefficient de proportionnalité entre  $a_{ext}$  et  $b$  a été considéré comme constant (Equation IV-7), mais il est plus réaliste quand  $C$  varie en fonction de la distance. La relation qui lie  $a_{ext}$  et  $b$  s'écrit alors :

$$b(z, I) = C(z) . a(z, I)^{K_{klett}} \quad \text{III-12}$$

En substituant cette expression dans l'équation III-4 on trouve :

$$\frac{dL(z, I)}{dz} = \frac{1}{C(z)} \frac{dC(z)}{dz} + \frac{K_{klett}}{a_{ext}(z, I)} \frac{da_{ext}(z, I)}{dz} - 2a_{ext}(z, I) \quad \text{III-13}$$

Où

$$\frac{d(L(z, I) - \ln C(z))}{dz} = \frac{K_{klett}}{a_{ext}(z, I)} \frac{da_{ext}(z, I)}{dz} - 2a_{ext}(z, I) \quad \text{III-14}$$

En rapprochant l'équation III-14 de l'équation III-8, la solution s'écrit alors sous la forme[38] :

$$a_{ext}(z, I) = \frac{\left( \frac{C(z_m)}{C(z)} \right) e^{\frac{L(z, I) - L(z_m, I)}{K_{klett}}}}{\frac{1}{a_{ext}(z_m, I)} + \frac{2}{K_{klett}} \int_z^{z_m} \left( \frac{C(z_m)}{C(z)} \right) e^{\frac{L(r, I) - L(z_m, I)}{K_{klett}}} . dr} \quad \text{III-15}$$

Les équations III-4 et III-14 permettent donc d'inverser les signaux lidar, en négligeant la contribution *Rayleigh*, et de déterminer ainsi les coefficients d'extinction  $a_{ext}^{aero}(z)$  et de rétrodiffusion  $b_{Aero}(z)$  pour les aérosols en fonction de la distance  $z$ , en optimisant les valeurs de  $C(z)$  et de  $K_{klett}$ , par l'intermédiaire d'autres systèmes tel que le nephelometre.

Dans les calculs précédents, la contribution des gaz a été négligée mais il est possible d'en tenir compte pour mieux remonter aux concentrations en aérosols à partir du signal lidar expérimental. Le coefficient total de rétrodiffusion s'exprime ainsi par :

$$b(z, I) = C_{Aero}(z) a_{ext}^{Aero}(z, I) + C_{molec} . a_{ext}^{molec}(z, I) \quad \text{III-16}$$

avec  $K_{klett}=1$ .

$$C_{molec} = 3/8p$$

La solution est alors obtenue suivant[39] :

$$b(z) = \frac{\exp(L - L_m)}{\left[ \frac{1}{b(z_m)} + 2 \int_z^{z_m} \frac{\exp(L - L_m)}{C_{Aero}(z)} . dr \right]} \quad \text{III-17}$$

$$\text{avec } L - L_m = L(z, I) - L(z_m, I) + \frac{2}{C_{molec}} \int_z^{z_m} b_{molec}(r) dr - 2 \int_z^{z_m} \frac{b_{molec}(r)}{C_{Aero}} dr \quad \text{Où}$$

le coefficient de rétrodiffusion Rayleigh  $b_{molec}(z, I)$  peut être calculé, en fonction de l'altitude et de la longueur d'onde, à partir de profils verticaux de température et de pression générés par un modèle atmosphérique [35] ou mesurés par ballon-sonde.

Cette méthode ne permet cependant pas de remonter à la concentration en aérosols. Mais la distribution spectrale des coefficients d'extinction et de rétrodiffusion dépend fortement de la distribution de taille des particules, de telle sorte qu'en utilisant un lidar avec une seule ou plusieurs longueurs d'ondes, des informations sur la distribution de taille des aérosols peuvent être obtenues. Différentes méthodes lidar multispectral sont décrites dans les paragraphes suivants.

#### III-4 Calculs de concentration d'aérosols par lidar :

L'information sur la distribution de taille des aérosols est contenue dans la dépendance spectrale des paramètres  $a_{ext}^{Aero}$  et  $b_{Aero}$  qui pour un régime de diffusion simple, s'expriment toujours par :

$$\left\{ \begin{array}{l} a_{ext}^{Aero}(I) = \int_0^{\infty} s_{ext}^{Aero}(r, I) r(r) dr = \int_0^{\infty} p r^2 Q_{ext}^{Aero}(r, I) r(r) dr \\ b_{Aero}(I) = \int_0^{\infty} \frac{ds_{diff}^{Aero}}{d\Omega}(q = p, z, I) r(r) dr = \int_0^{\infty} p r^2 Q_b^{Aero}(r, I) r(r) dr \end{array} \right. \quad \text{III-18}$$

$Q_{ext}^{Aero}(r, I)$  et  $Q_b^{Aero}(r, I)$  sont respectivement les efficacités d'extinction et de rétrodiffusion pour une particule de rayon  $r$ , à la longueur d'onde  $I$ .

##### III-4-1 Méthode utilisant un lidar mono-fréquence :

Pour des raisons de simplicité, la méthode d'inversion de Klett décrite au paragraphe précédent et qui tient compte de la contribution Rayleigh est utilisée ici avec l'hypothèse que le coefficient  $C_{Aero}(z)$  est indépendant de  $z$  et donc que le rapport  $b_{Aero}(z, I) / a_{ext}^{Aero}(z, I)$  est le même à toutes les altitudes.  $C_{Aero}$  sera déterminé à partir de prélèvements au niveau du sol. Ceci revient

donc à supposer que la distribution de probabilité en taille et en composition des aérosols  $g(r)$ , qui est normalisée, ne varie pas avec  $z$ . Seul le nombre total  $N_0(z)$  de particules par unité de volume varie. La méthode de Klett implique un traitement des données en partant de la fin du signal, connaissant les deux paramètres optiques que sont  $b_{Aero}(z_m, I)$  et  $b_{Aero}(z_m, I)/a_{ext}^{Aero}(z_m, I)$ . L'originalité de cette démarche vient du fait que  $CAero$  est constant est égale à 1/15 d'après la référence [40] donc le rapport  $b_{Aero}(z_m, I)/a_{ext}^{Aero}(z_m, I)$  est le même qu'au niveau du sol. A la distance  $z_m$ , seul  $b_{Aero}(z_m, I)$  reste à déterminer. Or, la distance  $z_m$  est prise à une distance loin pour se trouver hors de la couche limite et pouvoir ainsi considérer que la concentration des aérosols est négligeable devant la concentration moléculaire.

Donc  $b(z_m) = b_{Aero}(z_m) + b_{molec}(z_m) \approx b_{molec}(z_m)$  Grâce aux deux points de référence (au sol et en  $z_m$ ) l'algorithme est très peu dépendant du niveau de bruit et de la paramétrisation en fin de signal.  $b(z)$  est ensuite déterminé comme précédant avec l'équation III-16.

$b_{molec}(z, I)$  et  $a_{ext}^{molec}(z, I)$  peuvent être calculés, en fonction de l'altitude et de la longueur d'onde, à partir de profils verticaux de température et de pression générés par un modèle atmosphérique [37].  $C_{molec}$  est connu et est égal à  $8\pi/3$ .

Ayant calculé  $b(z)$  et  $b_{molec}(z)$ , on accède alors à  $b_{Aero}(z)$  puis à la concentration. En effet

$$: b_{Aero}(z) = N_0(z) \int_0^{\infty} S_{Back}^{Aero}(r) \cdot g(r) \cdot dr = N_0(z) \overline{S_{Back}^{Aero}}$$

Avec  $\overline{S_{Back}^{Aero}}$   $S$  la section efficace de rétrodiffusion moyenne par particule pour la distribution de taille normalisée  $g(r)$ .

$\overline{S_{Back}^{Aero}}$  est calculée à partir de la composition des différentes espèces chimiques d'aérosols (propriétés chimiques et microphysiques), d'après le modèle de *Shettle et Fenn* [20] ou la zone urbaine est composée de 56% de sulfate et 20% de aérosols carbonés et 24% de aérosols cristal (Dust).

La distribution de taille est obtenue aussi par le même modèle *Shettle et Fenn* pour les deux modes. Mode accumulation, avec le couple rayon médian et écart quadratique respectivement ( $D_m = 0.027 \mu m, e = 2.23$ ), en mode coarce ( $D_m = 0.43 \mu m, e = 2.51$ ). ces

données nous ont permis de tracer la distribution de taille normalisée  $g(r)$  Figure III-2. Le calcul du nombre total de particules  $N_0(z)$  en fonction de la distance est accessible .

Les signaux lidar bruts sont traités en les multipliant par  $Z^2$  puis prisent en logarithme népérien.

La fonction  $L(z)$  du Signal traité est similaire à celle mesuré dans la campagne ELO [ 40] (Figure III-3) est utilisée dans l'équation III-4 pour l'inversion de  $K_{\text{klett}}$  pour extraire les deux paramètres  $b_{\text{Aero}}$  et  $a_{\text{ext}}^{\text{Aero}}$  .

On remarque une nette augmentation de la courbe  $L(z)$  vers une distance de 2000 m. Signifie une baisse importante du coefficient de rétrodiffusion, provenant d'une diminution de la concentration en aérosols .cette diminution signifie aussi un dépassement de la couche limite.

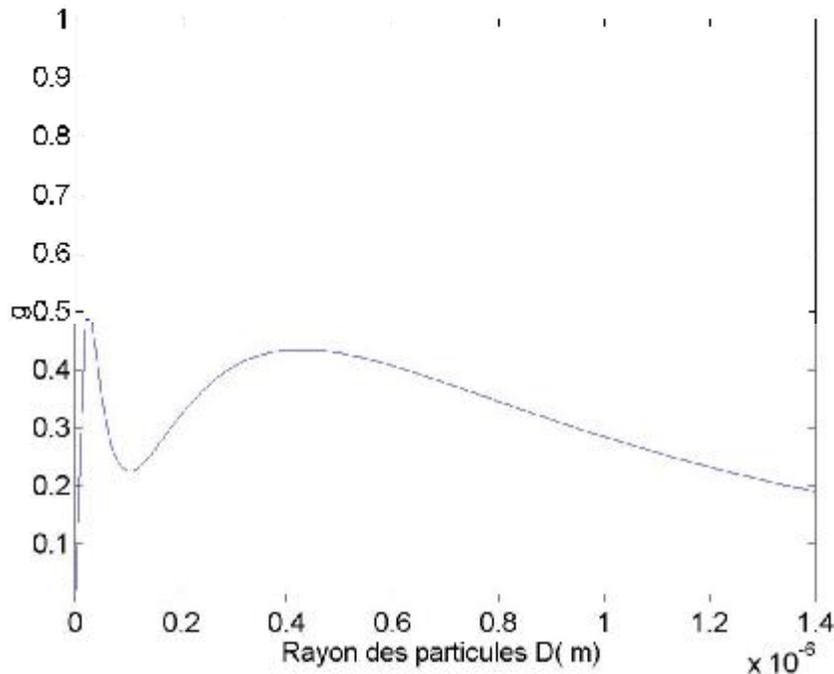


Figure III-2 : Distribution de taille normalisée  $g(r)$  des aérosols urbains *Shettle et Fenn* [20]

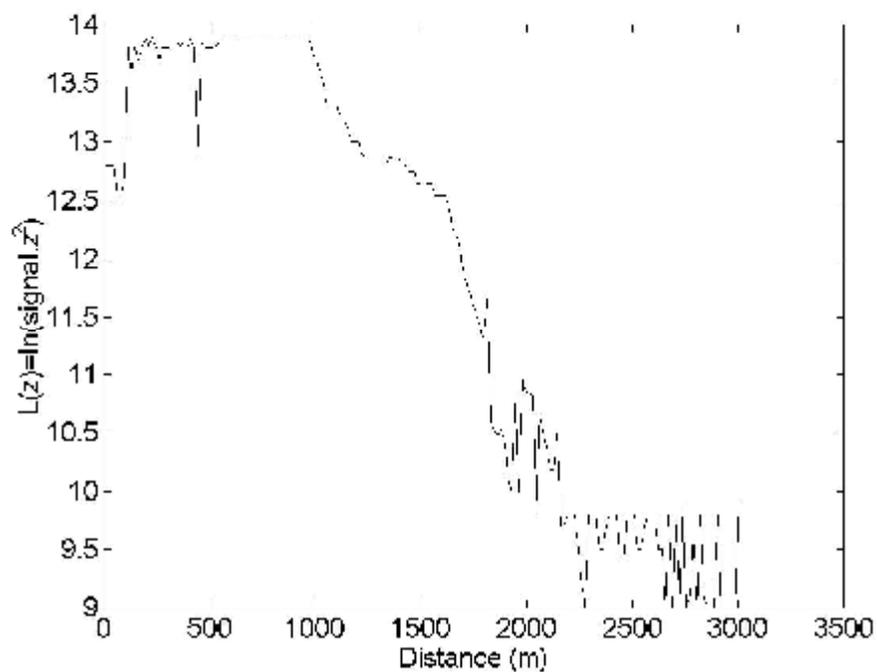
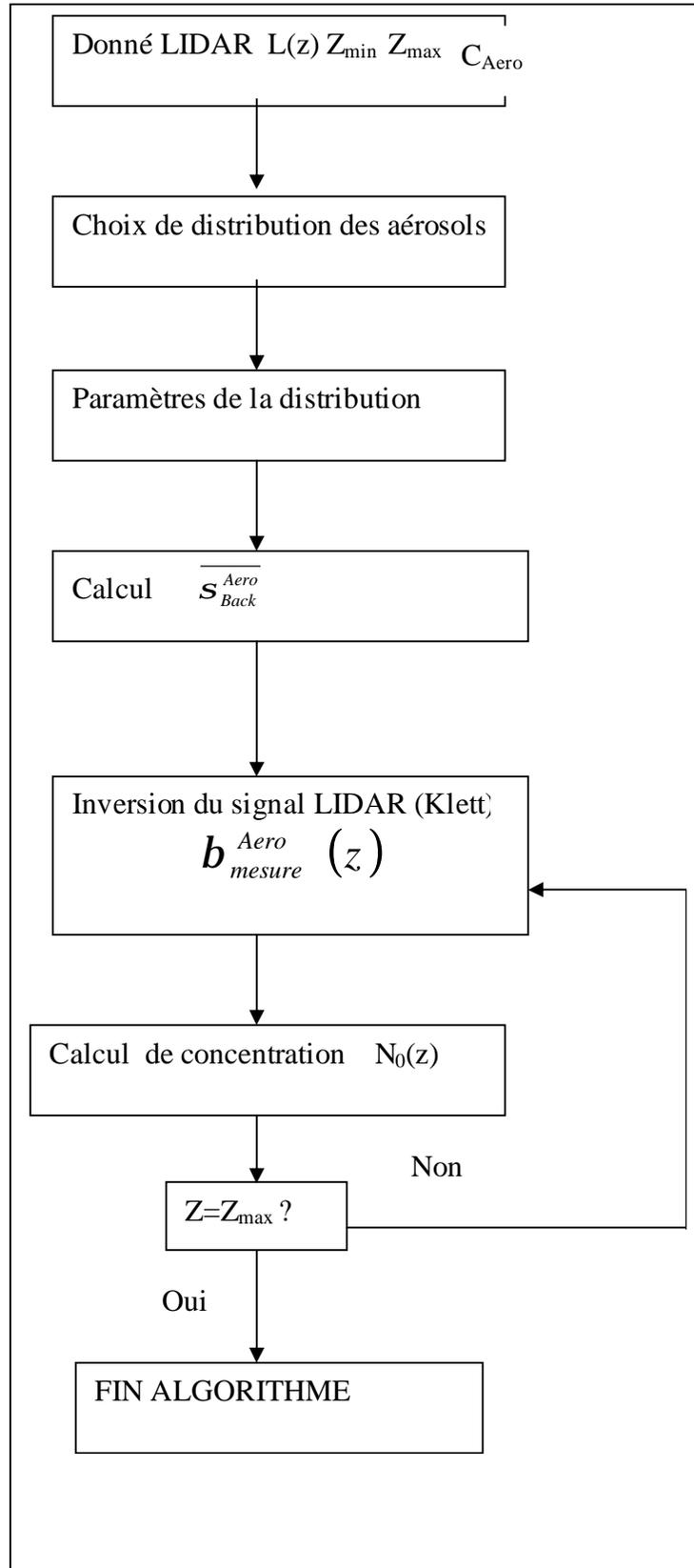


Figure III-3. Logarithme du signal lidar corrigé en distance  $L(z)$ .

Ce signal a aux mêmes caractéristiques que celui mesuré dans la campagne ELO [40].



### III-5 Résultat des calculs de la concentration :

#### III-5-1 Calcul de la concentration d'aérosols par un lidar à $0.532\mu\text{m}$ :

Les résultats obtenus pour le rapport  $a_{ext}(z)/b(z)$  à partir de la procédure décrite au début de ce chapitre, sont présentés Figure III-4. Notons que pour les distances supérieures à 2000 m, le rapport reste égal à  $8\pi/3$  soit environ 8,4. Ceci signifie que seule la contribution Rayleigh est encore présente et donc que la contribution des aérosols est quasi nulle.

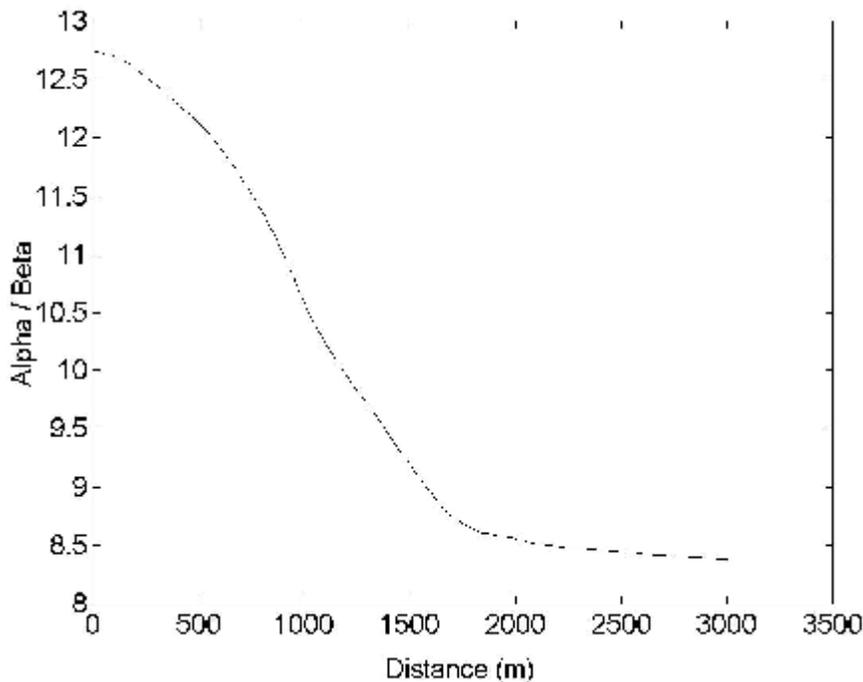


Figure III-4.  $a_{ext}(z)/b(z)$  en fonction de la distance

Après avoir calculé la section efficace de rétrodiffusion moyenne par particule  $\overline{S_{Back}^{Aero}} = 0.00389$  pour la distribution de taille normalisée  $g(r)$  (figure III-2), nous avons pu calculer et tracer le profil de la concentration d'aérosols par rapport à l'altitude.

La Figure III-5 montre le profil de concentration calculé à partir du signal lidar similaire (même forme) que celui obtenu par la référence [40]. La concentration atteint ici une valeur maximale de

7  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  et devient presque nul, après une distance supérieure ou égale à 2200 m, ce qui vérifie *a posteriori* l'hypothèse  $b_{Aero}(z_m)=0$ .

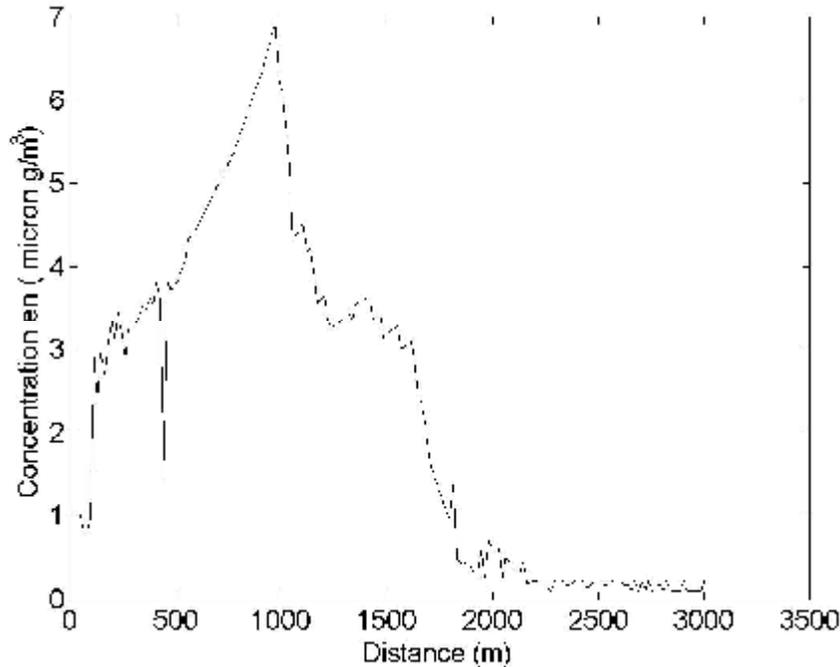


Figure III-5. Concentration en fonction de la distance

Le calcul de la concentration est obtenu à partir du signal lidar (à la même caractéristique) à celui mesuré dans la campagne ELO[40].

### III-5-2 calculs de la concentration d'aérosols par un lidar à 3,5 $\mu\text{m}$ lors d'un épisode de brume :

Nous avons obtenu des informations quantitatives sur la concentration et la taille des gouttelettes d'eau par un signal LIDAR d'une longueur d'onde 3,5  $\mu\text{m}$  figure (III-6), puisque le LIDAR en l'infrarouge moyen est plus sensible aux aérosols de la taille du micron ou de quelques microns, alors qu'en ultraviolet il est plus sensible aux petites tailles, l'inversion des signaux lidar ont été effectués. Pour cela, le même algorithme de Klett a été utilisé, en faisant comme hypothèse que la seule contribution aux coefficients d'extinction  $a_{ext}$  et de rétrodiffusion  $b$  est la diffusion de Mie due aux gouttelettes d'eau. De plus, comme la couche de brume est

d'épaisseur fine, le coefficient de rétrodiffusion  $b(z_m)$ , au delà de cette couche (en fin de signal) est considéré comme nul. Pour utiliser cet algorithme, il est également nécessaire de connaître la valeur de l'indice de réfraction des particules présentes. A  $3,5 \mu\text{m}$ , l'indice de réfraction complexe est  $m = 1,384 - 9,39 \cdot 10^{-3}i$ . L'évolution du rapport  $a_{ext}/b$  avec la distance, obtenu avec l'algorithme d'inversion, est présentée tout au long du trajet dans la couche de brume, le rapport  $a_{ext}/b$  est constant et égal à  $14 \pm 2 \text{ sr}$ , ce qui signifie que la taille des particules ne change pratiquement pas avec l'altitude (figure III-7).

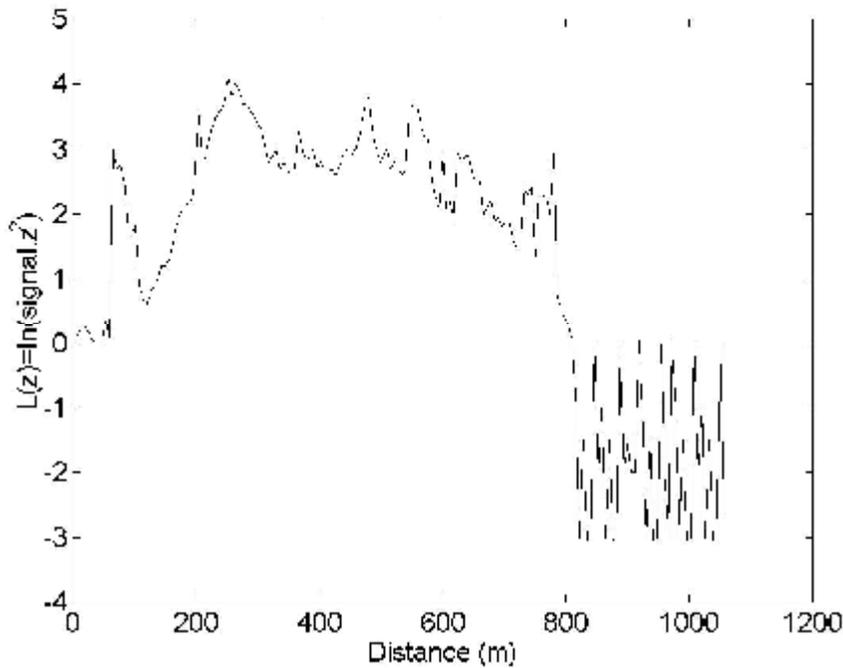


Figure III-6. Profil lidar obtenu à  $3,5 \mu\text{m}$  en fonction de l'altitude après filtrage du bruit.

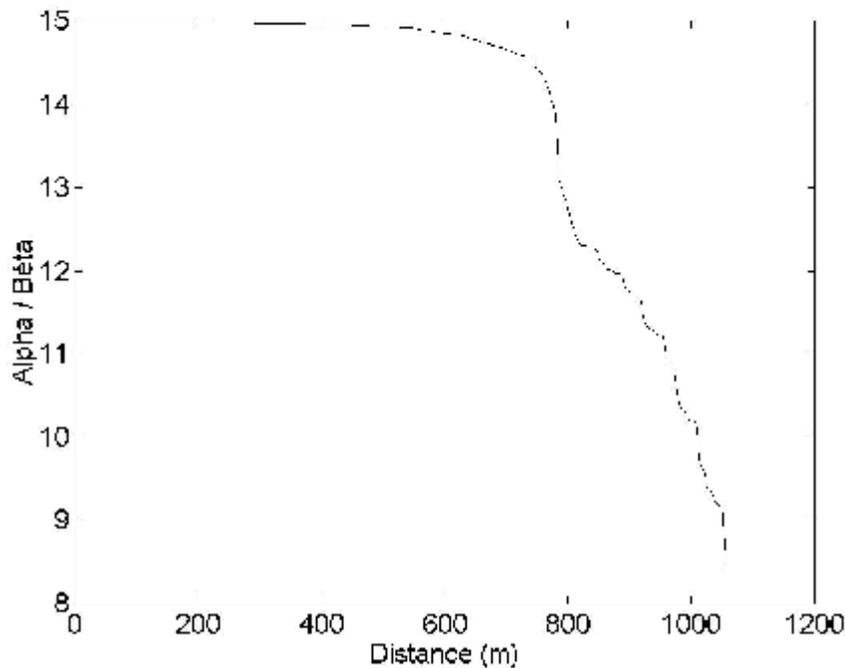


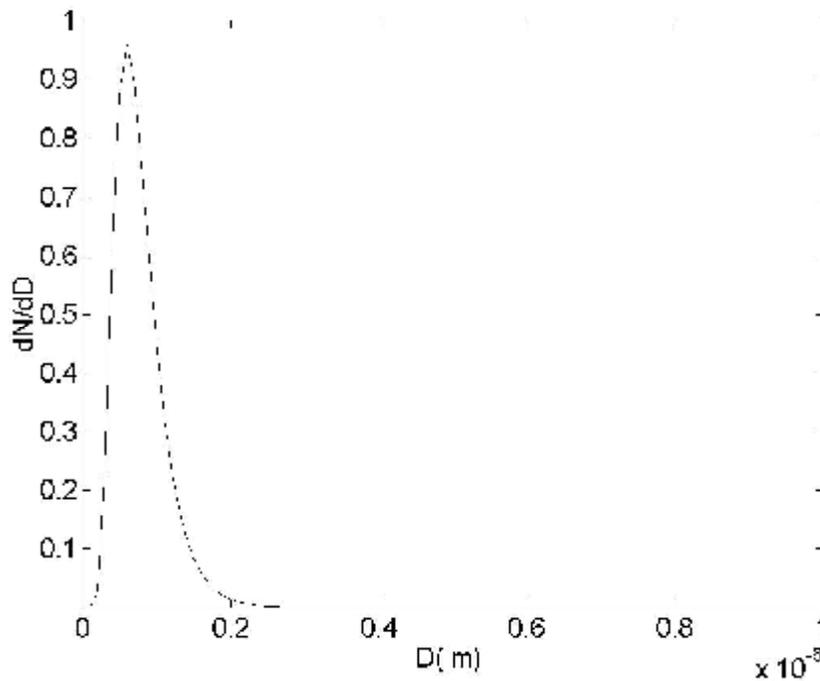
Figure III-7 :  $a_{ext}(z)/b(z)$  en fonction de la distance

Avec l'inversion des données, les coefficients  $a_{ext}$  et  $b$  et le rapport  $a_{ext}/b$  sont connus. Le rayon le plus probable pour les particules peut alors être calculé. Pour cela, les sections efficaces d'extinction  $S_{ext}(r)$  et de rétrodiffusion  $S_{back}(r)$  sont calculées en fonction du rayon (pour  $\lambda = 3,5 \mu\text{m}$ ) avec la théorie de la diffusion de Mie. A la vue de ces valeurs, seules une plage de rayons ( $0.03- 0.1 \mu\text{m}$ ) est susceptible de convenir pour obtenir le rapport  $a_{ext}/b$  trouvé expérimentalement. Etant donné les conditions dans les quelles ont été effectuées les mesures, une distribution de taille de type log-normale, représentative d'une atmosphère brumeuse ou nuageuse, est choisie. Les sections efficaces de rétrodiffusion moyenne  $\overline{S_{Back}^{Aero}}$  et d'extinction moyenne  $\overline{S_{Ext}^{Aero}}$  sont alors calculées à partir des sections efficaces de rétrodiffusion et d'extinction et de la distribution de taille normalisées  $g(r)$  (équations III-18). Le calcul est effectué pour différentes valeurs du rayon  $D_m$ , correspondant au rayon médian de la distribution, et de l'écart quadratique moyen  $e$  de celle-ci.

Où  $N_{Aero}(z)$  est le nombre total de particules.

On obtient donc le rapport  $\overline{s_{Ext}^{Aero}} / \overline{s_{Back}^{Aero}}$  (qui est égal au rapport  $a_{ext}/b$ ), pour différents couples de valeurs  $\{D_m, e\}$ . Les valeurs du rayon  $D_m$  sont prises sur la plage susceptible de convenir. Pour les rayons  $D_m$  compris entre  $0.03\mu\text{m}$  et  $0.1\mu\text{m}$ , le rapport obtenu est de  $14.5\text{sr}$ , pour une distribution log-normale avec un rayon  $D_m$  égal à  $0.1\mu\text{m}$  et un écart quadratique moyen  $e$  égal à  $1.24$  (Figure III-7). Cette valeur de  $14.5\text{sr}$  se situe dans la marge d'erreur du rapport déterminé à partir de l'inversion lidar ( $a_{ext}/b = 14 \pm 2\text{sr}$ ). Il faut souligner que les valeurs trouvées pour  $D_m$  et  $e$  sont seulement les valeurs les plus probables. La concentration en  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  est calculée à partir de la distribution de taille normalisée.

Connaissant  $\overline{s_{Ext}^{Aero}}$  (à  $I = 3,5\mu\text{m}$ ) pour une distribution de taille des gouttelettes d'eau centrées sur un rayon  $D_m = 0.1\mu\text{m}$  ( $\overline{s_{Ext}^{Aero}} = 9.10^{-15}\text{m}^2$ ) et le coefficient d'extinction  $a_{ext} = 0,53\text{km}^{-1}$  (d'où  $b = 3.35 \cdot 10^{-2}\text{km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$ ) la valeur de  $N_{Aero}(z)$  est estimée à  $3.5 \cdot 10^4\text{part./cm}^3$  et la concentration maximal dans la couche de brume est  $11.88\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ .



**Figure III-8.** Distribution log-normale obtenue pour un rayon moyen  $D_m = 0,1\mu\text{m}$  et un écart quadratique  $e = 1.64$ .

**Conclusion :**

Après avoir utilisé la méthode d'inversion de klett pour inverser les données lidar et obtenir les coefficients de rétrodiffusions , d'extinctions et le rapport  $a_{ext}/b$  mesurés, en fonction de l'altitude. Nous avons utilisé les propriétés optiques des aérosols et des particules brumeuses, et en particulier les efficacités d'extinction et de rétrodiffusion. Par le choix d'une distribution dimensionnelle de taille de type lognormale nous avons pu calculer théoriquement les coefficients d'extinction et rétrodiffusion des particules qui constituent un environnement d'une zone urbaine (d'après le model de *Shettle et Fenn* [20]). Avec la méthode lidar, (en ultraviolet) nous avons pu obtenir l'évolution de la concentration d'aérosol en fonction de l'altitude, et des informations microphysiques caractérisants les particules issues d'un épisode de brume avec un lidar (en infrarouge) sensible aux particules de taille ( $\approx 1\mu m$ ).

## Conclusions générales et perspectives

Les aérosols sont des composantes essentielles de la pollution urbaine et de la physico-chimie de l'atmosphère.

La quantification des relations entre propriétés microphysiques et propriétés optiques ou radiatives des particules nuageuses nous a inévitablement conduit à nous intéresser, tout d'abord, à la modélisation physique des processus de diffusion et d'absorption de la lumière par des particules de formes, de tailles et de compositions différentes. Au regard de la grande variabilité des propriétés morphologiques des particules présentes dans les nuages de glace ou en phase mixte, un modèle microphysique a été utilisé. Ce modèle est basé sur une particule sphérique d'eau liquide (brume) et d'une particule sphérique de nuages.

Les propriétés optiques peuvent ainsi être calculées sur un grand domaine de tailles (de quelques microns à quelques centaines de microns), à partir de la théorie de Mie pour les particules sphériques. Cette approche est relativement réaliste d'un point de vue microphysique, car elle permet de simuler des propriétés optiques réalistes quel que soit la phase thermodynamique du nuage. Le calcul de la fonction de phase de diffusion nous a permis de constater l'influence de la variation des propriétés microphysique (taille, phase thermodynamique) sur les propriétés optiques des nuages.

Dans le deuxième chapitre nous avons utilisé les mesures obtenues par ESCOMPT caractérisant les propriétés microphysiques ( $D_m, e$ ) des différentes espèces chimiques d'aérosols qui sont cohérentes avec celles référencées dans la littérature, sur les zones relativement similaires (milieu urbain côtier).

Nous avons vu que les aérosols anthropiques composent principalement le mode *accumulation*, sauf dans le cas de nitrates, retrouvé en majorité sur le mode *coarse*. L'influence de direct de l'humidité sur les comportement optique des aérosols susceptibles de condensés la vapeur d'eau à leur surfaces. Les propriétés optiques des différentes espèces d'aérosols ont ensuite été déterminées indiquant 90% de l'extinction à une longueur d'onde de 532 nm est due

à l'aérosol anthropique et 10% à l'aérosol naturel. Le sulfate d'ammonium (AS) contribue pour 45 % à l'extinction, le carbone suie (BC) pour 20 % et la matière organique particulaire (POM) pour 20 % également à 532 nm. Les nitrates (N) y participent plus faiblement.

La caractérisation des propriétés optiques des particules nuageuses, brumeuses et les différentes espèces chimiques d'aérosols nous ont permis d'exploiter les mesures LIDAR d'aérosols pour accéder à l'évolution des concentrations spatialement. Pour cela nous avons utilisé un lidar mono-fréquence dans l'ultraviolet sensible aux petites particules  $\lambda = 0.532\text{mm}$ , couplé à des données microphysiques ( $D_m, e$ ), obtenues d'un modèle de *Shettle et Fenn*. Puis nous avons utilisé les mesures d'un lidar mono-fréquence à  $\lambda = 3.5\text{mm}$  lors d'un épisode de brume. Cette longueur d'onde, a été choisie pour que la transmission soit maximale, ce qui a permis au rayon laser de traverser entièrement la couche de brume. La distribution de taille de la couche de brume a été calculée en fonction de l'altitude.

Comme perspective nous proposons de faire la simulation d'un LIDAR multi longueur d'onde, et de développer un modèle microphysique hybride basé sur une combinaison de particules sphériques d'eau liquide et de cristaux hexagonaux de rapport d'aspect variable. Afin de calculer les propriétés optiques caractérisant les particules de forme fractale (nuage type cirrus, aérosol de forme fractale).

## **Annexe A. Eléments de base de la théorie de la diffusion simple**

### **A.1. Introduction**

L'étude des processus d'interaction nuage rayonnement passe par la compréhension de l'ensemble des effets produits par des discontinuités sur une onde électromagnétique plane. De façon qualitative on peut tenter de cerner le principe de diffusion en considérant une particule quelconque irradiée par une onde électromagnétique. Lorsqu'une onde lumineuse se propage dans un milieu semi-transparent, elle provoque un mouvement oscillatoire forcé des charges électriques des particules. Ces dernières se comportent alors comme des dipôles électriques oscillant à la fréquence du champ appliqué et émettent un rayonnement secondaire polarisé dans certaines directions selon la théorie électromagnétique classique.

Dans une direction donnée, le champ résultant est obtenu en superposant les ondes diffusées tout en prenant en compte leur différence de phase. En général, les relations de phase varient avec les directions de diffusion, le champ diffusé devrait donc changer avec ces mêmes directions. Si la taille de la particule est petite par rapport à la longueur d'onde, toutes les ondes secondaires sont en phase, et il n'y a que très peu de variation de la diffusion avec la direction. Si la taille de la particule augmente, des discontinuités (pics et vallées), dues à l'annulation ou l'amplification mutuelle des ondes secondaires diffusées apparaissent alors dans la figure de diffusion (effet de diffraction).

De manière générale, les relations de phase entre les ondes diffusées dépendent de facteurs géométriques (direction de diffusion, taille et forme des particules). Mais l'amplitude et la phase des moments dipolaires induits pour une fréquence donnée dépendent de la composition chimique de la particule (indice de réfraction).

D'autre part, les phénomènes de diffusion provoqués par la perturbation d'une onde électromagnétique dans un milieu hétérogène constituent une source de polarisation de la lumière

naturelle. Afin de mieux comprendre ces phénomènes il convient d'introduire quelques notions théoriques.

## A.2. Etat de Polarisation des ondes lumineuses

Une onde plane monochromatique solution de l'équation de propagation, déduite des équations de Maxwell, est caractérisée par ses champs électrique et magnétique  $\mathbf{E}$  et  $\mathbf{B}$ . On peut considérer cette onde séparément comme la somme de deux champs perpendiculaires qui se propagent suivant la direction normale au plan qu'ils forment. En notation complexe, l'onde incidente irradiant une particule diffusante a pour expression :

$$\Psi(r, t) = A \exp[-i(\omega t - k \cdot r - j)] \quad (\text{A1})$$

$k = (\omega/v)\mathbf{u}$  désigne le vecteur d'onde où  $\mathbf{u}$  est le vecteur unitaire de direction donnée,  $\omega$  la pulsation et  $v$  la célérité de l'onde dans le milieu considéré.  $\varphi$  représente le terme constant de phase. La partie réelle de l'expression ci-dessus représente une grandeur physique de type champ électrique ou champ magnétique. On obtient donc :

$$\Psi(r, t) = A \cos(\omega t - k \cdot r - j) \quad (\text{A2})$$

En prenant en considération la possibilité de séparer les champs électromagnétiques en deux composantes orthogonales on a :

$$\mathbf{E} = E_r \mathbf{e}_r + E_l \mathbf{e}_l = a_r \cos(\omega t) \mathbf{e}_r + a_l \cos(\omega t - \Phi) \mathbf{e}_l \quad (\text{A3})$$

$\mathbf{e}_r$  et  $\mathbf{e}_l$  sont des vecteurs orthogonaux unitaires,  $\Phi$  le retard de phase de  $E_l$  par rapport à  $E_r$ .

Si on se place dans la base  $(\mathbf{e}_r, \mathbf{e}_l)$ ,  $\mathbf{E}$  aura pour composantes  $E_r$  et  $E_l$  reliées par l'équation :

$$\frac{E_r^2}{a_r^2} + \frac{E_l^2}{a_l^2} - 2 \frac{E_r E_l}{a_r a_l} \cos \Phi = \sin^2 \Phi \quad (\text{A4})$$

L'extrémité du champ électrique  $\mathbf{E}$  décrit alors une ellipse dite ellipse de vibration représentant l'état de polarisation de l'onde électromagnétique, le sens de parcours étant décrit dans le sens trigonométrique. Lorsque,  $\Phi = \pm\pi/2$  et  $a_r = a_l = a_0$  l'onde sera polarisée circulairement.

Une onde polarisée de façon quelconque est donc caractérisée par trois paramètres indépendants, les amplitudes  $a_r$ ,  $a_l$ , et le retard de phase  $\Phi$ . En prenant en considération la géométrie de l'onde polarisée, il est possible de choisir un autre triplet, dans la base  $(\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y)$  liée

aux axes de l'ellipse, constitué par les demi-axes( $a,b$ ) de l'ellipse et par son angle d'inclinaison  $\psi$  par rapport à l'axe initial ( $Or$ ). L'ellipse est alors représentée par son équation canonique :

$$\frac{E_x}{a^2} + \frac{E_y}{b^2} = 1 \quad (\text{A5})$$

Il est également possible de s'intéresser à un triplet lié à la sphère de Poincaré, constitué de l'intensité  $I$ , de l'angle d'inclinaison de l'ellipse  $\psi$  et de l'angle  $\eta$ . Ces paramètres sont définis de la façon suivante :

$$I = a_r^2 + a_l^2 \quad \Psi = (e_r, e_x) \quad \tan h = \pm \frac{b}{a} \quad (\text{A6})$$

Le point représentatif d'une onde polarisée d'intensité déterminée  $I$  est alors situé sur une sphère appelée sphère de Poincaré d'azimut  $2\psi$  et de latitude  $2\eta$ . Les coordonnées de ce point sont notées ( $Q,U,V$ ) telles que :

$$\begin{aligned} Q &= I \cos(2h) \cos(2\Psi) & U &= I \cos(2h) \sin(2\Psi) \\ V &= I \sin(2h) & I^2 &= Q^2 + U^2 + V^2 \end{aligned} \quad (\text{A7})$$

L'ensemble des quatre quantités ( $I,Q,U,V$ ) représente l'état de polarisation de l'onde, ce sont les paramètres de Stokes [41]. Pour une onde se propageant selon l'axe ( $Oz$ ), les deux composantes du champ électrique peuvent s'écrire ainsi :

$$\begin{aligned} E_l &= a_l \exp(-ie_1) \exp(-ikz + i\omega t) \\ E_r &= a_r \exp(-e_2) \exp(-ikz + i\omega t) \end{aligned} \quad (\text{A8})$$

Les paramètres de Stokes s'expriment alors par les relations (A9), à un facteur constant et commun près, [Pérez, 1996]:

$$\begin{aligned} I &= E_r E_r^* + E_l E_l^* = a_r^2 + a_l^2 \\ Q &= E_l E_l^* - E_r E_r^* = a_l^2 - a_r^2 = I \cos(2h) \cos(2\psi) \\ U &= E_l E_r^* + E_r E_l^* = 2a_r a_l \cos(\Phi) = I \cos(2h) \sin(2\psi) \\ V &= i(E_l E_r^* - E_r E_l^*) = 2a_r a_l \sin(\Phi) = I \sin(2h) \end{aligned} \quad (\text{A9})$$

$\Phi = (\epsilon_1 - \epsilon_2)$  correspond dans ce cas là à la différence de phase.

Ces quatre paramètres décrivent complètement l'état de polarisation d'une onde électromagnétique. Ils ont la dimension d'une énergie ce qui les rend additifs. Les paramètres de Stokes d'un faisceau lumineux composé de plusieurs ondes dans des états de polarisation différents peuvent être calculés en ajoutant les paramètres de chaque rayon lumineux. Les conséquences de cette propriété justifient leur utilisation dans les modèles numériques de lancer de rayons (ray-tracing). D'autre part, certains paramètres, comme le degré de polarisation ( $P$ ) d'une onde, le degré de polarisation circulaire ( $V/I$ ) sont des quantités facilement mesurables. Le degré de polarisation ( $P$ ) est alors défini par (dans le cas d'une polarisation linéaire,  $V=0$ ) :

$$P = \frac{(Q^2 + U^2 + V^2)^{1/2}}{I} \quad (\text{A10})$$

Nous venons de décrire les paramètres relatifs à une onde électromagnétique polarisée, nous allons à présent nous intéresser à la caractérisation de la diffusion d'une onde par une mono particule.

### A.3. Interaction onde plane-particule : matrice d'amplitude

On considère une particule de taille, de forme et de composition chimique arbitraire éclairée par une onde plane scalaire se propageant selon la direction ( $Oz$ ). La composante quelconque de champ de cette onde incidente de pulsation  $\omega$  et de nombre d'onde  $k$  peut alors s'écrire très classiquement :

$$u_0 = \exp(-ikz + i\omega t) \quad (\text{A11})$$

L'onde diffusée à grande distance est supposée sphérique. Cette hypothèse est vérifiée dans le cas de particules sphériques et pour la plupart des particules de forme irrégulière. La fonction d'onde prend alors la forme suivante,  $r$  désignant l'abscisse radiale ou la distance entre la particule et point d'observation de diffusion :

$$u = S(q, j) \frac{\exp(-ikr + ikz)}{ikr} u_0 \quad (\text{A12})$$

Les relations de continuités de la composante tangentielle du champ électrique dérivées des équations de Maxwell permettent de conclure sur la linéarité des processus mis en jeu lors du

passage d'une amplitude de champ incident à une amplitude de champ diffusé. En décomposant les champs électriques incident  $\mathbf{E}_0$  et diffusé  $\mathbf{E}$  en deux composantes orthogonales suivant l'équation (A3), on obtient alors la relation générale suivante :

$$\begin{pmatrix} E_l \\ E_r \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} S_2 & S_3 \\ S_4 & S_1 \end{pmatrix} \frac{\exp(-ikr + ikz)}{ikz} \begin{pmatrix} E_{l0} \\ E_{r0} \end{pmatrix} \quad (\text{A13})$$

La diffusion dans n'importe quelle direction est alors complètement décrite par la matrice 2x2  $S(\theta, \varphi)$  des amplitudes. Cette matrice des amplitudes ou matrice de Müller [Müller, 1948] est composée de coefficients, en général complexes, dépendant des angles zénithal et azimutal de diffusion  $\theta$  et  $\varphi$  et des propriétés optiques du diffuseur (taille, forme et indice complexe de réfraction).

La plupart du temps, ces formules sont utilisées pour des particules sphériques dans le cadre de la théorie de Mie. La sphéricité des particules induit des symétries au sein de la matrice d'amplitude la transformant en matrice diagonale. Dans ce cas,  $S_3=S_4=0$  et les relations suivantes peuvent alors être utilisées :

$$\begin{aligned} E_r &= S_1(q) \frac{\exp(-ikr + ikz)}{ikr} E_{r0} \\ E_l &= S_1(q) \frac{\exp(-ikr + ikz)}{ikr} E_{l0} \end{aligned} \quad (\text{A14})$$

#### A.4. Matrice de phase et de diffusion d'une particule

Afin de décrire le rayonnement diffusé et son état de polarisation, la relation (A13) peut être appliquée aux paramètres de Stokes. Les paramètres de Stokes  $(I, Q, U, V)$  de l'onde diffusée sont alors une combinaison linéaire des paramètres  $(I_0, Q_0, U_0, V_0)$  de l'onde incidente exprimée par l'intermédiaire de la matrice de phase  $F$  :

$$\{I, Q, U, V\} = \frac{1}{k^2 r^2} F \{I_0, Q_0, U_0, V_0\} \quad (\text{A15})$$

$F$  est une matrice 4x4 asymétrique. Chacune de ses 16 composantes est une fonction qui dépend des directions de diffusion  $\theta$  et  $\varphi$ . Les éléments de la matrice  $F$  peuvent se déduire facilement de la matrice des amplitudes  $S$  [Bohren et Huffman, 1983].

Pour des particules orientées aléatoirement dans l'espace et présentant un plan de symétrie, la matrice  $F$  présente une dépendance angulaire uniquement sur  $\theta$  et n'est composée que de 6 paramètres indépendants :

$$F = \begin{pmatrix} F_{11} & F_{12} & 0 & 0 \\ F_{12} & F_{22} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & F_{33} & F_{34} \\ 0 & 0 & -F_{34} & F_{44} \end{pmatrix} \quad (\text{A16})$$

Le coefficient  $F_{11}$  est alors assimilé à une fonction de phase non normalisée. D'autre part, dans le cas particulier de particules sphériques, il n'y a plus que 4 paramètres indépendants décrits par la relation suivante :

$$\begin{aligned} F_{11}(\mathbf{q}) &= F_{22}(\mathbf{q}) \\ F_{33}(\mathbf{q}) &= F_{44}(\mathbf{q}) \\ F_{11}^2(\mathbf{q}) - F_{33}^2(\mathbf{q}) - F_{12}^2(\mathbf{q}) - F_{34}^2(\mathbf{q}) &= 0 \end{aligned} \quad (\text{A17})$$

En transfert radiatif, on s'intéresse plutôt à la matrice de diffusion  $P$ , équivalente à une matrice  $F$  qui serait normalisée. Le premier élément  $P_{11}$  représente alors la fonction de phase normalisée pour une particule unique. Il est normalisé selon :

$$\frac{1}{4\pi} \int_0^{4\pi} P_{11}(\Omega) d\Omega = 1 \quad (\text{A18})$$

où  $d\Omega = \sin\theta d\theta d\varphi$  correspond à l'élément d'angle solide, en stéradian [sr], autour d'une direction de diffusion  $(\theta, \varphi)$ .  $P_{11}$  est donc une fonction sans unité de la direction et dépend de l'orientation de la particule par rapport au faisceau incident. Evidemment, cette fonction de phase dépend aussi de la taille, de la forme et de la composition physico-chimique de la particule (indice de réfraction). Le diagramme de diffusion d'une particule correspond alors au tracé de  $P_{11}(\theta, \varphi)$  en fonction de  $\theta$  dans un plan fixe autour de l'onde incidente.

Dans le cadre des approximations concernant l'orientation aléatoire des particules, l'expression de la fonction de phase se simplifie, et la relation suivante devient alors valide :

$$\frac{1}{4\pi} \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} P_{11}(\mathbf{q}, \mathbf{j}) \sin q dq dj = \frac{1}{4\pi} \int_0^{\pi} 2\pi P_{11} \sin q dq = 1 \quad (\text{A19})$$

Afin, d'établir la relation entre la matrice de diffusion  $P$  et la matrice de phase  $F$ , il convient de définir une grandeur appelée section efficace de diffusion  $C_{sc}$  de la particule irradiée par l'onde électromagnétique incidente.  $C_{sc}$  représente la surface qui reçoit la même quantité d'énergie que celle qui est diffusée dans toutes les directions par la particule, elle est donc définie par

$$C_{sc} = \frac{1}{k^2} \int F_{11}(\Omega) d\Omega = \frac{1}{k^2} \int_0^{2p} \int_0^p F_{11}(q) \sin q \, dq \, dj \quad (\text{A20})$$

En identifiant les équations (A19) et (A20), on en déduit facilement la relation générale de passage entre les deux matrices :

$$\frac{P}{4p} = \frac{1}{C_{sc} k^2} F \quad (\text{A21})$$

L'intensité de la lumière diffusée en un point de distance  $r$  de la particule devient alors facilement quantifiable à partir de la fonction de phase et du nombre d'onde  $k$  du milieu environnant la particule :

$$I = \frac{I_0 F_{11} C_{sc}}{k^2 r^2} = \frac{I_0 P_{11}}{4p} \Omega_{sc} \quad (\text{A22})$$

Si l'on contrôle l'intensité  $I_0$  ou la puissance de la lumière incidente dans l'angle solide  $\Omega_{sc}$  associé à la diffusion et que l'intensité diffusée est mesurable, alors on peut en déduire la fonction de phase de la particule irradiée et donc remonter à ses caractéristiques microphysiques et structurelles.

Les matrices de diffusion et de phase permettent également de définir un certain nombre de grandeurs optiques caractéristiques des propriétés de diffusion des particules atmosphériques. Par la suite, nous ne nous intéresserons plus au phénomène de polarisation de la lumière et les particules échantillonnées seront considérées comme ayant une orientation aléatoire.

## A.5. Détermination des paramètres optiques intégrés

Les processus de diffusion peuvent être décrit par des quantités traduisant la loi de conservation de l'énergie. Ces grandeurs jouent un rôle prépondérant dans la résolution de l'équation du transfert radiatif. L'énergie totale diffusée dans toutes les directions peut être

assimilée à l'énergie de l'onde incidente tombant sur une surface  $C_{sc}$ . La section efficace de diffusion,  $C_{sc}$ , est alors définie dans le cadre de notre approximation par :

$$C_{sc} = \frac{1}{k^2} \int F_{11}(\Omega) d\Omega = \frac{2p}{k^2} \int_0^p F_{11}(q) \sin q dq \quad (A23)$$

De la même façon on peut assimiler l'énergie absorbée et l'énergie interceptée par la particule comme étant l'énergie tombant respectivement sur les surfaces  $C_{ab}$  et  $C_{ex}$ . En prenant en compte les phénomènes d'interférences entre champ incident et champ diffusé dans la direction de diffusion avant ( $\theta=0^\circ$ ), la section efficace d'extinction s'exprime de façon générale par l'intermédiaire de la partie réelle de la matrice d'amplitude  $S$  :

$$S_{ext} = \frac{4p}{k^2} \Re\{S(q=0^\circ)\} \quad (A24)$$

D'autre part, la loi de conservation de l'énergie permet de relier ces trois sections efficaces :

$$C_{ext} = C_{sc} + C_{ab} \quad (A25)$$

En accord, avec ces paramètres de la dimension d'une surface ( $\mu\text{m}$ ), il est possible de définir des grandeurs sans dimensions appelées efficacité de diffusion, d'absorption ou d'extinction quantifiant la diminution d'énergie incidente par une particule:

$$Q_{sc} = \frac{S_{sc}}{G} \quad Q_{ext} = \frac{S_{ext}}{G} \quad Q_{ab} = \frac{S_{ab}}{G} \quad (A26)$$

$G$  représente la section droite géométrique de la particule ou la moyenne des surfaces géométriques projetées pour des particules. Pour une particule de forme hexagonale orientée aléatoirement,  $G$  est égal au quart de sa surface totale [42]. La section droite géométrique correspond à  $\pi a^2$  pour une particule sphérique,  $a$  désignant le rayon de la particule.

Lorsque les particules sont de grandes tailles, leur coefficient d'extinction tend asymptotiquement vers 2. Par conséquent, ces particules atténuent deux fois plus d'énergie que le ferait leur section droite géométrique. Elles interceptent donc deux fois plus d'énergie que le prédiraient les lois de l'optique géométrique. Cette apparente contradiction provient du phénomène de diffraction de la lumière sur les bords de la particule qui contribue pour moitié à l'extinction totale.

Les variations de ces coefficients en fonction de la longueur d'onde, de la forme et de la taille des particules sont à la base des techniques de restitution de paramètres microphysiques par télédétection passive.

A partir du rapport entre les coefficients de diffusion et d'extinction, il est possible de déterminer un paramètre appelé albédo de diffusion simple,  $w_{sc}$ , correspondant à la fraction de lumière diffusée par une particule :

$$w_{sc} = \frac{Q_{sc}}{Q_{ext}} = \frac{S_{sc}}{S_{ext}} \quad (A27)$$

Cette grandeur est particulièrement importante dans la résolution de l'équation du transfert radiatif puisqu'elle représente la probabilité pour qu'un photon soit diffusé plutôt qu'absorbé lors de son interaction avec une particule à une longueur d'onde donnée.

Un autre paramètre, le facteur d'asymétrie  $g$ , peut être utilisé pour caractériser la diffusion par une particule. Il est défini par l'intermédiaire de la fonction de phase et du cosinus de l'angle de diffusion. Si on pose  $\mu = \cos\theta$ , le facteur d'asymétrie s'exprime selon :

$$g = \langle \cos q \rangle = \frac{\int_0^{\pi} 2p \sin q F_{11}(q) \cos q dq}{k^2 S_{sc}} = \frac{1}{2} \int_{-1}^1 P_{11}(m) m dm \quad (A28)$$

La valeur de  $g$  est comprise entre  $-1$  et  $1$  et permet de déterminer la quantité de lumière diffusée vers l'avant ou vers l'arrière. Pour une valeur positive de  $g$ , la diffusion en direction de lumière incidente sera prépondérante, pour une valeur négative, la diffusion sera principalement dirigée dans une direction opposée à la direction de la lumière incidente (rétro diffusion). Une valeur de  $g=0$  indique une diffusion isotrope.

## Annexe B . Calcul des coefficients d'une sphère homogène et enduit

### B-1. Calcul des coefficients d'une sphère homogène:

Nous allons introduire dans ce qui suit le calcul des coefficients de diffusion  $a_n$  et  $b_n$ , pour une particule considéré sphérique. Ces coefficients permet de calculé les fonction amplitude du champ de diffusion, et considéré comme les principaux paramètre de diffusion de Mie.

$$\begin{cases} a_n = \frac{y_n'(mx)y_n(x) - my_n'(mx)y_n'(x)}{y_n'(mx)x_n(x) - y_n(mx)x_n'(x)} \\ b_n = \frac{my_n'(mx)y_n(x) - y_n(mx)y_n'(x)}{my_n'(mx)x_n(x) - y_n(mx)x_n'(x)} \end{cases} \quad (\text{B-01})$$

Les coefficients de Mie sont définis à partir des fonctions de Ricatti-Bessel et de Hankel sphérique, de l'indice de réfraction relatif  $m$ , et le paramètre de taille  $x$ . ou  $x = \frac{2pr}{l}$ ,  $r$  est le rayon de sphère et  $l$  est la longueur d'onde le milieu ambiant. Les fonctions Bessel sphériques  $j_n(z)$  et  $h_n^{(1)}(z) = j_n(z) + iy_n(z)$  d'ordre  $n$  ( $n=1,2,\dots$ ) en fonction d'argument,  $z$  égale  $x$  ou  $mx$ . La dérivé de ces deux fonction est donné sous la forme :

$$[zj_n(z)] = zj_{n-1}(z) - nj_n(z); [zh_n^{(1)}(z)] = zh_{n-1}^{(1)}(z) - nh_n^{(1)}(z) \quad (\text{B-02})$$

Les relations entre fonction Bessel et les fonction Bessel sphérique est donné par les fonctions suivants :

$$\begin{aligned} j_n(z) &= \sqrt{\frac{p}{2p}} j_{n+0.5}(z) \text{ et} \\ y_n(z) &= \sqrt{\frac{p}{2p}} y_{n+0.5}(z) \end{aligned} \quad (\text{B-03})$$

Les fonction de Bessel sphérique du premier et deuxième ordre pour  $n=0$ , et  $n=1$  s'écrivent comme suit :

$$\begin{aligned} j_0(z) &= \sin z/z; j_1(z) = \sin z/z^2 - \cos z/z; \text{ et} \\ y_0(z) &= -\cos z/z; y_1(z) = -\cos z/z^2 - \sin z/z \end{aligned} \quad (\text{B-04})$$

Ou la formule de récurrence est donné par :

$$f_{n-1}(z) + f_{n+1}(z) = \frac{2n+1}{z} f_n(z) \quad (\text{B-05})$$

Les fonction de Bessel  $j_n$  et  $y_n$  peuvent être calculé suivant la formule de récursivité si dessus .Les fonction de Hankel sphérique sont une combinaison linéaire entre  $j_n$  et  $y_n$  qui donné par fonction suivant :

$$h_n^{(1)}(z) = j_n(z) + iy_n(z) \quad (\text{B-06})$$

Les fonctions relatives suivantes sont également employées dans la théorie de Mie.

$$y_n(z) = zj_n(z); \quad c_n(z) = -zy_n(z); \quad x_n(z) = zh_n^{(1)}(z) \quad (\text{B-07})$$

## B-2. Calcul des coefficients de Mie d'une sphère enduit :

Les coefficients de *Mie* ,  $a_n$  et  $b_n$  d'une sphère de phase mixte c'est à dire sphère composée de deux couche (coated sphere).La couche intérieure de la sphère a un rayon intérieur  $a$ , avec paramètre de taille  $x$  ou  $x = \frac{2pa}{l}$ , son indice de réfraction intérieur est  $m_1$  . $b$  est le rayon de la couche extérieure de la sphère avec un paramètre de taille  $y$  et indice de réfraction  $m_2$  ou  $y = \frac{2pb}{l}$  .

La dérivé logarithmique de  $y_n(z)$  est donné par :

$$D_n = \frac{y_n'(mx)}{y_n(mx)} = \frac{[mx \cdot (mx)]}{mx \cdot j_n(mx)} \quad (\text{B-08})$$

Les coefficients de Mie de coated spher sont donnés par les relations suivantes :

$$a_n = \frac{(\overline{D}_n / m_2 + n/y) y_n(y) - y_{n-1}(y)}{(D_n / m_2 + n/y) x_n(y) - x_{n-1}(y)} \quad b_n = \frac{(m_2 \overline{G}_n + n/y) y_n(y) - y_{n-1}(y)}{(m_2 G_n + n/y) x_n(y) - x_{n-1}(y)} \quad (\text{B-09})$$

$$\overline{D}_n = \frac{D_n(m_2 y) - A_n c_n'(m_2 y) / y_n(m_2 y)}{1 - A_n c_n(m_2 y) / y_n(m_2 y)} \quad \overline{G}_n = \frac{D_n(m_2 y) - B_n c_n'(m_2 y) / y_n(m_2 y)}{1 - B_n c_n(m_2 y) / y_n(m_2 y)} \quad (\text{B-10})$$

$$A_n = y_n(m_2 x) \frac{m D_n(m_1 x) - D_2(m_2 x)}{m D_n(m_1 x) c_n(m_2 x) - c_n'(m_2 x)} ; \quad B_n = y_n(m_2 x) \frac{D_n(m_1 x) / m - D_2(m_2 x)}{D_n(m_1 x) c_n(m_2 x) / m - c_n'(m_2 x)} ; \quad (\text{B-11})$$

$$\text{Ou } m = \frac{m_2}{m_1} .$$

## Références Bibliographiques

- [01] Jourdan, O, Caractérisation in situ des propriétés microphysiques et optiques des nuages Contribution à l'amélioration des modèles de transfert radiatif et des méthodes d'inversion satellitales, Thèse de doctorat. Université BLAISE PASCAL (2003).
- [02] Hansen, J.E., et L.D. Travis, Light scattering in planetary atmospheres, *Space Science Review*, 16, 527-610, (1974).
- [03] Van de Hulst, H. C., Light Scattering by Small Particles, 470 pp., Dover, Mineola, N.Y., (1981).
- [04] Ishimaru A., Wave propagation and scattering in random media, Vol. 1, Academic Press, Orlando, FL (1978).
- [05] Deirmendjian, D., Electromagnetic Scattering on Spherical Polydispersions, *American Elsevier, New York, NY* (1969).
- [06] Bohren C.F. and D.R. Huffman, "Absorption and Scattering of Light by Small Particles", *John Wiley, New York, NY* (1983).
- [07] Malet, M, *Etudes des propriétés microphysiques et optiques l'aérosol en zone péri urbaine Durant ESCOMPTE .Estimation de l'impact radiatif direct*, université de TOULON DU ET DU VAR, (2003).
- [08] Prospero. J. M., and T.N. Charlson, Saharan air outbreaks over the optical north Atlantic, *Paragraph*, 119,677-691, (1981).
- [09] Hess, M., P. Koepke. and I. Schult, Optical properties of aerosols and clouds: the software package, *Bull. of Am. Meteorol. Soc.*, 79,831-844, (1998).
- [10] Resch., J.S. Darozes, and G.M. Afeti. Submicron film drop production by bubbles in seawater, *J. Geophys. Res.*, 97, C3, 3679-3683, (1992)
- [11] Resch., J.S. Darozes, and G.M. Afeti. Marine liquid aerosol production bursting of air bubbles, *J. Geophys. Res.*, 91.NOCI, 1019-1029, (1986).
- [12] Ottley, C.J., and R.M. Harisson. The spatial distribution and partical size of some inorganic nitrogen species over the north Sea *Atmos. Environ.*, 26A,1689-1699, (1992).
- [13] Cachier, H. , Les aerosols carbonés, 119-121, *pour la Science*, (1996).
- [14] Liousse. C.H. Cahier. and S.G. Jennings. Optical and thermal measurements of black carbon content in different environments: Variation of specific attenuation cross-section,  $S$ , *Atmos. Environ. Part A*, 27,1203-1211, (1993).
- [15] Hale, G.M., and M.R. Querry, Optical constants of water in the 200 nm to 200  $\mu\text{m}$  wavelength region, *Appl. Opt.*, 12,555-6563, (1973).

- [16] Hanel, G., The properties of atmospheric particles as functions of the relative humidity at thermodynamic equilibrium with surrounding moist air *Adv. In Geophys.*, 1973-188,1976.
- [17] Pilinis, C., S.N. Pandis, and H. Seinfeld, Sensitivity of direct climate forcing by atmospheric aerosols to aerosol size and composition, *J. Geophys. Res.*, 100, D9,18,79-18,754, 1995.
- [18] Liao, H., and J.H. Seinfeld, Radiative forcing by mineral dust aerosols: sensitivity to Key variables, *J. Geophys. Res.*, 103, D24, 31,637-31,645, (1998).
- [19] D'Almeida, G.A., P. Koepke, and E.P. Shettle, Atmospheric Aerosols: *Global Climatology and Radiative Characteristics*. A. Deepak Publishing, 561 pp, (1991).
- [20] Shettle, E.P. R.W. Fenn, Models for the lower atmosphere and the effects of humidity variations on their optical properties, *US Air Force Geophysics Laboratory, Hanscomb, Mass.*, (1979).
- [21] Marley, N.A., S.G. Gaffney, J.C. Baird, C.A. Blazer, P.J. Drayton, and J.E. Frederick, AN Empirical Method for the Determination of the complex Refractive index of size-Fractionated Atmospheric Aerosols for Radiative transfer Calculation, *Aerosol Sci., Techno.*, 34, 535-549, (2001)
- [22] Von Hoyningen-Huene, W., T. Schmidt, A.K. Chan, J. Heintzenberg, and C. Neusuess, Climate relevant aerosol parameters of South-East-Asian forest fire haze, *Journal of Science* 29, 1259-1260, (1998).
- [23] Chazette, P., and C. Liousse, A case study of optical and chemical ground apportionment for urban aerosols in Thessaloniki. *Atmos. Env.*, 35, 2497-2506, 2001.
- [24] Boucher, O., and T.L. Anderson, General circulation model assessment of the sensitivity of direct climate forcing by anthropogenic sulphate aerosol size and chemistry. *J. Geophys. Res.*, 100, 26, 117 – 26,134, (1995).
- [25] WMO (World Climate Programme), In R. McClatchey, H.-j. Bolle, & K. Ya. Kondratyev. *A Preliminary cloudless standard atmosphere for radiation competition*. (p.53), *Int. Radiation Com.*, Boulder, Colorado, USA, (1983)
- [26] Hitzberg, R., and S. Tohno, Comparison of black carbon (BC) aerosol in too urban area concentration and size distribution. *Atmos. Environ.* 35, 2153-2167, 2001
- [27] Anderson, B.E., W.B. Grant, G.L., Gregory, E.V. Browell, J.E. Collins, G.W. Sachse, D.R. Bagwell, C.H. Hudgins, D.R. and N.J. Blake, Aerosols from biomass burning over the tropical south Atlantic Region: Distribution and impacts. *J. geophys. Res.*, 101, 24 117-24 138, (1996).
- [28] Alfaro, S.C., L. Gomes, A. Gaudichet, J.I., Rajot, J.F. Leon, H. Cachier, P. Chazette, F. Dualec, S.C. Sarode, S.R. Inamdar, and J.S. Kadadevarmath, Aerosol model derived from measurements performed at an Indian coastal site during the intensive field phase: size distribution and composition, *J. Geophys. Res.*, (2002).

- [29] Chappello, I., G. Bergametti, B. Chatenet, F. Dulac, I. Jamcoiak, C. Liousse, and E.S. Soares, Contribution of a different aerosol species to aerosols mass load and optical depth over the northeastern tropical Atlantic, *J. Geophys. Res.*, *104*, 4025-4035, (1999).
- [30] Dulac, F., G. Bergametti, R. Losno, E. Remoudaki, L., Geomes, U, Ezat, and P. Buat-Menard, dry deposition of mineral aerosol particles in atmosphere: significance of the large fraction, *1, Precipitation Scavenging and Atmosphere-Surface exchange*, Vol. 2, edited by S.E. Schwartz and W.G.N. Slinn. pp. 841-854, Hemisphere, Bristol, Pa., (1992b).
- [31] Janzen, J., *J. Coll. Int. Sci.*, *69*, 436-447, (1979)
- [32] Quinn, P.K., D.J. Coffman, V.N. Kapustin, T. Bates, and D.S. Covert, Aerosol optical properties in the marine boundary layer during the first Aerosol Characterization Experiment (ACE I) and the underlying chemical and physical aerosol properties, *J. Geophys. Res.*, *103*, 16,563, (1996).
- [33] Wolf J. P., “UV-Visible light detection and ranging applications in air monitoring”, in *Encyclopedia of analytical chemistry* **3**, p 2226, Myers R. A. ed. (Wiley, New York, 2000).
- [34] Measures R. M. Laser remote sensing : fundamentals and applications , *Krieger, Malabar Florida*, (1992).
- [35] Klett J. D., “ Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratio », *App. Opt.* **24**, p 1638, (1985).
- [36] Curcio J. A. and Knestrick G. L., “ Correlation of atmospheric transmission with backscattering ”, *J. Opt. Soc. Am.* **48**, p 686, (1958).
- [37] Fenn R. W., *Appl. Opt.* **5**, p 293, (1966).
- [38] Hałas. M., Błaszczak. Z., Grabowski. J., Papayannis. A., Zieliński. T, Preliminary results of lidar based studies of the aerosol vertical distribution in the lower troposphere over urban coastal areas, *Umultowska 85, PL-60-614 Poznań, Poland* (2004).
- [39] Santacesia V., Marengo. F., Balis. D., Papayannis. A., and Zerefos. C, Lidar observations of the Planetary Boundary Layer above the city of Thessaloniki, Greece, *IL, NUOVO CIMENTO VOL. 21 C, N. 6* (1998).
- [40] Mondelain. D, *LIDAR Linéaire et non Linéaire dans l’Infrarouge Moyen*, thèse de doctorat, Université Claude Bernard-Lyon I, (2001)
- [41] Stokes, G. G., On the composition and resolution of streams of polarized light from different sources, *Trans. Camb. Philos. Soc.*, *9*, 399-416, 1852.
- [42] Van de Hulst, H. C., *Light Scattering by Small Particles*, 470 pp., Dover, Mineola, N.Y., 1981.



## Résumé en français :

Les aérosols sont une composante essentielle de la pollution urbaine et de la physico-chimie de l'atmosphère. Il est primordial de disposer de cartographies 2D de leur concentration par méthode lidar. Une méthode, à une longueur d'onde, a été utilisée pour la simulation d'un lidar. Elle est basée sur l'exploitation des propriétés microphysiques et optiques des composants atmosphérique (aérosols et nuages). Les résultats, obtenus dans l'UV nous ont permis de déterminer le profil de concentration d'aérosols pour une distribution de taille (mode accumulation) pour les petites tailles (~100 nm), et des informations microphysiques caractérisant un épisode de brume pour les particules plus grosses (coarse mode, ~1 µm).

La simulation d'un lidar nécessite de connaître la caractérisation des propriétés optiques et microphysiques des aérosols et nuages.

Pour cela nous avons fait une caractérisation fiable et précise des propriétés optiques et microphysiques de nuages de phases thermodynamiques différentes à l'aide de la théorie de Mie. A travers des fonctions que nous avons utilisées telles que la fonction de phase de diffusion et le diagramme polaire de diffusion, qui nous ont permis de déterminer les différents paramètres microphysiques qui influent sur les caractéristiques optiques des particules étudiées.

Certains aérosols hydrophiles sont susceptibles de faire condenser la vapeur d'eau à leur surface, entraînant une modification de leurs propriétés optiques. Pour cela nous avons utilisé les mesures microphysiques d'aérosol obtenues par la compagnie (ESCOMPT) et calculé les propriétés optiques de ces aérosols à 0% d'humidité et à humidité ambiante. Nos résultats ont confirmés l'influence de l'humidité sur l'aérosol. Nous avons fait aussi un diagnostic optique des aérosols, par le calcul de la contribution à la diffusion, l'absorption, l'extinction et à la rétrodiffusion de la lumière pour tous les types d'aérosols anthropiques.

## Résumé en anglais

The aerosols are an essential component of urban pollution and physicochemistry of the atmosphere. It is of primary importance to have cartographies 2d of their concentration by method lidar. An original method, with one wavelength, was used for simulation of a lidar. It is based on the exploitation of the properties microphysics and optics of the atmospheric component (aerosols and clouds). The results, obtained in UV enabled us to obtain profiles of concentration of aerosols for a size distribution of (accumulation mode) for the small sizes (~100 Nm), microphysics information characterizing an episode of fog for the particles more grosses (coarse mode) (~1 µm).

The simulation of a lidar requires to know the optical and microphysical characterization properties of the aerosols and clouds.

For that we have made a reliable and precise characterization of optical and microphysical properties of clouds for different thermodynamic phases, using the Mie theory.

With through functions which have used such as the diffusion phase function of and the polar diagram of diffusion, which allowed us to determine the various parameters microphysics which influence on the optical characteristics of the atmospheric particles.

Some absorbent aerosols are likely to make condense the water vapor on their surface, involving a modification on their optical properties. For that we have used microphysics measurements of aerosol obtained by (ESCOMPT) company, and calculated the optical properties of these aerosols with 0% of moisture and ambient moisture. Our results confirmed the influence of moisture on the aerosol. We also made an optics diagnostic of the aerosols, by calculating diffusion contribution, absorption contribution, extinction contribution and the backscatter contribution of the light for all the types of anthropic aerosol.



# TABLE DES MATIERES

**Introduction.....(01)**

## **Chapitre I : Propriétés microphysique des particules (brume et nuage)**

I-1. Les couches atmosphériques .....(04)

I-1-1. L'Atmosphère : .....(04)

I-1-2. La Troposphère : .....(04)

I-1-3. La Stratosphère.....(04)

I-1-4. La Mésosphère.....(04)

I-1-5. La Thermosphère.....(04)

I-2. Propriétés microphysiques des particules nuageuses .....(05)

I-3. Caractérisation optique des particules (brumes, nuages) .....(07)

I-4 Conclusions .....(10)

## **Chapitre II : Caractérisation des Propriétés optiques des nuages et brumes**

II-1 Modèles directs de diffusion et d'absorption de la lumière..... (12)

II-2. Propriétés des fonctions de phase de diffusion des

particules nuageuse .....(16)

II-2.1 Diffusion avant et arrière : information sur la taille des particules..... (26)

II-2.2 Approximation de Rayleigh : limite inférieure

du domaine de diffusion de Mie .....(24)

II-2-3. Calculs des propriétés des paramètres optiques	
caractéristiques des gouttelettes d'eau nuageuse .....	(24)
II-3 Reconnaissance de la phase et de la forme d'une particule nuageuse....	(27)
II-3-1 Reconnaissance de phase.....	(27)
II-3-2. Sensibilité à la taille des particules.....	(29)
II-3-3. Sensibilité à l'indice de réfraction complexe des particules nuageuses.....	(29)
Conclusion .....	(30)

### **Chapitre III : Caractérisation des propriétés optique d'aérosols**

III.1 Propriété chimique de l'aérosol .....	(32)
III.1.a. L'aérosol cristal (D) .....	(32)
III.1.b. les sels marins (SS) .....	(32)
III.1.c. les sulfates (AS) .....	(32)
III.1.e. les nitrates (N) .....	(32)
III-1.f. les aérosols (OC + BC) .....	(33)
III-2. Propriétés microphysiques et optiques des l'aérosols à humidité	
ambiante .....	(34)
III-2-1. Propriété microphysique d'aérosol .....	(34)
III-2-2. L'indice de réfraction des aérosols a humidité ambiante.....	(38)
III-2-3 Résultats des calculs des Propriétés optiques de l'aérosol.....	(39)
III-2-3-a Le carbone suie (BC).....	(39)
III-2-3-b Sulfate d' ammonium (AS).....	(40)
III. 2-3-c les nitrates (N) .....	(41)
III-2-3-d la matière organique particulaire (POM) .....	(42)
III-2-3-e L'aérosol naturel ( D & SS).....	(43)

Conclusion .....	(47)
------------------	------

## **CHAPITRE IV : Mesure LIDAR**

IV-1. Principe du lidar.....	(49)
IV-1-1 L'équation lidar.....	(50)
IV-1-2. Inversion de l'équation lidar.....	(50)
IV-2 Approximation de l'atmosphère homogène par zone.....	(51)
IV-3 Méthode d'inversion de Klett.....	(51)
IV-4 Mesure de concentration d'aérosols par lidar.....	(55)
IV-4-1 . Méthode utilisant un lidar mono-fréquence.....	(55)
IV-5 Résultat des calculs de la concentration .....	(59)
IV-5-1 calculs de la concentration d'aérosols par un lidar à 0.532 $\mu$ m .....	(59)
IV-5-2 calculs de la concentration d'aérosols par un lidar à 3,5 $\mu$ m lors d'un épisode de brume .....	(60)
Conclusion .....	(64)
<b>Conclusions générales et perspectives.....</b>	<b>(65)</b>
Annexe A. Eléments de base de la théorie de la diffusion simple.....	(67)
Références Bibliographiques .....	(77)