



Impact radiatif des aérosols de haute altitude

Aurélien Chauvigné

► To cite this version:

Aurélien Chauvigné. Impact radiatif des aérosols de haute altitude. Sciences de la Terre. Université Blaise Pascal - Clermont-Ferrand II, 2016. Français. NNT : 2016CLF22757 . tel-01661572

HAL Id: tel-01661572

<https://theses.hal.science/tel-01661572>

Submitted on 12 Dec 2017

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

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

N° d'Ordre : D.U. 2757

UNIVERSITE BLAISE PASCAL

ECOLE DOCTORALE DES SCIENCES
FONDAMENTALES

N° 889

THESE

présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR D'UNIVERSITE

Spécialité : Sciences de l'Atmosphère

Par **CHAUVIGNÉ Aurélien**

**Titulaire du Master recherche spécialité Physique et Chimie pour
l'Environnement**

Impact Radiatif des aérosols de haute altitude

Soutenue publiquement le 1^{er} Décembre 2016, devant la commission d'examen.

Président :	Paolo LAJ (IGE, Grenoble)
Rapporteur :	Paolo LAJ (IGE, Grenoble)
	Philippe GOLOUB (LOA, Lille)
Examineur :	Marc MALLET (CNRM, Toulouse)
Directeur :	Karine SELLEGRI (LaMP, Clermont-Ferrand)
Co-directeur :	Nadège MONToux (LaMP, Clermont-Ferrand)

Remerciements

C'est donc pour clôturer ces trois années de thèse que je me lance dans une tâche des plus préoccupantes, de peur d'oublier quelqu'un et de trouver les bons mots pour décrire au mieux mes sentiments. C'est pourquoi je commencerai à vous remercier, vous qui lisez au moins ces quelques lignes et qui, je l'espère, serez emmené à feuilleter un peu plus loin que la quatrième page de ce manuscrit.

Les premiers remerciements vont à Wolfram Wobrock et Joël Van Baelen qui ont su me faire confiance et m'intégrer dans leur laboratoire, dès la troisième année de ma licence à l'Université Blaise-Pascal, ce qui m'a permis de réaliser ma thèse dans les meilleures conditions.

Je souhaite ensuite porter toute mon attention à mes encadrantes, Karine Sellegri et Nadège Montoux qui ont su être complémentaires tout au long de ma thèse et ainsi m'apporter des conseils pour construire cette étude. Vous m'avez fait confiance en m'accordant une certaine liberté dans mes différents travaux et, de ce fait, me permettez d'apprécier de les partager et de les transmettre. Merci aussi à toi Nadège pour m'avoir guidé depuis la L3, et de m'avoir permis de me poser les bonnes questions à chaque étape avant, pendant et après ma thèse.

Et toi, Gianni, mais aussi Colin O'Dowd, vous qui m'avez accueilli sur l'île d'Emeraude pour mon premier stage officiel dans le monde de la recherche à partir d'un sujet qui a, en quelque sorte, gouverné mes perspectives professionnelles, toute ma reconnaissance.

Je remercie bien entendu les membres du jury qui ont bien voulu prendre de leur temps pour lire soigneusement les quelques pages de ce manuscrit, de m'avoir rejoint pour la soutenance en terre auvergnate et de m'avoir conseillé sur chaque virgule de mes travaux. A savoir : Paolo Laj, Philippe Goloub et Marc Mallet.

Je pense également à tout le laboratoire ainsi que l'OPGC qui m'ont permis de passer trois années dans une ambiance conviviale, et qui m'a également apporté de l'aide technique et méthodique à chaque étape de ma thèse. Je remercierai tout particulièrement Céline, Marie, Aurélie, Olivier, Guillaume, Joël B. et Mickaël V., vous qui m'avez prodigué de nombreux conseils en pédagogie et sur les voies à prendre pour continuer dans le monde de la recherche. Je tiens également à témoigner ma reconnaissance à Laëtitia, Mickaël R., Jean-Marc, David et Patrick pour leurs disponibilités à chaque question technique sur tous ces instruments mystérieux et capricieux, et pour tous les d'agréables moments sur notre cher PDD. Je n'oublierai pas non plus les aides incontournables et la patience de Sandra et Edouard lors de mes nombreux soucis informatiques ainsi que de leur patience.

Ces trois années de thèse n'auraient pas pu mieux se passer sans l'entraide de « la Team 8220 ». Une équipe qui tourne beaucoup mais qui a permis de faire, tout au long de ma thèse, de belles rencontres professionnelles et personnelles. Je pense alors aux premiers qui m'ont accepté dans ce bureau comme Délphine, Clémence, Emmanuel et Gwénolé (merci d'ailleurs pour ton bureau !), mais aussi à José de Gannat, Antoine 1000-1100, Kévin le glaçon, Brice le cailloux,

Pierre le papa, Paolo l'italien, Allesia l'italienne, Anaïs l'écrivain et Maher the best fallafel maker qui ont su apporter une ambiance unique durant ces trois années. En espérant que nous resterons en contact malgré les diverses voies prises par chacun... Sans oublier bien entendu « les expats du bâtiment 5 », je pense alors à Jimmy, Alexandre, Christelle, Camille, (du coup) Gwénolé, Thibault, Dany, Alla, Christina, Hélène, Ibrahim, Miao, Angelica, Pamela, Alexis et Manon qui ont également énormément compté dans le bon déroulement de cette thèse.

Le sport étant un élément incontournable dans la cohésion de groupe, je tiens également à remercier Christophe pour sa gestion hors norme des pronostics, Guillaume pour l'organisation des soccer interminables, et « la team basket » toujours au rendez-vous, par tous les temps. La musique ne faisant qu'embellir cette cohésion, je ne peux pas écrire ces remerciements sans penser également à l'orchestre à cordes de Lempdes qui me gardait une place bien au chaud dans une convivialité hors du commun.

Tuve también la oportunidad única de encontrar un gran país con personas extraordinarias. Gracias a Diego que me ha brindado su apoyo durante varias semanas en Clermont-Ferrand y en su casa de La Paz. Gracias por invitarme a tu país y hacerme descubrir la diversidad de su paisaje y las diferentes caras de la vida en Bolivia. Gracias también a Marcos, Isabel y a todo el equipo del Laboratorio de Física de la Atmosfera de La Paz por su bienvenida.

La famille ! Et oui, après m'avoir initié au goût de la terre auvergnate, c'est grâce à elle que mes goûts se sont développés pour étudier l'environnement. Merci alors à mes parents, mon frère et ma sœur, pour leur soutien. Merci aussi aux potes (Seb, Rob, Tit, kiki, Gatou, Remi, Antho, Mel & Ben et j'en oublie certainement), qui ont fait en sorte que mes soirées, mes week-end et mes vacances n'étaient pas tout à fait consacrés à la lecture de publications.

Et enfin, ces quelques mots de remerciements n'auraient pas pu exister sans l'encouragement de ma moitié pendant chacun des 1157 jours de cette thèse. Merci donc à toi Clémence pour m'avoir soutenu tout au long de cette aventure, et encore aujourd'hui pour m'aider à trouver une suite dans ce périple.

Table des matières

Introduction.....	1
Introduction générale	1
Objectif et structure de la thèse	4
Chapitre 1: Notions fondamentales relatives aux particules d'aérosol	7
1.1. L'aérosol	7
1.1.1. Définition.....	7
1.1.2. Sources	7
1.2. Propriétés de l'aérosol	8
1.2.1. Composition chimique.....	8
1.2.2. Microphysique.....	9
1.2.3. Optique	10
1.2.3.1. Propriétés extensives	12
1.2.3.2. Propriétés intensives.....	13
1.2.3.2.1. Indice de réfraction.....	13
1.2.3.2.2. Fonction de phase.....	13
1.2.3.2.3. Albedo de simple diffusion	14
1.2.3.2.4. Coefficient d'Angström.....	15
1.3. Forçage radiatif.....	16
1.3.1. Effet direct.....	18
1.3.2. Effet indirect.....	18
1.3.3. Effet semi-direct	19
1.4. Distribution spatiale.....	19
1.5. Hygroscopicité.....	22
Chapitre 2: Outils analytiques	25
2.1 Mesures in-situ	27
2.1.1 Distribution en taille (PSD).....	27
2.1.2 Propriétés optiques	28
2.1.2.1 Coefficient de diffusion.....	28
2.1.2.2. Coefficient d'absorption.....	30
2.1.2.3. Incertitudes et tests de sensibilité	31
2.1.3. Hygroscopicité : HTDMA et impacteurs en cascade	32

2.2.	Télédétection	34
2.2.1.	Mesures intégrées des propriétés optiques de l'aérosol.....	34
2.2.2.	Rayonnement global et diffus.....	36
2.2.3.	Distribution verticale en aérosols	36
2.2.3.1.	Le LIDAR.....	36
2.2.3.2.	Corrections systématiques des données LIDAR	39
2.2.3.3.	Inversion LIDAR.....	40
2.2.3.4.	Correction de la zone de recouvrement partiel.....	42
2.2.3.5.	Détermination de la structure de l'atmosphère.....	45
2.2.3.5.1.	Masque Nuage	45
2.2.3.5.2.	Hauteur de couche de mélange.....	47
2.2.3.5.3.	Détection des couches d'aérosols	48
2.2.4.	Satellites	49
2.3.	Modèles	50
2.3.1.	Rétrotrajectoires (Hysplit).....	50
2.3.2.	SBDART	51

Chapitre 3 : Comparaison instrumentale : Impact de la structure de l'atmosphère et de l'hygroscopicité. 53

3.1.	Méthode d'analyse.....	55
3.1.1.	Distribution en taille d'aérosol	55
3.1.2.	Hygroscopicité de l'aérosol.....	56
3.1.3.	Structure de l'atmosphère.....	56
3.2.	Base de données.....	59
3.3.	Epaisseur optique et extinction.....	60
3.3.1.	Atmosphère sans nuage	60
3.3.2.	Impact des multicouches d'aérosols.....	62
3.3.3.	Impact de la contribution de la couche de mélange et de la troposphère libre à la colonne	63
3.3.4.	Décroissance de l'extinction avec l'altitude.....	65
3.3.5.	Impact de la structure de l'atmosphère.....	66
3.3.6.	Impact de l'hygroscopicité des aérosols.....	70
3.4.	Etude de sensibilité des propriétés optiques et microphysiques à partir d'un code de Mie	71
3.4.1.	Etude de sensibilité sur l'hygroscopicité.....	72
3.4.2.	Etude de sensibilité sur l'indice de réfraction	74
	Conclusions du chapitre:	76

Chapitre 4 : Transport des aérosols à haute altitude : étude des propriétés optiques des aérosols depuis l'observatoire de Chacaltaya (5240 m), Bolivie..... 79

4.1.	Conditions météorologiques du site de l'étude.....	82
4.2.	Caractérisation des conditions météorologiques des mesures	83
4.2.1.	Séparation des mesures selon couche de mélange ou troposphère libre	83
4.2.2.	Origines des masses d'air	85
4.3.	Analyses des propriétés optiques de l'aérosol	86
4.3.1.	Variations saisonnières et journalières	86
4.3.2.	Représentativité régionale	89
4.3.3.	Propriétés optiques de l'aérosol selon l'origine des masses d'air	91
4.3.3.1.	Provenance des masses d'air	91
4.3.3.2.	Test statistique de Wilcoxon-Mann-Whitney.....	93
4.3.3.3.	Etude des paramètres extensifs.....	93
4.3.3.4.	Etude des paramètres intensifs	94
4.3.3.5.	Impact de la topographie régionale sur les mesures	94
4.3.4.	Propriétés optiques de l'aérosol selon la couche atmosphérique.....	95
4.3.5.	Etude de la nature des aérosols à partir de la variation spectrale du SSA	99
	Conclusions du chapitre.....	101

Chapitre 5 : Contributions et propriétés radiatives de l'aérosol en Troposphère Libre 103

5.1.	Contribution optique des aérosols de troposphère libre	105
5.1.1.	Méthodologies	106
5.1.1.1.	Couplage des mesures photométriques et mesures in-situ	106
5.1.1.2.	Couplage de deux photomètres.....	109
5.1.1.3.	LIDAR.....	110
5.1.2.	Résultats	111
5.1.2.1.	Couplage des mesures photométriques et mesures in-situ	111
5.1.2.2.	Couplage de deux photomètres.....	112
5.1.2.3.	LIDAR.....	114
5.1.2.4.	Comparaison des méthodes	116
5.2.	Configuration du modèle SBDART	119
5.3.	Etude de sensibilité	121
5.4.	Variations du forçage radiatif des aérosols au puy de Dôme	124
5.4.1.	Colonne atmosphérique totale	124
5.4.2.	Troposphère libre.....	126
	Conclusions du chapitre.....	128

Synthèse et perspectives.....	131
Synthèse.....	131
Perspectives	133
Références.....	135
Acronymes	147
Sommaire des Figures et Tableaux.....	151
Bilan des activités	159
Résumé	162

Introduction

Introduction générale

Le changement climatique est depuis plusieurs années au centre des discussions politiques, et a pour conséquence d'importantes décisions à toutes les échelles sociétales. Ces décisions politiques importantes sont guidées par des groupes d'experts comme dernièrement lors de la COP21 à Paris (Conférence sur le climat de Paris, décembre 2015) avec comme conséquence l'engagement de 195 Etats à réduire leurs émissions de polluants.

Le changement climatique est défini selon le GIEC (Groupe d'Experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat, ou IPCC en anglais) comme tout changement dans le temps des paramètres statistiques du climat global par rapport à la période préindustrielle, qu'il soit dû à la variabilité naturelle ou aux activités humaines. Le cœur des actualités parle plus communément d'un réchauffement climatique fortement relié aux émissions des activités anthropiques. Le dernier rapport du GIEC (5^{ième} rapport publié en octobre 2014) rapporte ainsi une augmentation de la température moyenne de la surface du globe de +1°C entre 1901 et 2012 alors que le précédent rapport (4^{ième} rapport du GIEC publié en 2007) évoquait +0.74°C entre 1906 et 2005. On recense plusieurs empreintes de ce réchauffement comme l'élévation du niveau des mers, l'accentuation des événements climatiques extrêmes (sécheresses, inondations, cyclones, ...), la déstabilisation des forêts, les menaces sur les ressources d'eau douce, les difficultés agricoles, la réduction de la biodiversité, l'extension des maladies tropicales, ... Les modèles de climat ont pour but de prévoir l'évolution future du changement de températures et ses conséquences à court et long terme. Les prévisions se basent sur les modifications futures des émissions des gaz à effet de serre, des pollutions particulières et de l'utilisation des terres. Ainsi, les différents scénarios, basés sur le degré d'évolution des activités humaines et sur les degrés de réponse du climat, prévoient pour 2100 une augmentation de la température de surface de +1,5°C (par rapport à la température moyenne de l'ère préindustrielle (1850-1900)) pour le plus optimiste des scénarios à +4°C pour le plus pessimiste (GIEC, 2014). Bien que le but pour les gouvernements soit de rester au-dessous des +2°C, on parle de plus en plus d'un effet irréversible des émissions anthropiques sur le climat.

Introduction

Ce changement climatique est principalement lié à la modification de la composition de l'atmosphère depuis la période industrielle. En plus des gaz à effet de serre (GES), les aérosols émis directement (aérosols primaires) par des sources anthropiques ou naturelles, ou bien formés indirectement par des processus physico-chimiques (aérosols secondaires), sont abondants dans l'atmosphère. Leurs émissions variées et réparties de façon inhomogène conduisent à la fois à un impact sur le climat par le biais de leur forçage radiatif mais également à un impact sur notre santé.

Les effets sur la santé figurent comme les effets les plus décelables et rapides. Selon les régions du globe, ces sources de pollution peuvent influencer la qualité de l'air extérieure et intérieure, la qualité de l'eau potable, la qualité et la quantité de nourriture. Le rapport de l'OMS de 2014 (Organisation Mondiale de la Santé, ou WHO en anglais) informe que la pollution extérieure entraîne la mort prématurée de 3,7 millions de personnes par an, contre 4,3 millions morts par an pour la pollution intérieure. Des seuils de pollution ont ainsi été mis en place dans certaines villes. Une étude de l'OMS sur des mesures menées entre 2004 et 2006 montre que pour 25 villes européennes, 24 se situent en moyenne au-dessus du seuil de concentration en particules fines (particules d'aérosols dont les diamètres sont inférieurs à $2,5\mu\text{m}$, seuil de $\text{PM}_{2.5} = 10\mu\text{g.m}^{-3}$). A Paris (2,229 millions d'habitants), la concentration moyenne de ces particules fines pour ces 3 années de mesures atteint $16,4\mu\text{g.m}^{-3}$ et entraîne ainsi une diminution de l'espérance de vie de ses habitants de 5,8 mois. La ville de l'étude présentant la concentration en particules fines la moins importante est Stockholm (789 000 habitants) avec en moyenne $9,4\mu\text{g.m}^{-3}$, et la plus polluée est Bucarest (1,913 millions d'habitants) avec $38,2\mu\text{g.m}^{-3}$ représentant alors 22,1 mois d'espérance de vie en moins pour ses habitants.

Les particules d'aérosols atmosphériques influencent également le bilan radiatif terrestre, soit la quantité de rayonnement atteignant la surface du globe et ainsi le climat. Cette quantité étant directement reliée à l'albédo de surface (capacité d'une surface à réfléchir le rayonnement incident), la présence des particules d'aérosols dans l'atmosphère modifie cet albédo soit directement par leurs propriétés absorbantes et diffusantes, soit indirectement en modifiant les processus de formation des nuages ainsi que leurs propriétés optiques. Contrairement à l'effet de serre généré par les GES, la capacité diffusante des aérosols conduit principalement à l'effet contraire, l'effet parasol, diminuant alors la quantité de rayonnement atteignant la surface (refroidissement des températures de surface). Depuis plusieurs années, de nombreuses études se sont intéressées aux effets radiatifs direct et indirect des aérosols dans différentes régions du globe et selon différents types de sources (Coakley et al., 1983 ; Charlson et al., 1992 ; Penner et al., 1992 ; Satheesh and Moorthy, 2005 ; Mishra et al., 2014). Les travaux de Satheesh et Moorthy (2005) établissent une revue des connaissances des impacts radiatifs des aérosols naturels selon leur nature (les sels marins étant les particules ayant le plus d'impact sur le bilan radiatif au sommet de l'atmosphère). Malgré le fait que les aérosols naturels représentent 89% en masse des émissions, ils ne contribuent qu'à 52% de l'épaisseur optique atmosphérique. L'étude de Mishra et al. (2014) rend compte de l'impact des aérosols issus de différentes sources depuis des mesures par télédétection dans la région du bassin Méditerranéen. Ainsi, le

modèle de transfert radiatif SBDART (Santa Barbara DISORT Atmospheric Radiatif Transfert) couplé aux mesures par télédétection a permis d'établir les forçages radiatifs des masses d'air principalement composées de poussières minérales, de pollutions anthropiques provenant du continent européen ou d'aérosols marins ($\Delta F_{\text{SRF}} = -22 \text{ W.m}^{-2}$, -17 W.m^{-2} et -7 W.m^{-2} respectivement). Les impacts radiatifs des aérosols dépendent alors également de la nature des aérosols. Il est donc primordial d'obtenir des informations sur la nature et les caractéristiques optiques et microphysiques des aérosols pour déterminer leur impact sur notre climat.

L'évolution des propriétés microphysiques (concentrations et tailles de particules), chimiques (composition) et optiques (épaisseur optique, absorption, diffusion,...) des particules d'aérosols depuis le début de l'ère industrielle, contribue substantiellement au changement climatique observé actuellement. Cependant, par la diversité de leur nature et des processus d'interaction avec leur environnement, la prise en compte de ces particules ainsi que leurs propriétés restent une source majeure d'incertitudes dans les modèles de climat. Un des effets de l'environnement le plus important et encore mal déterminé, est l'impact de l'humidité ambiante sur les propriétés optiques des aérosols (Carrico et al., 2003; Hervo et al., 2014; Brock et al., 2016). En effet, la modification de la composition des particules entraîne une modification de leur indice de réfraction et donc de leur capacité à absorber et diffuser les rayonnements incidents. Carrico et al. (2003), à partir de mesures in-situ réalisées lors de la campagne aéroportée ACE-Asia (Aerosol Characterization Experiment-Asia) en 2001, établissent des augmentations du pouvoir diffusant des aérosols dues à la présence d'eau de 25% pour des poussières minérales à 188% pour des particules volcaniques. Cet effet est néanmoins encore mal pris en compte dans les modèles de climat.

En outre, les particularités de la circulation atmosphérique entraînent d'importantes hétérogénéités verticales et horizontales de la concentration en aérosols dans l'atmosphère et causent des difficultés dans l'estimation de l'impact global des particules d'aérosols sur le climat et la santé (Kaufman et al., 1997; Russell et al., 1999; Ginoux et al., 2001; Ramanathan et al., 2001; Luo et al., 2003). Les particules d'aérosols émises depuis le sol sont mélangées majoritairement dans la partie basse de la troposphère (la couche de mélange, ou couche limite d'un point de vue dynamique atmosphérique, jusqu'à environ 2 km d'altitude aux moyennes latitudes) ou peuvent être transportées à plus haute altitude lors d'événements convectifs importants ou de soulèvements orographiques des masses d'air. Selon l'altitude des particules d'aérosols, leurs temps de résidence et ainsi leurs impacts sur le climat sont différents. La dynamique atmosphérique en troposphère libre entre environ 2 et 10 km, permet un transport à longue distance de ces différentes particules et influence les propriétés optiques de l'atmosphère sur une échelle mondiale. L'article de Laj et al. (2009) a mis l'accent sur l'importance des particules de troposphère libre à la fois sur le climat et sur la qualité de l'air, mais également sur le manque d'études les concernant. En effet, plusieurs études se sont concentrées sur les propriétés des aérosols de la troposphère libre (Schröder et al., 2002 ; Venzac et al., 2009 ; Andrews et al., 2011) mais très peu sur la variabilité spatio-temporelle de leurs propriétés optiques, leurs contributions sur la colonne atmosphérique et leurs propriétés radiatives.

Introduction

Afin d'étudier l'impact sur le climat des aérosols des différentes couches de l'atmosphère, plusieurs méthodes de mesures sont utilisées dans le domaine. Les instruments de télédétection (photomètre et LIDAR) permettent d'étudier les propriétés des aérosols à distance. Ils peuvent être basés au sol mais également depuis l'espace sur satellites. Les méthodes de télédétection ont l'avantage de fournir des mesures de grande représentativité spatiale, mais elles sont généralement limitées en terme de nombre et de précision des paramètres restitués. Des mesures plus précises et plus nombreuses peuvent être obtenues à partir d'instrumentation in-situ, soit embarquée sur avion, soit depuis des stations de hautes altitudes. Les mesures avion fournissent des profils de propriétés optiques de l'aérosol qui sont précieuses, mais elles sont généralement représentatives d'une courte période de temps. Les mesures de station peuvent quant à elles être menées sur de longues périodes de temps mais ne représentent qu'un point de mesure dans l'espace.

Objectif et structure de la thèse

Les aérosols de troposphère libre ont un impact à long terme sur les propriétés optiques et radiatives de l'atmosphère (Andrews et al., 2011). Néanmoins, par la difficulté de leur accès, ils sont moins étudiés que les aérosols de basse couche et leur contribution optique par rapport aux aérosols de plus basse altitude est mal connue. Il est donc nécessaire de caractériser leurs propriétés et leur évolution dans cette couche de l'atmosphère afin d'améliorer leur prise en compte dans les modèles de climat et les restitutions des profils aérosols par télédétection.

Dans ce contexte, un des objectifs de cette thèse est d'établir une analyse des propriétés optiques et radiatives des aérosols depuis des stations de haute altitude situées au carrefour d'une multitude de sources, et ceci à partir d'un parc instrumental complet. Très peu de stations dans le monde possèdent les situations géographiques des stations de mesures atmosphériques du Puy de Dôme (PUY, 1465 m) et de Chacaltaya (CHC, 5240 m), inscrites en tant que stations de référence pour la surveillance du climat (label GAW : Global Atmospheric Watch), et utilisées dans ces travaux de thèse. Ces stations sont équipées d'instruments mesurant au niveau de la station (mesures in-situ à haute altitude) et d'instruments basés à plus basse altitude et mesurant sur la colonne (mesures par télédétection). Elles permettent ainsi d'étudier les particules d'aérosols locales ou transportées depuis de plus longues distances et provenant de différentes sources (Venzac et al., 2009 ; Andrade et al., 2012).

L'état des connaissances nécessaires à la compréhension du contexte scientifiques de chacune des parties de ces travaux de thèses est rappelé au début de chaque chapitre. Ainsi, après avoir détaillé chacun des paramètres pouvant caractériser l'aérosol, son devenir dans l'atmosphère et son impact sur climat (**chapitre 1**), je présenterai les différentes techniques de mesures et algorithmes utilisés dans ces travaux de thèses (**chapitre 2**). Dans le **chapitre 3**, je m'attacherai à évaluer la cohérence de la base de données à ma disposition en comparant les données in-situ et de télédétection. La caractérisation de ces mesures est une étape indispensable à l'interprétation ultérieure de ces mesures combinées. Ce chapitre fournit également les

propriétés optiques (épaisseur optique) et microphysiques (distribution en taille) des aérosols de couche de mélange et de troposphère libre. Les résultats de cette partie ont ainsi été publiés dans Chauvigné et al. (2016).

La compréhension des propriétés restituées par ces techniques de mesures me permettra ensuite d'aborder, dans le **chapitre 4**, l'étude des contributions optiques des aérosols de différentes origines et dans les différentes couches de l'atmosphère (couche de mélange vs troposphère libre) depuis une station météorologique de haute altitude encore peu étudiée : la station de Chacaltaya, en Bolivie, se situant 5240 m au-dessus du niveau de la mer. La situation particulièrement intéressante de la station permet l'étude des influences du bassin Amazonien, de zones arides, de la Cordillère des Andes, de l'océan Pacifique et d'importantes zones urbaines en développement. Pour ces sources d'aérosols, encore relativement peu documentées, une analyse statistique de leurs propriétés optiques sera ainsi réalisée.

Enfin, le **chapitre 5** de ce manuscrit rendra compte de l'importance de la prise en compte des aérosols de troposphère libre dans les différentes études des aérosols atmosphériques. A partir de la colocalisation instrumentale disponible depuis le site du puy de Dôme, différentes techniques seront comparées afin de restituer au mieux la contribution optiques des aérosols de troposphère libre. Leur impact radiatif sera évalué à l'aide du modèle de transfert radiatif SBDART.

Pour terminer, une synthèse générale résume l'ensemble de ces trois chapitres de résultats et ouvre sur les perspectives issues de ce travail de thèse.

Chapitre 1: Notions fondamentales relatives aux particules d'aérosol

Dans cette partie du manuscrit, je rappellerai les notions fondamentales permettant de décrire les propriétés de l'aérosol atmosphérique. En particulier, l'accent sera mis sur les propriétés optiques, chimiques et microphysiques en lien avec leurs propriétés radiatives.

1.1. L'aérosol

1.1.1. Définition

Les particules d'aérosol atmosphériques sont définies comme des éléments fins solides et/ou liquides en suspension dans l'atmosphère. Dans la suite du manuscrit, les termes « particule » ou « aérosol » seront utilisés à la place de particule d'aérosol.

1.1.2. Sources

Les émissions d'aérosols peuvent être attribuées aux activités humaines (anthropiques) ou à des sources naturelles. Les principales sources naturelles d'aérosols sont les océans, les déserts et les volcans. Ces sources représentent à elles seules 89% des émissions en masse mais ne contribuent qu'à hauteur de 52% de l'épaisseur optique totale (Satheesh and Krishna Moorthy, 2005). Les embruns marins émettent environ 10 000 Tg par an, les feux de biomasse environ 8 000 Tg par an (Andreae and others, 1991) dont 80% depuis la ceinture tropicale et les déserts émettent entre 1 000 et 2 150 Tg par an (Seinfeld and Pandis, 2006) dont un tiers provient du désert du Sahara. Les émissions anthropiques sont principalement issues de combustion, de processus industriels, du transport routier et aérien et des feux de biomasse. Ils ne représentent que 11% des émissions en masse globales. Cependant, de par la taille des particules et leurs concentrations, leur impact sur la santé est très important. De plus, leur forçage radiatif est

Chapitre 1 : Notions fondamentales

nettement supérieur à celui dû aux émissions naturelles. Par rapport au forçage radiatif global de 1750, période préindustrielle, le forçage radiatif dû aux émissions naturelles est d'environ $-0,05 \text{ W.m}^{-2}$ contre environ $-2,2 \text{ W.m}^{-2}$ pour les émissions anthropiques en 2005 (IPCC, 2014). Néanmoins, du fait de la répartition inhomogène de leurs sources sur le globe ainsi que leur variabilité en termes de quantité d'émission, la distinction de l'impact sur le climat de ces deux types de sources reste complexe.

Par leurs processus de formation, on distingue également deux types d'aérosol : les aérosols primaires et les aérosols secondaires. Les aérosols émis directement comme particule dans l'atmosphère par des processus mécaniques (action du vent ou de la houle par exemple) sont appelés aérosols primaires. Ceux formés à partir de gaz par des processus physico-chimiques, comme des processus de nucléation ou de condensation, sont appelés aérosols secondaires. Dans ces travaux de thèse, nous parlerons principalement des aérosols primaires.

1.2. Propriétés de l'aérosol

Selon leur type de formation et leur source, les particules d'aérosols possèdent des propriétés différentes en termes de composition chimique, de microphysique (taille, forme et concentration) et de propriétés optiques (interaction avec un rayonnement extérieur).

1.2.1. Composition chimique

La composition chimique initiale d'une particule d'aérosol est propre à sa provenance et à son type de formation mais peut évoluer rapidement au cours de son transport dans l'atmosphère. Au cours du transport, les aérosols voient leur composition chimique évoluer selon des processus physico-chimiques dont les plus courants sont : la condensation d'espèces gazeuses condensables, les processus photochimiques ou la coagulation. La succession de ces différents processus entraîne une chimie de l'aérosol variée et complexe (**Figure 1.1**) (Freney et al., 2011; Jacobson, 2002). Différents types de mélange caractérisent une population de particules en un lieu donné: le mélange externe, définissant deux populations d'aérosols de composition chimique distinctes, et le mélange interne, définissant une population homogène d'aérosols de composition chimique complexe.

La composition chimique de l'aérosol influe notamment sur les propriétés optiques des particules (Piliinis et al., 1995 ; Maring et al., 2000 ; Piliinis et al., 1995). L'indice de réfraction d'un milieu donné dépend de la longueur d'onde du rayonnement incident mais également de la nature du milieu. Il est lié à la composition chimique de l'aérosol et donc à son origine. Les caractéristiques de l'indice de réfraction en fonction de différents types d'aérosol seront abordées dans la partie optique de ce chapitre (**section 1.2.3**)

1.2.2. Microphysique

De façon théorique, les aérosols sont assimilés à des sphères caractérisées par leur diamètre. Les populations d'aérosols atmosphériques sont constituées de particules de très petites tailles (diamètre de quelques nanomètres pour les plus fines) comme de grosses particules (diamètres de plusieurs dizaines de micromètres). Leurs concentrations peuvent être exprimées en nombre, en volume, en surface ou en masse selon le type d'aérosol étudié et selon le but de l'étude. L'expression du nombre, de la masse ou de la surface des particules par unité de diamètre est appelée distribution en taille de particules (ou Particle Size Distribution, PSD, en anglais).

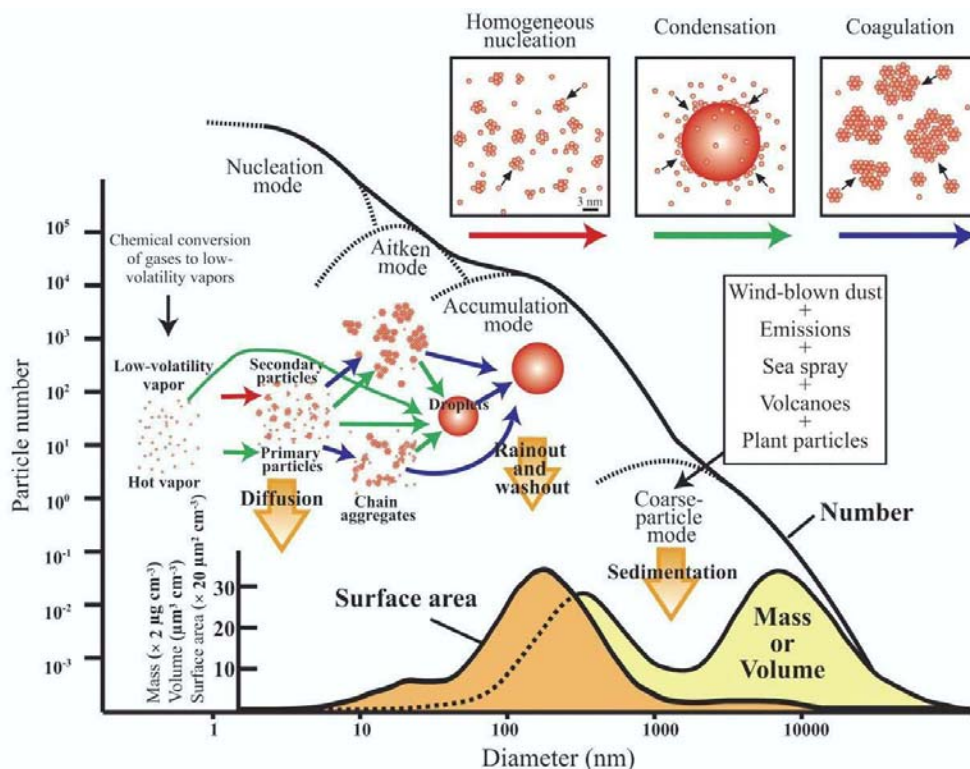


Figure 1.1 : Distribution en taille multi modale schématique avec les processus de formation et de puits de particules et des exemples de particules pour chaque mode (référence : www.dwd.de).

La distribution en taille de l'aérosol est souvent décrite selon quatre modes en fonction du diamètre des particules : le mode nucléation pour des particules de diamètres inférieurs à 20 nm, le mode Aitken pour des diamètres de l'ordre de 50 nm, le mode accumulation pour des diamètres entre 100 nm et 1 μm et le mode grossier pour des diamètres supérieurs à 1 μm (Seinfeld and Pandis, 2006). Au cours de leur transport dans l'atmosphère, les particules d'aérosols peuvent être modifiées et passer d'un mode à un autre selon des processus physico-chimiques (**Figure 1.1**). Les gaz disponibles dans l'environnement peuvent être absorbés par les particules d'aérosol et ainsi accroître leur taille, c'est la condensation (flèches vertes). Les particules peuvent également rentrer en contact et s'agréger entre elles, c'est la coagulation (flèches bleues). Des processus inverses peuvent à leur tour entraîner une diminution de la taille des particules comme l'abrasion dû à un éclatement d'une particule à partir d'un contact avec

Chapitre 1 : Notions fondamentales

une autre, ou l'évaporation (passage de l'état liquide à gazeux). Enfin, en fonction de leur composition chimique, certaines particules d'aérosols peuvent être activées en gouttelettes de nuage. Ces particules sont alors définies comme des noyaux de condensation (ou Cloud Condensation Nuclei, CCN, en anglais).

Les particules du mode nucléation étant optiquement peu actives, elles sont souvent négligées dans l'étude du forçage radiatif des aérosols. De ce fait, la PSD est régulièrement simplifiée en deux catégories : les particules fines pour des diamètres inférieurs à 1 µm et les particules grossières au-delà.

Si un type de source est régulièrement attribué à une distribution monomodale, il est courant que plusieurs modes décrivent un ensemble de particules d'aérosols. Pour simplifier la complexité de la distribution en taille, cette dernière peut être séparée en une somme de lois lognormales. Pour une distribution monomodale, la variation du nombre de particules N en fonction du diamètre D s'écrit alors de la façon suivante (Seinfeld and Pandis, 2006):

$$\frac{dN}{d\log D} = \sum_i \frac{N_i}{\log \sigma \cdot \sqrt{2\pi}} \cdot \exp\left(-\frac{(\log D_i - \log \bar{D})^2}{2 \cdot \log \sigma}\right) \quad (1.1)$$

Avec D_i et N_i chaque diamètre et concentration de la distribution, et N , σ et $\bar{D}$ les trois paramètres moyens définissant le mode lognormal (la concentration, la variance ou écart type géométrique, et le diamètre du mode). Ainsi, il est possible de décrire la microphysique générale de la population d'aérosols étudiée à partir de combinaisons de ces trois paramètres pour chaque mode de la distribution en taille.

1.2.3. Optique

Les particules d'aérosols interagissent avec les rayonnements solaire (ultra-violet, visible et proche infrarouge) et terrestre (infrarouge thermique), de manière plus ou moins efficace selon leurs caractères absorbants et diffusants. L'interaction peut être inélastique ou élastique selon le changement d'énergie du rayonnement rediffusé ou non respectivement. Selon la longueur d'onde caractérisant le rayonnement (ou domaine de longueur d'onde en atmosphère réelle) et la taille des particules, plusieurs théories régissent la diffusion des particules sphériques :

- La diffusion Rayleigh correspond à des tailles de particules très petites devant la longueur d'onde. La diffusion est alors homogène et élastique autour de la particule.
- Lorsque la taille de la particule est du même ordre de grandeur que la longueur d'onde (plus adapté à l'étude des particules d'aérosols dans le domaine du visible), alors la diffusion est élastique et est gouvernée par la théorie de Mie.
- La diffusion inélastique du rayonnement (changement d'énergie) est appelée diffusion Raman.

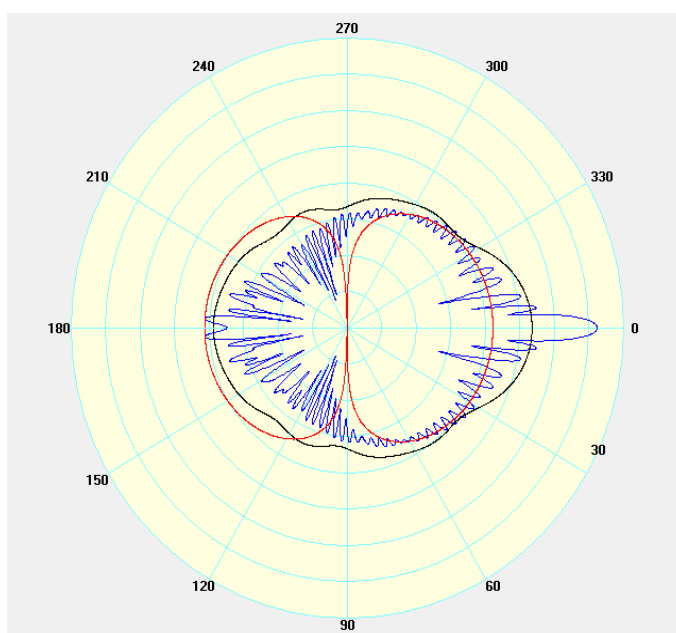


Figure 1.2 : Diffusion d'un rayonnement à 650 nm par une particule minérale ($m = 1,55 + 0,005i$) en fonction de l'angle pour des diamètres de 0,1 μm (en rouge), 1 μm (en noir) et 10 μm (en bleu) (logiciel MiePlot).

Si la particule est non-sphérique, la diffusion peut être décrite suivant plusieurs modèles plus ou moins complexes comportant chacun des avantages et des limites. Le plus couramment utilisé est le modèle de la matrice de transition (T-Matrix) décrit dans les travaux de Waterman (1971). Ce type de modèle est généralement utilisé pour des tailles d'aérosols importantes et n'est pas utilisé dans ces travaux de thèse ne nécessitant pas un tel niveau de précision.

Il est possible de modéliser la diffusion d'une onde électromagnétique par une particule à partir d'un code Mie (Bond and Bergstrom, 2006) basée sur les différentes équations qui régissent la propagation d'une onde lumineuse dans différents milieux. La **Figure 1.2** montre le profil de diffusion pour des diamètres d'une particule minérale de 0,1 μm (en rouge), de 1 μm (en noir) et de 10 μm (en bleu) avec un rayonnement incident monochromatique ($\lambda = 650 \text{ nm}$). Pour de petits diamètres de particules devant la longueur d'onde (en rouge), la diffusion autour de la particule située au centre de la représentation polaire est homogène et suit la théorie de Rayleigh. Pour de plus gros diamètres de particules, le comportement de la diffusion autour de la particule varie de façon plus complexe et suit la théorie de Mie.

Néanmoins, il est nécessaire de mesurer et définir des propriétés optiques des particules d'aérosols plus complexes afin d'étudier leur impact radiatif. Celles-ci se décomposent alors en deux catégories : les propriétés extensives étant influencées par la quantité d'aérosols mesurés, et les propriétés intensives, intrinsèques à l'aérosol.

Chapitre 1 : Notions fondamentales

1.2.3.1. Propriétés extensives

Comme vu dans le paragraphe précédent, une particule peut diffuser le rayonnement incident dans différentes directions en fonction de sa taille, sa forme et sa composition chimique : par abus de langage, on appelle la diffusion (ou coefficient de diffusion, σ_{diff}) la diffusion avant (à 0° par rapport à l'angle d'incidence). Les particules peuvent également capter une partie du rayonnement et la libérer sous forme de chaleur : c'est l'absorption (ou coefficient d'absorption σ_{abs}).

Le terme le plus souvent utilisé dans le domaine de l'optique des aérosols est l'extinction. Le coefficient d'extinction σ_{ext} est défini comme la somme des coefficients d'absorption et de diffusion.

$$\sigma_{ext} = \sigma_{abs} + \sigma_{diff} \quad (1.2)$$

Il est régulièrement exprimé en km^{-1} .

Afin d'étudier l'impact des aérosols sur tout ou une partie de la colonne atmosphérique, l'épaisseur optique (Aerosol Optical Depth, AOD, en anglais) est définie comme l'intégrale du coefficient d'extinction sur cette colonne :

$$AOD = \int_{\text{base de la colonne}}^{\text{haut de la colonne}} \sigma_{ext} \cdot dz \quad (1.3)$$

L'épaisseur optique est sans dimension. Elle est en moyenne de 0,1 à nos latitudes et peut atteindre des valeurs de 2 lors d'importants épisodes de poussières désertiques (Gkikas et al., 2016).

1.2.3.2. Propriétés intensives

Des propriétés intrinsèques aux particules d'aérosols sont également nécessaires à l'étude de l'impact radiatif de l'aérosol.

1.2.3.2.1. Indice de réfraction

L'indice de réfraction m varie en fonction de la longueur d'onde et du milieu, il est donc fonction de la composition chimique de l'aérosol. Il est composé d'une partie réelle m_r et d'une partie imaginaire m_i et s'écrit selon :

$$m = m_r + i.m_i \quad (1.4)$$

La partie réelle représente le facteur de réduction de la vitesse de l'onde lumineuse par la traversée du milieu par rapport à la vitesse qu'elle aurait dans le vide. Elle varie de 1,33 pour l'eau liquide à 1,95 pour des particules de suie (Bond and Bergstrom, 2006). La partie imaginaire représente la perte d'énergie du rayonnement traversant ce milieu, soit son absorption. Elle varie de 10^{-8} à 1 pour respectivement les particules les moins absorbantes (sels marins) et les particules les plus absorbantes (suie).

Il est également possible de déterminer l'indice de réfraction d'une particule composée de plusieurs milieux connus (ou milieux partiels). La théorie des milieux effectifs permet alors d'écrire :

$$m = \sum_i V_i.m_i \quad (1.5)$$

Avec i le nombre de milieux partiels, V_i leurs fractions volumiques et m_i l'indice de réfraction de chaque milieu partiel.

1.2.3.2.2. Fonction de phase

La dépendance angulaire de la diffusion d'un rayonnement par un ensemble de particules est décrite par une matrice de phase $\tilde{P}$. En transfert radiatif, on s'intéresse à la forme normalisée de la matrice de phase et plus particulièrement à la proportion de rayonnement diffusé dans une direction donnée décrite par la fonction de phase normalisée P . Celle-ci peut être écrite sous la forme suivante (Seinfeld and Pandis, 2006) :

$$P(\theta) = \frac{F(\theta)}{\int_0^\pi F(\theta) \cdot \sin(\theta) \cdot d\theta} \quad (1.6)$$

Avec $F(\theta)$ l'intensité du rayonnement diffusée dans la direction θ .

Chapitre 1 : Notions fondamentales

Une façon simple de définir les caractéristiques de la fonction de phase est de calculer le coefficient d'asymétrie g correspondant. Il est décrit comme l'intensité moyenne pondérée par le cosinus de l'angle de diffusion selon l'équation suivante :

$$g = \frac{1}{2} \int_0^\pi \cos \theta \cdot P(\theta) \cdot \sin \theta \cdot d\theta \quad (1.7)$$

Si $g = 1$, alors tout le rayonnement est rediffusé vers l'avant ($\theta = 0^\circ$) et si $g = -1$, tout le rayonnement est rediffusé vers l'arrière ($\theta = 180^\circ$).

Les travaux de thèse de Maxime Hervo (2012) ont permis d'établir des moyennes de coefficient d'asymétrie en fonction de la provenance des masses d'air depuis les mesures de la station du puy de Dôme. Les résultats montrent une faible variabilité du coefficient d'asymétrie, avec des valeurs allant de 0,55 pour des masses d'air océaniques à 0,60 pour des masses d'air continentales (à 550 nm). Néanmoins, on rapporte dans la littérature des valeurs plus importantes du coefficient d'asymétrie (0,80) pour des particules fortement humidifiées (Korras-Carraca et al., 2015).

1.2.3.2.3. Albedo de simple diffusion

L'albedo de simple diffusion $\overline{\omega_0}$ est défini comme étant le rapport entre le coefficient de diffusion et d'extinction d'une particule. Plus sa valeur est proche de 1, moins la particule d'aérosol est absorbante. Il est défini selon l'équation suivante :

$$\overline{\omega_0} = \frac{\sigma_{diff}}{\sigma_{diff} + \sigma_{abs}} \quad (1.8)$$

L'albedo de simple diffusion (ou Single Scattering Albedo, SSA, en anglais) est lié au paramètre de taille des particules, à leur composition chimique et à la longueur d'onde de mesure. Ce paramètre est souvent utilisé car il détermine généralement le signe du forçage radiatif : pour un albedo de simple diffusion supérieure à 0,85 (dans le domaine du visible entre 400 et 800 nm), la particule contribue à un refroidissement de la planète alors que pour des valeurs inférieures, la particule contribue à un réchauffement de la planète (Hansen et al., 1997).

Les travaux de Dubovik et al. (2002), Mishra et al., (2014) et Derimian et al. (2016) montrent qu'il est possible à partir de la dépendance en longueur d'onde de l'albedo de simple diffusion, d'obtenir une information sur la nature des particules dominant la population d'aérosols étudiée. Ainsi, les poussières minérales (en rouge) présentent majoritairement une pente positive alors que les particules issues des pollutions urbaines (en noir) ou des feux de biomasse (en vert) présentent majoritairement une pente négative (**Figure 1.3**).

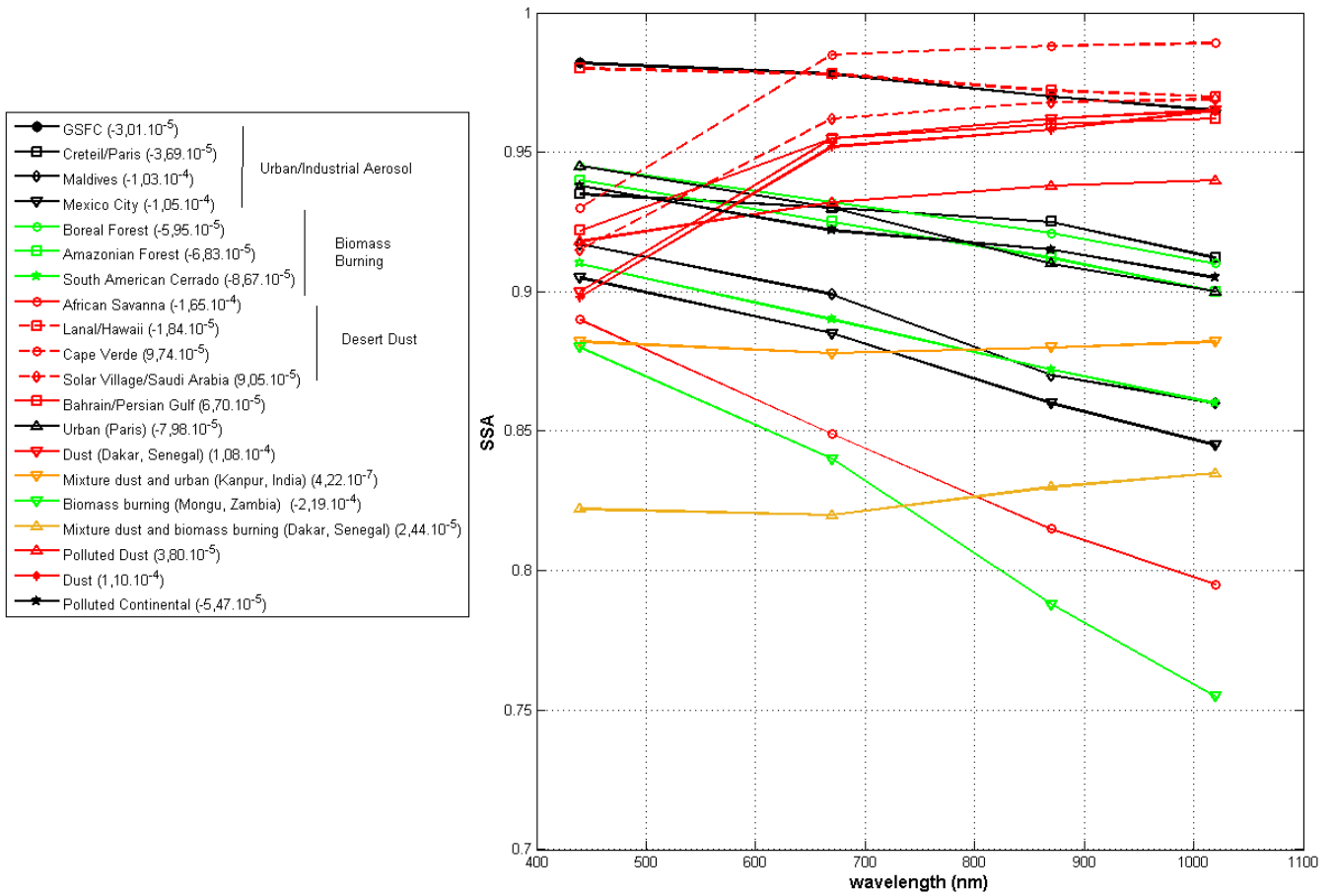


Figure 1.3 : Variations spectrales de l'albedo de simple diffusion pour différents types d'aérosols : en noir, les aérosols issus des activités urbaines, en vert, les aérosols issus des feux de biomasse, en rouge, les aérosols minéraux, et en orange, une combinaison d'origines de masses d'air (Dubovik et al., 2002 ; Mishra et al., 2014 ; Derimian et al., 2016). Les pentes entre parenthèses sont exprimées en nm⁻¹.

1.2.3.2.4. Coefficient d'Angström

L'exposant d'Angström de diffusion, ou coefficient d'Angström, α , est défini comme la variation du coefficient de diffusion entre deux longueurs d'ondes (λ et λ_0) :

$$\frac{\sigma_{diff}(\lambda)}{\sigma_{diff}(\lambda_0)} = \left(\frac{\lambda}{\lambda_0}\right)^{-\alpha} \quad (1.9)$$

Il existe également l'exposant d'Angström d'absorption et d'extinction, mais sont beaucoup moins utilisés dans l'étude des propriétés optiques de l'aérosol.

Un exposant d'Angström autour de 2 implique une distribution en taille d'aérosols dominée par des particules du mode accumulation, alors que des valeurs proches de 0 indiquent une distribution en taille dominée par des particules du mode grossier (Dubovik et al., 2002).

Chapitre 1 : Notions fondamentales

1.3. Forçage radiatif

Par définition (IPCC 2014) le forçage radiatif direct ΔF (en W.m^{-2}) est la variation de rayonnement F_{net} (différence entre le rayonnement descendant $\downarrow$ et montant $\uparrow$) au sommet de l'atmosphère due à la modification d'un facteur atmosphérique comme un composé chimique ou la présence d'aérosols au sommet de l'atmosphère. Pour le cas des aérosols, la définition du forçage radiatif qui leur est associé est décrite **équation 1.10** :

$$\Delta F = (F_a \downarrow - F_a \uparrow) - (F \downarrow - F \uparrow) \quad (1.10)$$

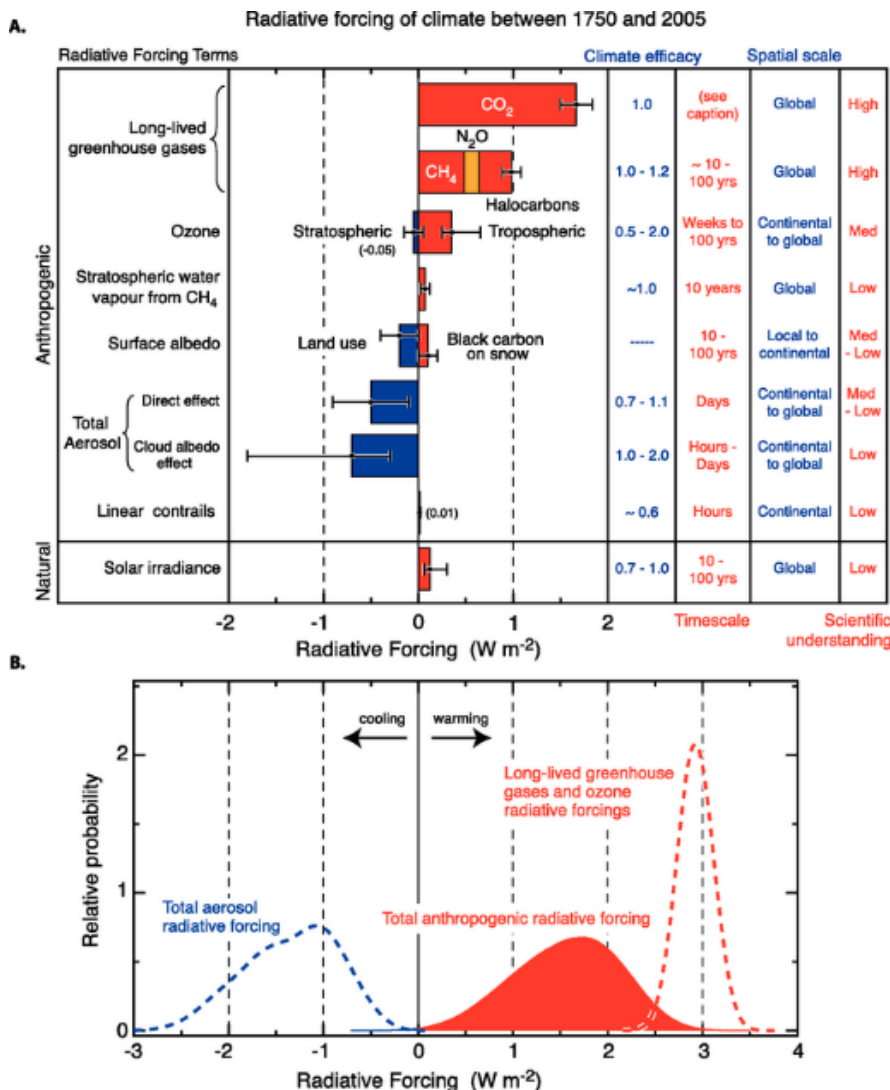


Figure 1.4 : A) Forçage radiatif global en W.m^{-2} , échelle temporelle et spatiale de l'impact des émissions et incertitudes selon différents types de constituants atmosphériques. B) Distribution de probabilité des effets anthropiques sur le climat (IPCC, 2014).

Avec F_a et F les rayonnements perçus au niveau du sommet de l'atmosphère avec et sans aérosols respectivement. Ainsi le GIEC établit à chaque rapport un bilan des forçages radiatifs pour différents types de composés atmosphériques (**Figure 1.4**). Les résultats montrent clairement le réchauffement global de la planète depuis 1750 (entre 0,7 et 1,0 $W.m^{-2}$) dû à l'impact à long terme de l'émission des gaz à effet de serre (en rouge sur la **Figure 1.4**). D'après le dernier rapport du GIEC, les aérosols induiraient plutôt un refroidissement de l'atmosphère (en bleu sur la **Figure 1.4**) mais de nombreuses incertitudes subsistent encore les concernant.

Il est possible de calculer le forçage radiatif à différents niveaux de l'atmosphère en fonction de l'intérêt de l'étude. Les plus couramment calculés sont au sommet de l'atmosphère (ou Top Of the Atmosphere, TOA, en anglais) et à la surface du globe. On appelle également forçage radiatif atmosphérique la différence des deux.

Il existe également différents types de forçages radiatifs de l'aérosol liés aux types d'interactions avec l'environnement : l'effet direct, l'effet semi-direct et les effets indirects (**Figure 1.5**).

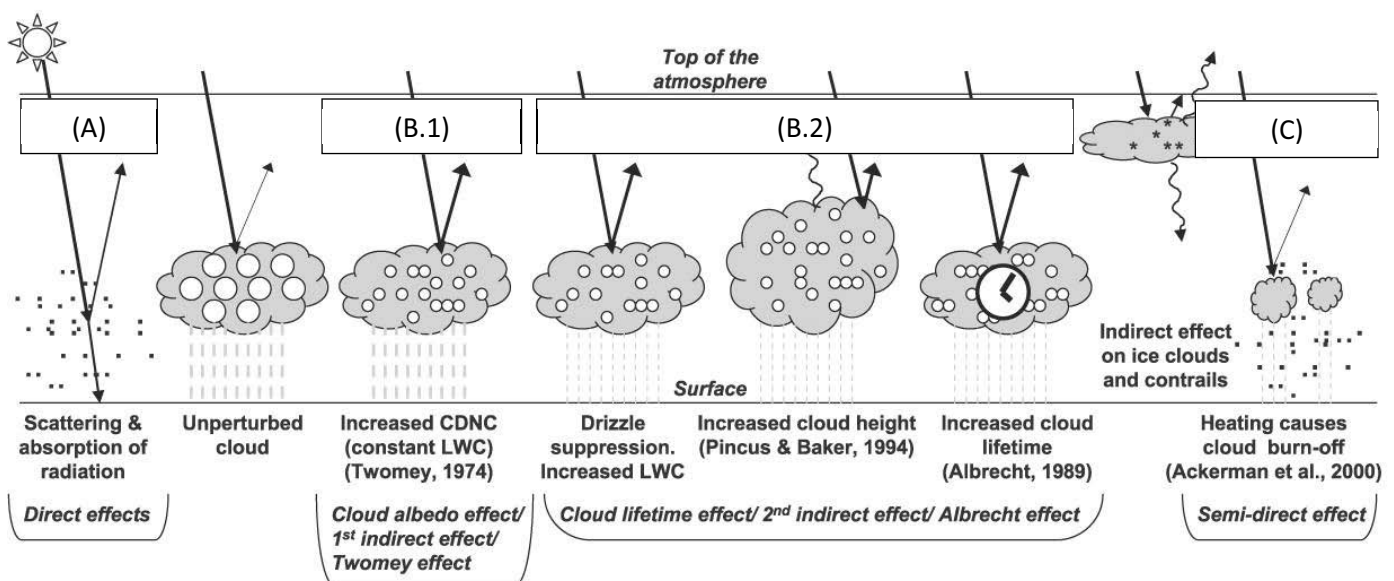


Figure 1.5 : Représentation schématique des effets directs (A), indirects (B.1 et B.2) et semi-directs (C) des aérosols sur le climat (IPCC, 2014). CDNC signifie Cloud Droplet Number Concentration (ou concentration en nombre des gouttelettes de nuage en français) et LWC signifie Liquid Water Content (ou contenu en eau liquide en français).

Chapitre 1 : Notions fondamentales

1.3.1. Effet direct

L'effet le plus souvent mentionné dans le domaine de l'impact radiatif des aérosols est l'effet direct des aérosols sur le bilan radiatif terrestre. Il peut être calculé à la fois pour les courtes longueurs d'ondes (entre 0,3 et 3 μm) et pour les longues longueurs d'ondes (entre 3 et 20 μm). Il a été mentionné précédemment que les particules d'aérosols possèdent des caractères diffusant et absorbant. Ainsi, pour une atmosphère claire (sans nuage), les rayonnements solaires et telluriques interagissent avec les aérosols. Le rayonnement est ainsi dissipé dans l'atmosphère ou rediffusé vers l'espace, ce qui est appelé effet parasol (**Figure 1.5 A**). Cet effet conduit alors à une diminution de la quantité de rayonnement perçue à la surface du globe et ainsi à un refroidissement du climat (Charlson et al., 1992 ; IPCC 2014). Il peut être plus ou moins important selon la nature des particules et donc leurs caractéristiques. De fortes incertitudes persistent sur la quantification de cet effet (**Figure 1.5**). Les travaux de cette thèse se sont consacrés à estimer l'impact radiatif des aérosols, notamment de troposphère libre en se focalisant sur l'effet direct des aérosols sur le climat pour les courtes longueurs d'ondes, là où il est estimé le plus important.

1.3.2. Effet indirect

La présence d'aérosols dans l'atmosphère perturbe également la formation, les propriétés, et la durée de vie des nuages. Les nuages ayant eux aussi un fort impact sur la quantité de rayonnement atteignant la surface du globe, on appelle effet indirect la perturbation des processus nuageux par la présence d'aérosols. On distingue alors deux types d'effet indirect. La formation d'un nuage, quel que soit le type de nuage, nécessite un noyau de condensation, rôle joué par les particules d'aérosols. Ainsi, plus les aérosols sont nombreux, plus la vapeur d'eau disponible pour la formation d'un nuage se condense en de nombreuses petites gouttelettes, et devient dans l'ensemble plus efficace pour réfléchir le rayonnement solaire. Cet effet est appelé premier effet indirect (**Figure 1.5 B.1**) et a été démontré pour la première fois par Twomey, (1974). Son effet conduit également à un refroidissement du climat. Un second effet indirect est l'impact des aérosols sur la durée de vie du nuage (**Figure 1.5 B.2**). En effet, l'augmentation du nombre de noyaux de condensation du nuage diminue la taille des gouttelettes du nuage et diminue ainsi la précipitation fine (drizzle en anglais) du nuage. Les nuages connaissent alors un développement plus long et des tailles de nuage plus conséquentes, ce qui entraîne alors un retard des précipitations et accentue leurs intensités (Albrecht, 1989). Dû à la variation spatiale importante des effets indirects, qui agissent sur de longues périodes, ils sont difficiles à quantifier et d'importantes incertitudes leur sont associées (**Figure 1.4**).

1.3.3. Effet semi-direct

L'absorption du rayonnement par les particules dans l'atmosphère génère une augmentation de la température dans les couches atmosphériques, ce qui peut avoir un impact sur la formation des nuages. Les travaux de Ackerman et al. (2000) rendent compte que cet effet est d'autant plus conséquent à partir des particules fortement absorbantes comme les particules de suie ou Black Carbon (**Figure 1.5 C**).

1.4. Distribution spatiale

Les variations verticale et horizontale de la concentration et des propriétés de l'aérosol dans l'atmosphère influencent la variation de leurs impacts radiatifs sur la planète (Laj et al., 2009). Les variations horizontales sont importantes en raison du temps de vie relativement court de l'aérosol (de l'ordre de quelques jours à environ une semaine) dans les basses couches de l'atmosphère. En effet, les sources sont inégalement réparties sur le globe et différents processus atmosphériques conduisent à un transport à plus ou moins longues distances de la source. Ainsi, les particules sont soumises, selon leur taille et leur poids, à un dépôt par sédimentation ou diffusion (dépôt sec) ou bien, lors de phénomène de précipitation, à un lessivage (dépôt humide). Les variations verticales de l'aérosol sont également importantes, et déterminées par la structure thermodynamique de l'atmosphère.

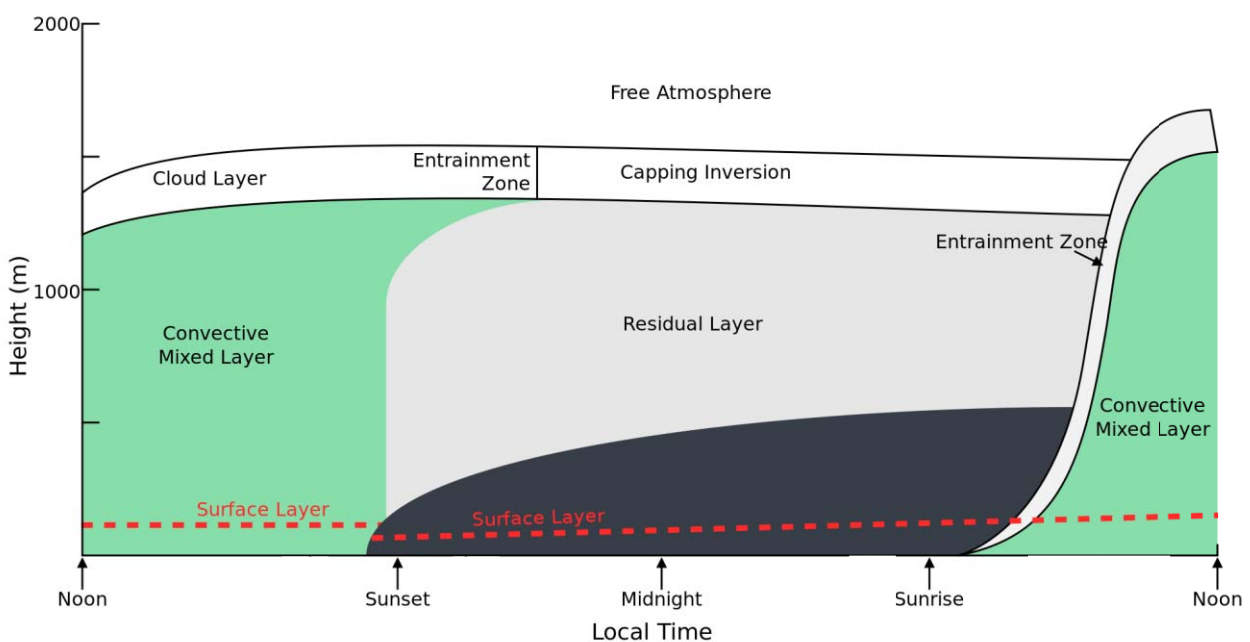


Figure 1.6 : Schématisation de la couche de mélange atmosphérique tout au long de la journée (Stull, 1988).

L'atmosphère peut être divisée en différentes couches selon des changements de régime de flux ou de température. Ainsi, on distingue la troposphère (de 0 à 15 km environ), la stratosphère (de 15 à 50 km), la mésosphère (de 50 à 85 km), la thermosphère (de 80 à 500 km) et l'exosphère

Chapitre 1 : Notions fondamentales

au-delà. 80% de la masse de l'atmosphère se retrouve dans la troposphère regroupant donc la majorité des particules d'aérosols (Seinfeld and Pandis, 2006). Celle-ci se découpe elle-même en deux sous-couches bien distinctes (Stull, 1988 ; **Figure 1.6**) : la couche de mélange (ou Planetary Boundary Layer, PBL, en anglais) proche du sol et caractérisée par des flux turbulents, et la troposphère libre (ou Free Troposphere, FT, en anglais) au-dessus. Selon l'heure de la journée, la couche de mélange est soumise à plus ou moins de turbulence et plusieurs régimes peuvent alors se distinguer : la couche de mélange convective (ou Mixing Layer, ML, en anglais) pendant la journée et la couche résiduelle la nuit. Dans la suite de l'étude, nous parlerons principalement de couche de mélange (ML) et de troposphère libre (FT) pour distinguer ces deux couches.

La topographie mène également à la modification de la hauteur de la couche de mélange par convection forcée. Il est alors possible de calculer la hauteur de la couche de mélange (HCL) modifiée, qui prend en compte la probabilité qu'une masse d'air à une altitude donnée franchisse le relief ou le contourne selon la vitesse horizontale du vent et la hauteur à franchir (Venzac et al., 2009) :

$$HCL_{mod} = HCL + H_s \quad (1.11)$$

avec

$$H_s = H(1 - F) \quad (1.12)$$

avec H : la différence entre le sommet et la base du relief.

F : le nombre de Froude tel que :

$$F = \frac{U_0}{N \cdot H} \quad (1.13)$$

avec U_0 : la vitesse du vent horizontal.

N : la fréquence de Brunt-Väisälä telle que :

$$N = \sqrt{\frac{g}{\theta_v} \cdot \frac{\delta \theta_v}{\delta z}} \quad (1.14)$$

avec θ_v : la température virtuelle potentielle

g : l'accélération de la pesanteur (9,81 m.s⁻²).

D'après l'étude de Venzac et al. (2009) sur la station du Puy de Dôme, une moyenne de cette hauteur de franchissement est d'environ 200 m.

De nombreuses études s'intéressent à l'évolution de la hauteur de la couche de mélange, qui gouverne la manière avec laquelle les aérosols seront répartis dans l'atmosphère, déterminante pour calculer leur impact.

Au niveau de la troposphère, les aérosols peuvent se répartir verticalement de différentes manières. De par les conséquences de fortes turbulences créées par une convection importante, la couche de mélange peut être vue comme totalement homogène. L'étude de Wagner et al. (2015) montre que les mesures des propriétés optiques par avions (entre la surface et 4,5 km d'altitude), lors d'une campagne de mesures au-dessus des états du Mississippi, de l'Alabama et de Georgia, sont peu différentes de celles mesurées au niveau du sol. Toutefois, de nombreuses études montrent également une variation importante de la distribution verticale en fonction des conditions atmosphériques à partir notamment de mesures LIDAR quelle que soit la localisation (Sinha et al., 2013 ; Winker et al., 2013). Une autre définition de la répartition des aérosols de troposphère suggère une décroissance linéaire ou exponentielle avec l'altitude. Ces différentes représentations seront donc testées dans le chapitre 4.

Selon la couche atmosphérique atteinte par les particules, les processus de dépôt et de transformation n'agissent pas de la même manière sur la distribution de ces particules que lorsqu'elles sont en couche de mélange. La durée de vie des particules dans l'atmosphère est plus ou moins longue selon leur appartenance aux différentes couches de l'atmosphère, et elle peut atteindre plusieurs semaines dans la troposphère libre (**Figure 1.7** ; Lagzi et al., 2014).

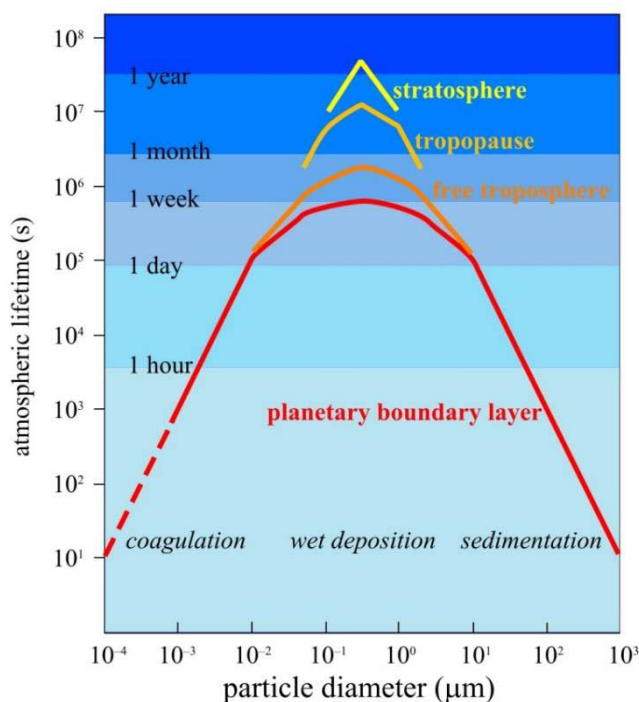


Figure 1.7 : Impact sur la durée de vie des aérosols dans les différentes couches de l'atmosphère selon les processus de dépôt sèche et humide et selon leur taille (Lagzi et al., 2014).

1.5. Hygroscopicité

L'assimilation d'eau par les particules d'aérosol conduit à une forte variation de leurs propriétés microphysiques et optiques majoritairement lorsque que l'humidité relative ambiante est supérieure à 60% (thèse de Maxime Hervo, 2012). La capacité des aérosols à absorber les molécules d'eau est appelée l'hygroscopicité. Elle se mesure à l'aide d'un paramètre appelé croissance hygroscopique (ou Hygroscopic Growth Factor, HGF, en anglais) de l'aérosol, définit comme le rapport entre le diamètre de la particule d'aérosol à humidité relative de 90% et le diamètre sec (**équation 1.15**).

$$HGF = \frac{Dp_{humide}(90\%)}{Dp_{sec}} \quad (1.15)$$

D'autres méthodes sont également utilisées afin de déterminer le coefficient de croissance hygroscopique des particules d'aérosols à différentes humidités ambiantes et sont détaillées **section 2.1.3**.

De nombreuses études montrent que le HGF des particules entraîne une importante modification des propriétés optiques des aérosols (Pilinis et al., 2014 ; Zieger et al., 2014). Les travaux de thèse de Maxime Hervo (2012) permettent également de mettre en évidence l'importance de la prise en compte de l'humidité dans la mesure des propriétés optiques des aérosols à partir de mesures par HTDMA (détaillé dans le chapitre suivant) au sommet du puy de Dôme. En effet, ces travaux montrent que l'humidité ambiante des particules engendre, pour toutes les masses d'air, en moyenne une augmentation du coefficient d'extinction d'un facteur de 3,3. Une étude similaire au Jungfraujoch (en Suisse) (Fierz-Schmidhauser et al., 2010), établit un facteur de croissance hygroscopique de $2,2 \pm 1,1$ en moyenne pour toutes les masses d'air. Enfin, l'étude de Stock et al. (2011), depuis plusieurs sites européens, rapporte des HGF entre 1,8 et 2,54 pour les particules marines, entre 1,4 et 1,65 pour des particules anthropiques, entre 1,0 et 1,13 pour les particules minérales et entre 1,1 et 1,4 pour les particules issues des feux de biomasse fraîchement émises.

Chapitre 2: Outils analytiques

Ces travaux de thèse se sont focalisés sur deux sites de mesures d'altitude représentatifs d'environnements très contrastés, le premier étant situé dans la chaîne des puys en Europe de l'Ouest et le second étant situé dans la cordillère des Andes sur le continent sud-Américain.

Le site atmosphérique du puy de Dôme est situé au centre de la France ($45^{\circ}77$ N ; $2^{\circ}96$ E) et comporte deux stations instrumentées. La station d'altitude du puy de Dôme (PUY, 1465 m), labélisée station GAW global (Global Atmospheric Watch) en 2015 et inscrite dans les programmes européens ACTRIS (Aerosol, Cloud and Trace gases Research Infrastructure Network, période 2011-2015) et ACTRIS-2 (période 2015-2019), permet une analyse complète et continue des constituants atmosphériques à intérêt climatique (gaz traces réactifs et phase particulaire). La station du puy de Dôme est située sur la première chaîne de montagnes rencontrée par un vent d'ouest dominant et est l'un des points culminant de la Chaîne des Puys

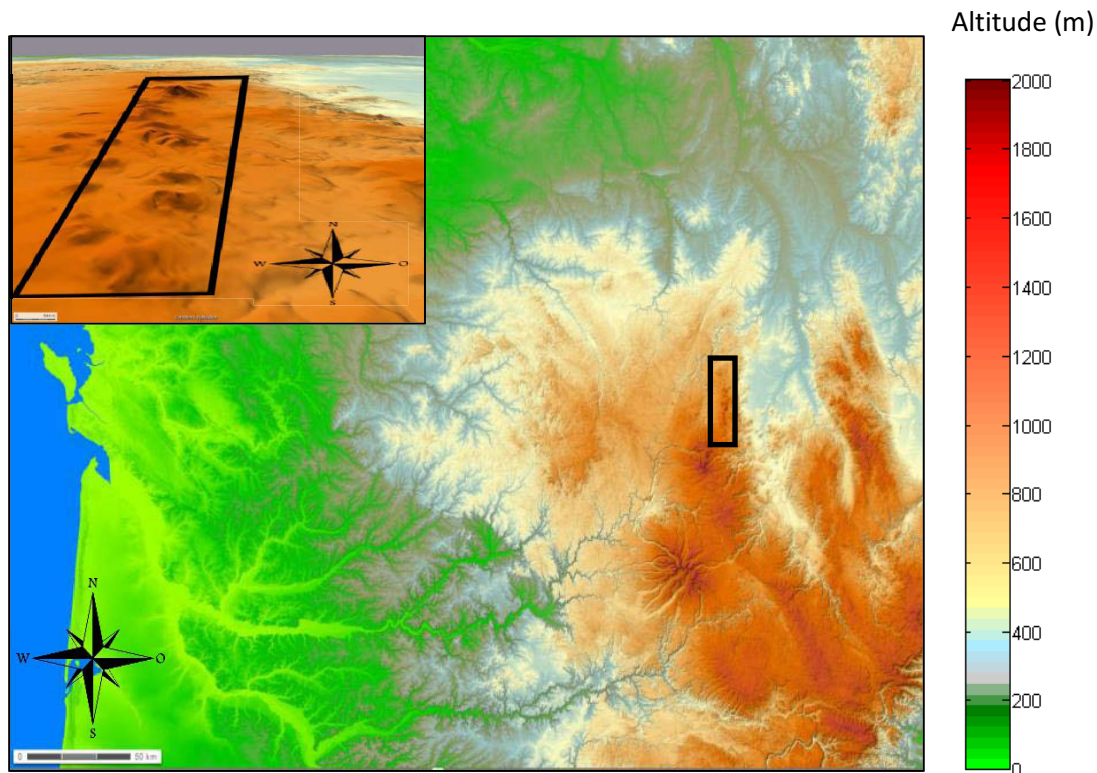


Figure 2.1: Carte topographique du centre de la France et de la situation de la Chaîne des Puys (encadrée en noir) en 2 et 3 dimensions (www.geoportail.gouv.fr).

Chapitre 2 : Outils analytiques

étendue sur 45 km sur l'axe nord-sud et seulement 3 à 4 km de large (**Figure 2.1**). A environ 10 km à l'est de la station PUY, le campus universitaire des Cézeaux (CZ, 410 m) regroupe principalement des instruments de télédétection.

Cette configuration permet une quasi absence de vent de vallée contrairement à d'autres stations situées sur des chaînes de montagnes plus importantes. Grace aux déformations moindres de la structure de l'atmosphère à l'approche de la station PUY (il est fréquent que les vents « contournent » le puy de Dôme au lieu de le « franchir »), il est possible d'étudier des phénomènes représentatifs de la couche de mélange (ML) et de la troposphère libre (FT). Des études ont également montré que la station du puy de Dôme est représentative des conditions atmosphériques régionales (Asmi et al., 2011 ; Henne et al., 2010), ce qui permet ainsi la caractérisation complète de masse d'air d'origine océanique, désertique ou continentale.

Le site atmosphérique de Chacaltaya est situé au sein de la chaîne montagneuse des Andes en Bolivie (16°21 S, 68°07 W) et comporte également deux stations instrumentées. La station d'altitude de Chacaltaya (CHC, 5240 m) est la station météorologique la plus élevée du monde et mesure en continu depuis 2011 un large jeu de paramètres météorologiques, de gaz traces et de phase particulaire à partir de mesures in-situ. La station est également labélisée station GAW et fait partie d'une large collaboration entre différents laboratoires (le Physics Research Institute of Universidad Mayor des San Andrés en Bolivie, le LGGE, le LSCE et le LaMP en France, le ISAC en Italie, le TROPOS en Allemagne, le PSI en Suisse, le SU en Suède et le US NASA Godard Space Flight Center aux Etats-Unis). L'altitude du site permet de caractériser les propriétés de la troposphère libre et, de par sa proximité avec le bassin Amazonien et un grand site urbain (La Paz), d'étudier les propriétés des panaches de feux de biomasse et de la pollution urbaine et de leur transport à haute altitude. Situé dans le quartier Cota-Cota de la ville de La Paz (3440 m), le Laboratorio de Fisica de la Atmosfera (16°54 S, 68°07 W) complète les mesures de Chacaltaya à partir de mesures de télédétection (LIDAR et photomètre). La ville de près de 2 millions d'habitants est située dans un canyon et est entourée par un haut plateau (l'Altiplano). Les principales sources de particules locales influençant les mesures réalisées sur ce site sont donc les industries locales, les transports et le désert de l'Altiplano.

Afin d'analyser au mieux chacune des propriétés définissant l'aérosol, un large panel instrumental équipe les deux stations. Il est possible de séparer ces instruments en deux principaux types liés à leur méthode de mesure : les instruments caractérisant l'air ambiant (dit in-situ) étant ainsi reliés à une prise d'air (inlet) et les instruments caractérisant l'atmosphère à distance (dits de télédétection) pouvant être actifs (émission d'un signal puis réception) ou passif (réception d'un signal émis par une source extérieure). Ces deux méthodes de mesures sont complémentaires dans l'étude des propriétés de l'atmosphère pouvant soit donner accès à un large jeu de caractéristiques détaillées (microphysiques, optiques et chimiques) dans le cas des mesures in situ, soit donner des caractéristiques globales de l'atmosphère (sur la colonne atmosphérique, sur la structure de l'atmosphère et/ou sur l'étendue verticale et horizontale du paramètre observé) dans le cas des instruments de télédétection.

Les instruments présentés dans cette partie sont pour la plupart présents sur les deux sites d'étude. Les techniques instrumentales utilisées dans les différents travaux de cette thèse ainsi que les limites de chacune des techniques et leurs améliorations apportées sont détaillées.

2.1 Mesures in-situ

Les deux stations décrites précédemment sont munies de veines d'échantillonnage de l'air ambiant extérieur appelées Whole Air Inlet (WAI). Ces dernières permettent de contrôler le débit du flux entrant et d'imposer un diamètre de coupure de 35 μm , permettant alors d'échantillonner et d'assécher les gouttelettes de nuages si elles sont présentes afin de faciliter la mesure. Grâce à la différence entre la température extérieure et la température à l'intérieur des stations, l'humidité n'excède pas 40% pour les WAI du puy de Dôme mais peuvent atteindre 90% pour le WAI de Chacaltaya. Les propriétés mesurées par les instruments du puy de Dôme sont donc considérées comme des propriétés sèches. A la sortie de ces inlets, il est possible de raccorder plusieurs types d'instruments pour mesurer la distribution en taille ou les propriétés optiques des aérosols par exemple.

2.1.1 Distribution en taille (PSD)

Afin de couvrir la totalité des gammes de tailles de l'aérosol et pour définir au mieux chacun des modes caractérisant la diversité des aérosols atmosphériques (**section 1.2.2**), plusieurs instruments sont utilisés simultanément.

Le SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer, Venzac et al., 2009) utilisé à la station du puy de Dôme depuis 2006, a été développé au LaMP. Les particules chargées (naturellement ou non) sont neutralisées par une source radioactive (^{63}Ni) avant d'être sélectionnées selon leur taille par un DMA (Differential Mobility Analyser) et comptées par un CPC (Condensation Particle Counter, modèle TSI 3010). Le principe de fonctionnement du DMA est basé sur la séparation des particules selon leur mobilité électrique introduit par Wang and Flagan (1990). En effet, la mobilité électrique de chaque particule est directement liée à leur taille et au nombre de charges portées par chaque particule, et est bien documentée (Wiedensohler, 1988). Les particules ainsi neutralisées au préalable sont sélectionnées uniquement selon leur taille. Le nombre de particules suivant les gammes de tailles sélectionnées est alors mesuré à l'aide d'un CPC. Couvrant les diamètres de particules de 10 à 400 nm avec 106 canaux, le SMPS peut caractériser les modes nucléations (particules de diamètres entre 1 nm et 20 nm environ), Aitken (entre 10 et 100 nm environ) et Accumulation (entre 100 et 1000 nm environ).

Le GRIMM – OPC 1.108 (Optical Particle Counter) permet de caractériser le mode grossier de la distribution en taille. Un volume d'air contenant des particules est traversé par un faisceau laser à 638 nm et le rayonnement diffusé latéralement (entre 60° et 120°) est mesuré. L'effet diffusant des particules étant directement lié à la taille des particules (Burkart et al., 2010), l'OPC permet de détecter des particules de 0,35 à 18 μm de diamètre (16 canaux), caractérisant donc le mode grossier de la distribution en taille.

Chapitre 2 : Outils analytiques

Un exemple d'étude du coefficient de diffusion en fonction du diamètre des particules à partir de l'utilisation d'un code de Mie montre, pour un cas de masses d'air marines (**Figure 2.2**), l'importance des particules du mode accumulation (particules de diamètres entre 100 et 1000 nm environ) d'un point de vue optique. Ces travaux de thèse s'intéressant particulièrement à l'impact radiatif des aérosols, nous nous sommes donc intéressés aux instruments recouvrant les gammes de taille du mode accumulation et du mode grossier.

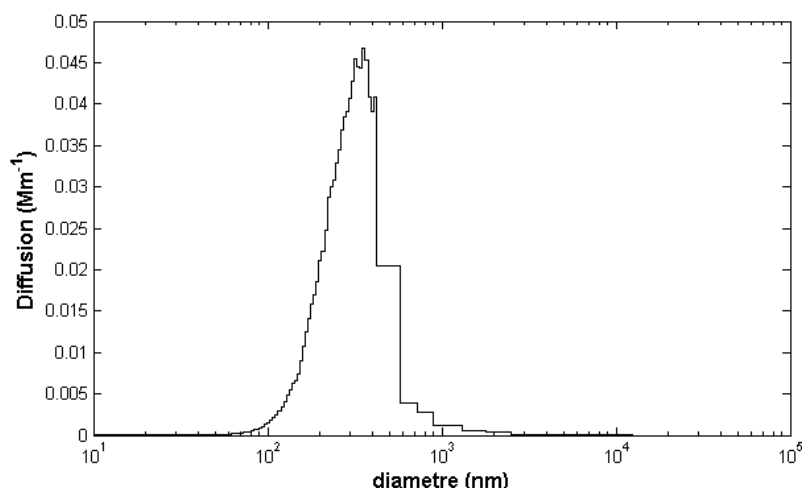


Figure 2.2: Coefficient de diffusion en fonction de la taille des particules à partir d'un code de Mie.

Le SMPS du puy de Dôme a été comparé à un instrument référence du programme européen ACTRIS en 2011. D'après cette comparaison, les deux instruments sont en accord à 5% près comme montré dans les travaux de Venzac et al. (2009). De plus, des tests de mesure avec des billes de latex (indice de réfraction de 1,59) ont montré une précision sur la détermination de la taille des particules à 4% près.

La mesure du GRIMM – OPC permet de restituer la distribution en taille des aérosols à partir de leurs propriétés de diffusion et d'un code de Mie en supposant ces aérosols sphériques et un indice de réfraction fixe. Ces hypothèses engendrent ainsi des incertitudes sur les mesures de concentration en particules du GRIMM estimées à moins de 10% par les travaux de comparaison instrumentale de Burkart et al. (2010).

2.1.2 Propriétés optiques

2.1.2.1 Coefficient de diffusion

Le néphélomètre mesure l'intensité de diffusion des particules à 3 longueurs d'onde, à la fois intégrée sur les angles latéraux (angles de diffusion) et intégrée sur les angles arrières (angles de retro-diffusion). Par effet de bruitage avec le faisceau laser émis, des zones aveugles ne permettent pas aux néphélomètres d'obtenir la totalité de l'information sur la diffusion avant et arrière (**section 1.2.3**). Il est donc nécessaire d'apporter des corrections sur les mesures pour obtenir l'information totale de la diffusion selon l'**équation 2.1**.

$$\sigma_{scat}(\lambda) = \sigma_{neph}(\lambda)(a_1(\lambda) + a_2(\lambda)\text{\AA}) \quad (2.1)$$

avec $\sigma_{scat}(\lambda)$ le coefficient de diffusion totale

$\sigma_{neph}(\lambda)$ le coefficient de diffusion mesuré par le néphélomètre

$\text{\AA}$ le coefficient d'angström

a_1 et a_2 des coefficients correctifs dont les valeurs sont répertoriées dans le **Tableau 2.1**.

	TSI 3563	Ecotech Aurora 3000
Longueurs d'onde λ	450, 550 et 700 nm	450, 525 et 635 nm
Angles de diffusion	7° - 170°	10° - 171°
Angles de rétro-diffusion	90° - 170°	90° - 171°
Coefficients de corrections	Anderson and Ogren (1998)	Müller et al. (2011)
a_1	1.365 (450nm)	1.455 (450nm)
	1.337 (550nm)	1.434 (525nm)
	1.297 (700nm)	1.403 (635nm)
a_2	0.156 (450nm)	0.189 (450nm)
	0.138 (550nm)	0.176 (525nm)
	0.113 (700nm)	0.156 (635nm)

Tableau 2.1: Caractéristiques techniques des néphélomètres TSI 3563 basé au puy de Dôme et Ecotech Aurora 3000 basé à Chacaltaya.

Deux néphélomètres différents sont utilisés sur les sites décrits précédemment (un TSI 3563 au puy de Dôme et un Ecotech Aurora 3000 à Chacaltaya). Basés sur le même principe de mesure, mais différant en terme de longueurs d'onde utilisées et d'angles de mesures (**Tableau 2.1**), les corrections à apporter sont différentes selon Anderson and Ogren (1998) pour le TSI 3563 et selon Müller et al. (2011) pour l'Aurora 3000.

Le coefficient de diffusion (σ_{scat}) étant obtenu à 3 longueurs d'onde, il est également possible à partir des mesures des néphélomètres de calculer les coefficients d'angström de diffusion ($\text{\AA}$, **section 1.2.3.2.4**).

Chapitre 2 : Outils analytiques

2.1.2.2. Coefficient d'absorption

Deux techniques de mesures ont été utilisées afin d'obtenir une information sur l'absorption des aérosols.

Un MAAP (Multi Angles Absorption Photometer) 5012 est installé au puy de Dôme depuis 2008 et à Chacaltaya depuis 2012. Emettant un faisceau laser à 670 nm, il permet de mesurer le rayonnement transmis et rétrodiffusé par les particules impactées sur un filtre et ainsi de remonter à la concentration massique équivalente en carbone suie (m_{EBC} , Equivalent Black Carbon). Les travaux de (Petzold and Schönlinner, 2004) décrivent l'instrument et la méthode de mesure en détails. Le coefficient d'absorption σ_{abs} peut être calculé à partir du m_{EBC} mesuré par l'instrument et d'un coefficient d'absorption spécifique ($Q_{EBC}=6,6m^2.g^{-1}$) selon l'équation 2.2 (Müller et al., 2010). De plus, la longueur d'onde de l'instrument donnée par le constructeur n'étant pas exactement celle émise (637 nm au lieu de 670 nm), il est nécessaire d'apporter un facteur correctif sur les mesures (1,05 selon (Müller et al., 2010)).

$$\sigma_{abs} = m_{EBC} \cdot Q_{EBC} \cdot 1,05 \quad (2.2)$$

Avec σ_{abs} le coefficient d'absorption

m_{EBC} la concentration massique équivalente en carbone suie

Q_{EBC} le coefficient d'absorption spécifique

L'aéthalomètre est également utilisé afin de déterminer le coefficient d'absorption de l'aérosol. L'instrument utilisé à la station de Chacaltaya depuis 2012 est un Magee Aethalometer (AE 31) permettant d'obtenir les coefficients d'absorption à 7 longueurs d'onde (370, 470, 520, 590, 660, 880 et 950nm). La mesure de la variation de transmission au travers d'un filtre permet d'obtenir la concentration en EBC. Cette technique entraîne des incertitudes dans les mesures comme le taux de charge des filtres ou encore la non prise en compte de la diffusion multiple. Dans ces travaux de thèse, les corrections empiriques préconisées par Weingartner et al. (2003) ont été appliquées présentant une bonne corrélation avec les mesures du MAAP et une application pour des faibles concentrations (Collaud Coen et al., 2010)). Cette méthode de correction a également été validée et utilisée dans d'autres études (Sciare et al., 2011 ; Favez et al., 2010). Une première étape de la correction préconisée par Weingartner et al. (2003) est de calculer le coefficient d'atténuation à partir des mesures de concentration massique équivalente en carbone suie (m_{EBC}) à partir d'une longueur d'onde donnée.

$$\sigma_{att,\lambda} = \frac{m_{EBC,\lambda}}{\sigma_{ATN,\lambda}} \quad (2.3)$$

Avec σ_{att} le coefficient d'atténuation

m_{EBC} la concentration massique équivalente en carbone suie

σ_{ATN} le paramètre spécifique d'atténuation donné par le constructeur et inversement proportionnel à la longueur d'onde utilisée (pour un aethalomètre Magee : $\sigma_{ATN}=14625/\lambda$).

Une seconde étape consiste à calculer le coefficient $R(ATN)$ suivant l'équation 2.4 décrivant alors l'augmentation de l'absorption due à l'accumulation de particules sur le filtre (dit «shadowing effect »).

$$R(ATN)_\lambda = \left(\frac{1}{f_\lambda} - 1\right) * \frac{\ln(ATN)_\lambda - \ln(10)}{\ln(50) - \ln(10)} + 1 \quad (2.4)$$

Avec $R(ATN)_\lambda$ le coefficient décrivant le shadowing effect

f_λ un facteur correctif empirique (initialisé à 0,8)

ATN l'atténuation mesurée par l'instrument

Le coefficient d'absorption est ainsi calculé, pour $f_\lambda=0,8$, à partir de l'équation suivant :

$$\sigma_{abs,\lambda} = \frac{\sigma_{att,\lambda}}{2.14 * R(ATN)_\lambda} \quad (2.5)$$

Une dernière étape vise à incrémenter le facteur correctif f_λ de façon à ce que le rapport entre deux calculs de $\sigma_{abs,\lambda}$ soit compris entre 1 et 1,005 (environ 5% de confiance sur la mesure).

2.1.2.3. Incertitudes et tests de sensibilité

Les incertitudes liées à la mesure des coefficients de diffusion et d'absorption sont bien référencées. L'incertitude sur le coefficient de diffusion mesuré par le néphélomètre TSI 3563 est de moins de 7% (Anderson et al., 1996) et la différence de mesure avec l'Aurora 3000 est au maximum de 5% (Müller et al., 2011). L'incertitude pour le coefficient d'absorption à 637nm mesuré par le MAAP est de $\pm 12\%$ (Petzold and Schönlinner, 2004).

La co-localisation des deux instruments sur la station de CHC permet la comparaison des produits restitués ainsi que la vérification des corrections apportées sur trois années de mesures (de 2012 à 2014 soit plus de 8000 points). Le biais instrumental entre le MAAP et l'aethalomètre observé sur la **Figure 2.3 a)** est en grande partie compensé par la correction proposée par Weingartner et al. (2003) sur la **Figure 2.3 b)**.

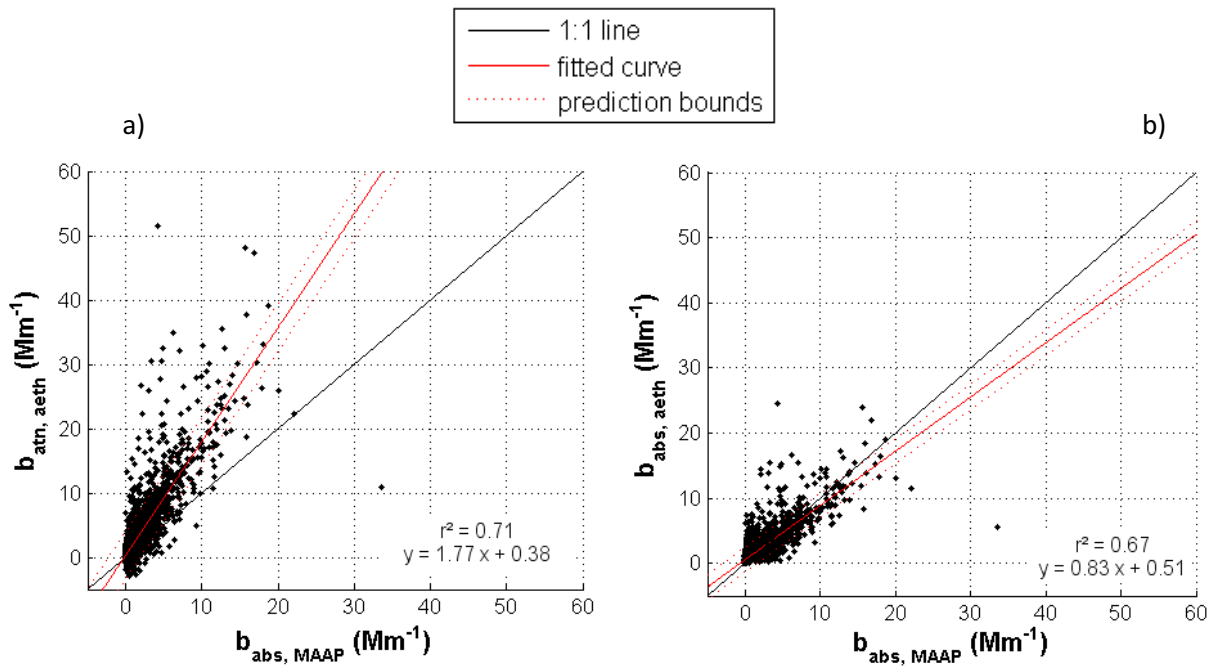


Figure 2.3: Comparaison du coefficients d'absorption de l'aéthalomètre à 660 nm en fonction de ceux du MAAP à 670 nm t de l'aéthalomètre à 660 nm a) non compensé données non corrigées (b_{atn}) et b) données compensées par la correction proposée par Weingartner et al. (2003).

2.1.3. Hygroscopicité : HTDMA et impacteurs en cascade

La capacité d'un aérosol à absorber et rediffuser la lumière est fortement influencée par son caractère hygroscopique. Cette capacité a donc été mesurée à partir d'un HTDMA (**section 2.1.3**) au puy de Dôme de 2008 à 2013. Pendant cette période, il est donc possible d'obtenir des coefficients d'accroissement hygroscopique (HGF) selon différentes humidités relatives et différentes tailles de particules.

Un HTDMA est composé de deux DMA, un humidificateur et un CPC. Le premier DMA permet de sélectionner une taille voulue d'aérosols pour une humidité relative inférieure à 40% (sec). L'aérosol est alors humidifié à une humidité relative habituellement proche de 90%, et un second DMA maintenu à humidité relative élevée permet de scanner plusieurs tailles d'aérosol afin d'en compter la concentration à l'aide d'un CPC à eau (TSI 3772) et ainsi de déterminer la taille de l'aérosol humide. Le facteur de croissance hygroscopique (HGF) est défini comme le rapport du diamètre D_p de la particule humidifiée et du diamètre de la particule sèche selon :

$$HGF = \frac{D_{p_{\text{humide}}}}{D_{p_{\text{sec}}}} \quad (2.6)$$

Saison	Masse d'air	$\alpha \times 10^{-4}$	$b \times 10^{-2}$	GF (à 90%)		
				Dp = 25 nm	50 nm	165 nm
Tout	Tout	5.08	7.63	1.23	1.26	1.45
Hiver	Tout	4.09	7.13	1.21	1.24	1.38
Printemps	Tout	5.48	7.23	1.22	1.26	1.45
Eté	Tout	5.09	7.50	1.22	1.26	1.44
Automne	Tout	4.95	9.28	1.27	1.31	1.49
Tout	Océanique	5.51	7.68	1.23	1.27	1.47
Tout	Océanique modifié	6.40	7.78	1.24	1.29	1.53
Tout	Africain	4.59	7.12	1.21	1.24	1.40
Tout	Local	5.15	6.90	1.21	1.24	1.43
Tout	Continental	4.97	8.44	1.25	1.29	1.47

Tableau 2.2: Paramétrisation du facteur hygroscopique HGF en fonction de l'humidité relative (RH) à partir des mesures HTDMA installé au Puy de Dôme (Holmgren et al., 2014) et exemple de HGF à 90 % d'humidité pour des particules de 25 nm, 50 nm et 165 nm de diamètre. Les coefficients a sont exprimés en nm⁻¹ et les coefficients b sans unité.

Selon la croissance observée de l'aérosol, il peut être classé selon 3 catégories : hydrophobique, moyen et hygroscopique. Les facteurs de croissance hygroscopique de l'aérosol obtenus peuvent alors être appliqués à la distribution en taille de l'aérosol sèche mesurée par SMPS pour obtenir une distribution en taille humide.

A partir d'une climatologie de la croissance hygroscopique de l'aérosol menée sur 5 ans de mesures, Holmgren et al. (2014) ont généré une paramétrisation du $HGF=f(D_p)$ de l'aérosol (**équation 2.7**) au puy de Dôme en fonction de la saison et du type de masse d'air (**Tableau 2.2**). Ne possédant pas de mesures HTDMA au puy de Dôme depuis début 2013, les travaux de cette thèse utilisent cette paramétrisation, avec a et b les coefficients utilisés selon le **Tableau 2.2**:

$$HGF = \left(1 - \frac{RH}{100}\right)^{-a \times d_p - b} \quad (2.7)$$

Cette paramétrisation n'étant applicable que pour les gammes de taille du SMPS (entre 10 et 400 nm), il est nécessaire d'avoir recours à d'autres techniques pour les gammes de taille plus élevées. Des mesures de la composition chimique au puy de Dôme à partir d'impacteurs en cascade ont permis de réaliser une table des paramètres hygroscopiques κ (**Tableau 2.3**) relatifs à la composition chimique des aérosols selon leur taille et l'humidité relative pour différentes masses d'air et saisons (Bourcier et al., 2012). En effet, HGF peut être retrouvé à partir de κ ,

Chapitre 2 : Outils analytiques

du diamètre des particules D_p et de l'humidité relative RH selon l'équation suivante (Petters and Kreidenweis, 2007) :

$$\kappa = \frac{(HGF^3 - 1)e^{\frac{A}{D_p \times HGF}}}{RH} - HGF^3 + 1 \quad (2.8)$$

Avec κ le paramètre hygroscopique

HGF le coefficient de croissance hygroscopique

A une constante.

D_p le diamètre des particules

RH l'humidité relative.

	kappa	GF		
		RH=90%	80%	60%
Dp (acc) = 165 nm				
océanique	0.25	1.45	1.25	1.11
océanique modifiée	0.27	1.48	1.27	1.12
continentale	0.26	1.47	1.26	1.11
mediterranéenne	0.27	1.48	1.27	1.12
Dp (grossier) = 2 µm				
océanique	0.47	1.73	1.42	1.19
océanique modifiée	0.42	1.68	1.40	1.18
continentale	0.19	1.39	1.21	1.09
mediterranéenne	0.17	1.36	1.19	1.08

Tableau 2.3: Facteur hygroscopique (HGF) calculé à partir des κ calculés au puy de Dôme à partir de mesures par impacteur en cascade de la composition chimique de l'aérosol sur filtre (Bourcier et al., 2012).

2.2. Télédétection

Les instruments de télédétection utilisés dans ces travaux de thèse sont localisés sur les stations de plus basse altitude (campus universitaire des Cézeaux, 420 m pour la station PUY et campus universitaire de La Paz, 3440 m pour la station CHC). Cette configuration permet alors d'obtenir une information sur la distribution verticale de l'aérosol le long de la colonne atmosphérique.

2.2.1. Mesures intégrées des propriétés optiques de l'aérosol

Le photomètre mesure l'atténuation du rayonnement solaire (différence entre l'intensité lumineuse sans atmosphère et la mesure réelle de l'intensité lumineuse perçue). Les photomètres (CIMEL 318) utilisés dans ces travaux sont inscrits dans le réseau AERONET (Aerosol RObotic NETwork, Holben et al., 1998) établi par la NASA et le réseau européen

PHOTONS (Goloub et al., 2007). Ce programme visant à obtenir des mesures continues des propriétés optiques, microphysiques et radiatives de l'aérosol, plus de 1200 instruments ont été déployés sur la totalité du globe depuis le début du réseau (**Figure 2.4**). Les données sont librement accessibles sur le site d'AERONET (<http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>). Il existe également des photomètres mobiles pouvant être adaptés à la mesure aéroportée ou sur bateau afin d'accéder à des localisations d'un intérêt particulier.

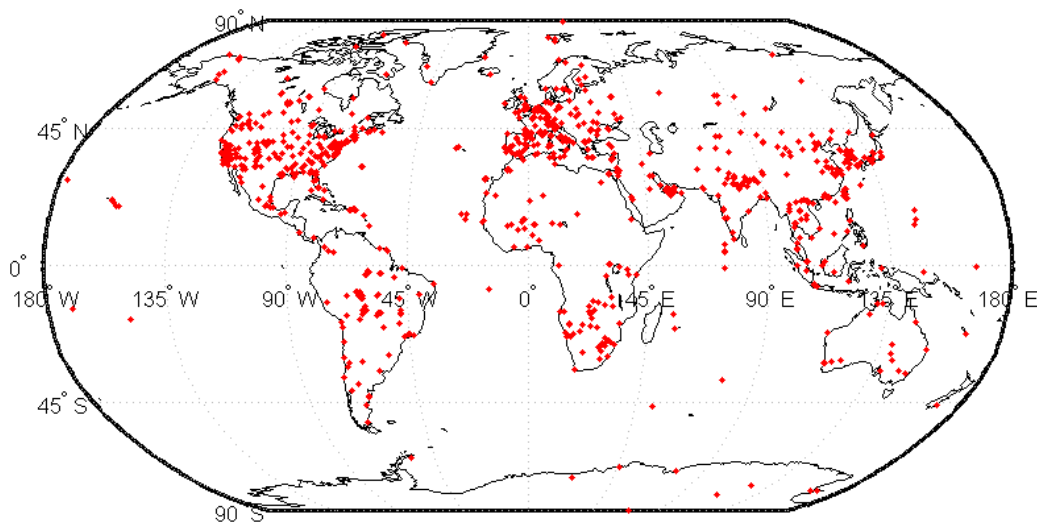


Figure 2.4: Carte mondiale des emplacements des photomètres inscrits dans le réseau AERONET dans le monde.

La mesure directe du photomètre permet d'obtenir l'épaisseur optique d'extinction des aérosols (AOD, **section 1.2.3.1**) pour différentes longueurs d'onde (440, 675, 870 et 1020 nm pour le photomètre du puy de Dôme et 340, 380, 440, 500, 675, 870 et 1020 nm pour le photomètre de Chacaltaya) ainsi que le coefficient d'angström d'extinction. Il s'agit d'une mesure intégrée sur la colonne atmosphérique. Les niveaux 1.5 et 2 des données AERONET sont utilisés dans ces travaux de thèse correspondant respectivement à des données filtrées des cas de nuage et validées (calibration, température, dépendance spectrale, filtre nuage, cohérence de la mesure,...).

Un algorithme d'inversion présenté dans les travaux de Dubovik et King, (2000) permet d'obtenir à partir des mesures directes du photomètre des propriétés optiques, microphysiques et radiatives de l'aérosol plus détaillées. Ainsi, selon la qualité des mesures, l'algorithme restitue la distribution en taille volumique ($dV(r)/d\ln(r)$ pour des diamètres de 0,1 à 30 μm), la fonction de phase (incluant le coefficient d'asymétrie), l'albedo de simple diffusion et l'indice de réfraction complexe. La distribution en taille restituée par le photomètre est principalement composée de deux modes : un mode fin (diamètres de particules inférieurs à 0,6 μm) et un mode grossier (diamètres de particules supérieurs à 0,6 μm) avec un possible mode intermédiaire (Kaufman and Holben, 1996).

Chapitre 2 : Outils analytiques

L'incertitude totale sur l'AOD photométrique est inférieure à 0.02 (Dubovik et King, 2000). Certaines hypothèses employées dans l'algorithme d'inversion des données photométriques peuvent engendrer des incertitudes sur les produits restitués comme la simplification des différents modes de la distribution en taille de l'aérosol, mais également la sphéricité des particules, leur composition, Dubovik et al. (2000) effectuent une analyse de sensibilité des produits photométriques à partir de différentes simulations. Les résultats montrent une bonne restitution de la PSD pour des AOD supérieures à 0,05 et qu'une erreur de $\pm 0,01$ sur l'AOD mesurée à 440 nm peut engendrer une erreur sur la PSD de 15% à 35% pour des diamètres de 0,1 à 7 μm , et de 30% à 100% hors de ces diamètres. La comparaison des produits de restitution photométriques aux mesures in situ sera analysée et discutée dans cette thèse (**chapitre 3**).

2.2.2. Rayonnement global et diffus

Le pyranomètre permet de mesurer la quantité de rayonnement solaire arrivant jusqu'au sol sur la gamme spectrale solaire complète. Le principe de fonctionnement repose sur la détection thermoélectrique. La plupart des pyranomètres mesurent les quantités de rayonnement global et diffus (un pare-soleil permet de soustraire la part du rayonnement venant directement du soleil) et sont exprimées en W.m^{-2} .

La différence entre la quantité de rayonnement solaire reçue au sol dans l'hypothèse d'une atmosphère sans aérosols et le rayonnement mesuré peut alors donner une information sur la quantité d'aérosols sur la colonne atmosphérique. Néanmoins de nombreux paramètres influencent la quantité de rayonnement perçue au sol outre les aérosols atmosphériques comme la vapeur d'eau ou le profil de température, ce qui complexifie la compréhension de la mesure.

2.2.3. Distribution verticale en aérosols

Certains instruments de télédétection permettent d'obtenir une information sur la distribution verticale de la composition de la colonne atmosphérique. Le LIDAR (Light Detection and Ranging) est utilisé dans cette thèse afin de connaître la structure de l'atmosphère, la distribution verticale en aérosols ainsi que certaines propriétés optiques des aérosols

2.2.3.1. Le LIDAR

Le LIDAR est un instrument de télédétection actif principalement composé d'une partie émettrice (laser) et d'une partie réceptrice (télescope) (**Figure 2.5**). Le faisceau laser émis de manière pulsée est absorbé et diffusé dans toutes les directions par les molécules et les particules rencontrées (**section 1.2.3**) et le signal rétrodiffusé est ensuite réceptionné par un télescope. Le temps mis de l'émission à la réception permet d'obtenir l'altitude de chacun des signaux rétrodiffusés. Dans les années 60, les premières applications LIDAR étaient consacrées à la détection de l'altitude des nuages. A présent, les LIDAR atmosphériques sont largement utilisés pour la détection de la répartition verticale de l'aérosol dans l'atmosphère (signal élastique), de la répartition de la vapeur d'eau ou encore de constituants gazeux (comme le dioxyde d'azote

et l'ozone à partir des signaux inélastiques) mais aussi des mesures de vent (LIDAR Doppler) et de température. Des réseaux de mesures se sont développés comme le réseau européen EARLINET (composante d'ACTRIS-2) dans lequel le LIDAR de Clermont-Ferrand est inscrit.

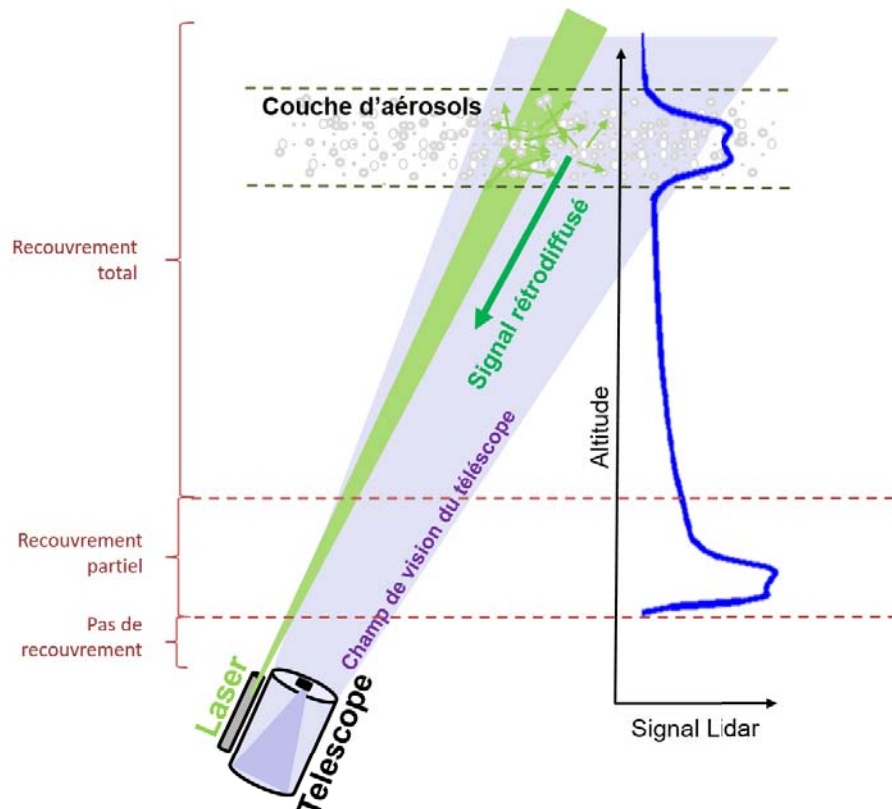


Figure 2.5: Principe de fonctionnement schématique de la mesure LIDAR.
Exemple de signal pour une couche d'aérosols en altitude.

Le LIDAR Raymetrics de Clermont-Ferrand est situé sur le toit de l'OPGC (Observatoire de Physique du Globe de Clermont-Ferrand) sur la station des Cézeaux (**Figure 2.6**). Il s'agit d'un LIDAR Rayleigh-Mie et Raman permettant à la fois d'obtenir une information sur les aérosols (diffusion Rayleigh et Mie), les nuages (diffusion de Mie) et les gaz N_2 et H_2O (diffusion Raman) (**voir section 1.2.3**). Le laser (CFR-400 Nd :YAG de Quantel) émet initialement à la longueur d'onde de 1064 nm. A l'aide de cristaux doubleur et tripleur, le signal est doublé en fréquence à 532 nm puis à 355 nm. Pour des raisons de sécurité aérienne, seul le signal à 355 nm (de polarisation rectiligne) est émis dans l'atmosphère avec une énergie par pulse de 60 mJ à une fréquence de 10Hz. Le télescope utilisé est de type Cassegrain de 40 cm de diamètre avec une distance focale de 4 m. Plus de détails sur l'instrument peuvent être trouvés dans l'étude de Freville et al. (2015).

Chapitre 2 : Outils analytiques

Du fait que les axes du faisceau laser et du télescope ne soient pas coaxiaux comme le représente la **Figure 2.5** à basse altitude réside une zone aveugle où aucune information sur l'état de l'atmosphère n'est disponible et une zone de recouvrement partiel où seule une partie du rayonnement rétrodiffusé est capté par le télescope.

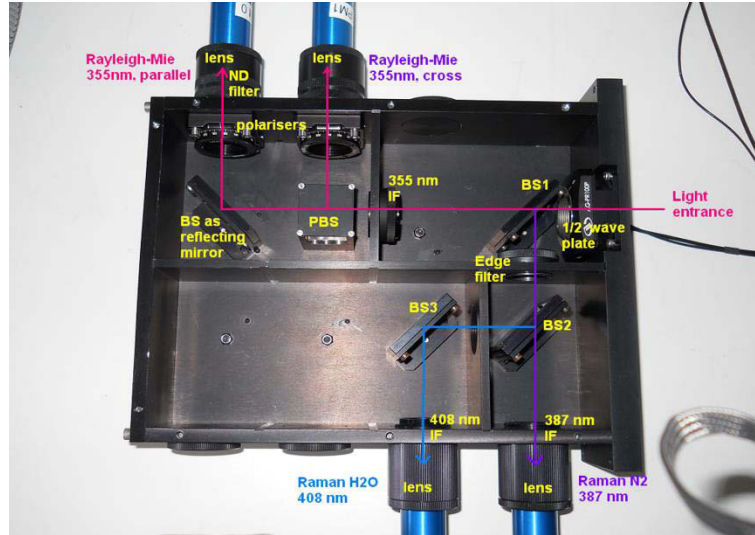


Figure 2.6: Partie optique du LIDAR de Clermont Ferrand situé sur le toit du Laboratoire du campus universitaire des Cézeaux. Dans le boîtier du système optique, NS signifie neutral density filter, BS beam splitter, PBS polarization beam splitter et IF interference filter.

L'équation LIDAR exprimant la quantité de rayonnement rétrodiffusé par les molécules et les particules atmosphériques peut se trouver sous la forme suivante :

$$P(z) = \frac{E_0 \cdot C \cdot O(z)}{z^2} \cdot \beta(z) \cdot e^{\int_0^z -2\alpha(z') \cdot dz'} \quad (2.9)$$

Avec $P(z)$ la puissance rétrodiffusée à une distance z du LIDAR, E_0 l'énergie émise par le LIDAR, C la constante LIDAR décrivant l'efficacité du système optique de détection, $O(z)$ la fonction de recouvrement permettant de corriger le signal dans la zone de recouvrement partiel (**Figure 2.5** et **section 2.2.3.4**), $\beta(z)$ le coefficient de rétrodiffusion des particules et des molécules présentes dans l'atmosphère et $\alpha(z')$ leur coefficient d'extinction. Les coefficients de rétrodiffusion et d'extinction des aérosols sont les propriétés des aérosols que l'on cherche à déterminer or ces deux grandeurs sont liées par une seule et même équation (**équation 2.9**). Pour résoudre cette équation on utilise la notion de rapport lidar qui relie ces deux grandeurs selon l'**équation 2.10**. Ce rapport lidar est défini comme le rapport entre le coefficient d'extinction α et le coefficient de rétrodiffusion β , et est exprimé en stéradian (sr) :

$$L = \frac{\alpha}{\beta} \quad (2.10)$$

L'acquisition du signal se fait selon deux modes : analogique pour les basses couches et photocomptage pour les hautes altitudes. Dans le cas du LIDAR utilisé dans cette étude, un PBS (polarization beam splitter) installé sur le chemin optique de réception du signal (**Figure 2.6**) permet d'obtenir une information supplémentaire sur l'état de polarisation des rayons rétrodiffusés (**équation 2.12**) et ainsi sur la nature des particules rencontrées (sphériques ou non).

Il est donc important de connaître chacune des composantes de cette équation afin de restituer au mieux la distribution verticale en aérosols ainsi que leurs propriétés optiques.

2.2.3.2. Corrections systématiques des données LIDAR

Afin d'obtenir un signal exploitable à partir des données LIDAR brutes (en pointillés noirs sur la **Figure 2.7**), il est nécessaire d'appliquer des corrections dépendant uniquement des caractéristiques techniques de l'instrument.

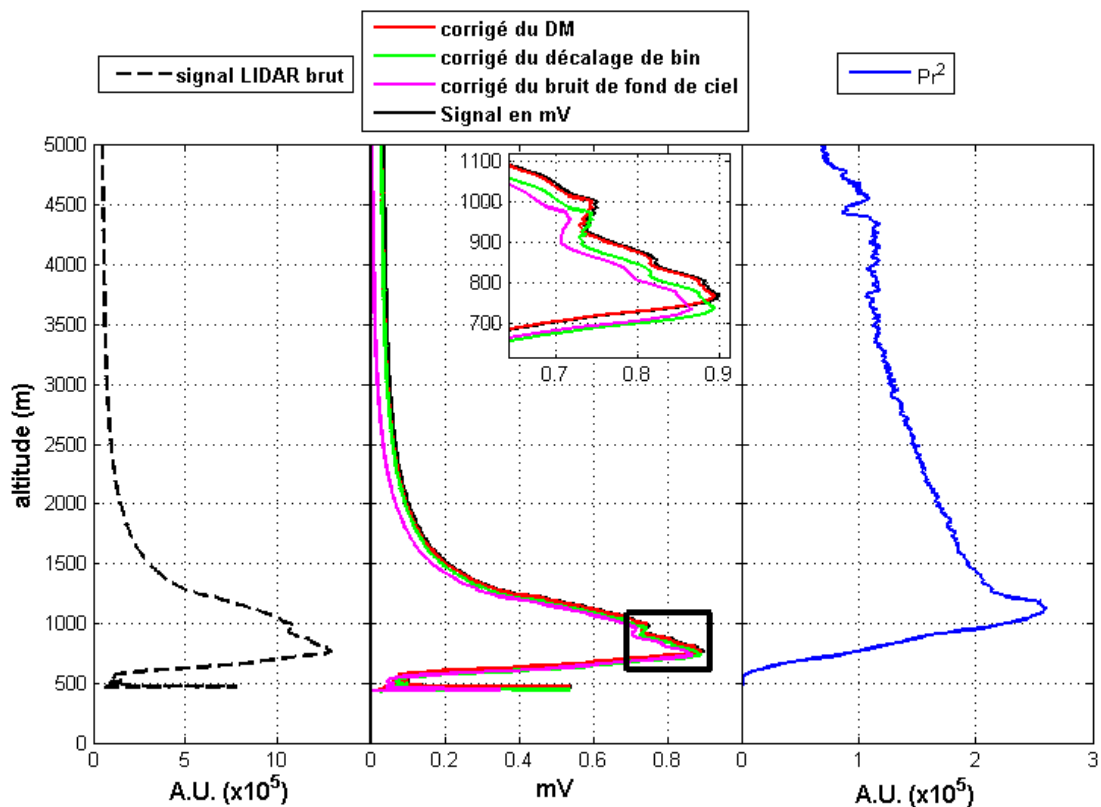


Figure 2.7: Effets des corrections apportées à un profil LIDAR brut (pointillés noirs) analogique du 27 Septembre 2014 à 5h20: conversion en mV (ligne pleine noire), correction du Dark Measurement (en rouge), du décalage de bin (en vert), correction du bruit de fond de ciel (en magenta) et correction par l'altitude (en bleu).

Chapitre 2 : Outils analytiques

Une première correction consiste à corriger le signal de tous les bruits électroniques. En effet, en empêchant tout signal atmosphérique d'être perçu par le télescope (en occultant complètement le télescope), le signal LIDAR reste non-nul. Le signal ainsi mesuré, appelé Dark Measurement (DM), est alors supprimé du signal analogique LIDAR (signal rouge sur la **Figure 2.7**).

Un décalage entre l'émission de l'impulsion laser et le déclenchement de l'acquisition peut également engendrer d'importantes erreurs dans l'interprétation des signaux LIDAR. Ce décalage en bins (en altitude) est alors corrigé (de 5 bins pour le signal analogique, et de 8 bins pour le signal en photocomptage) (signal vert sur la **Figure 2.7**).

Le signal LIDAR est également corrigé du bruit de fond de ciel correspondant au signal entre 30 et 55 km d'altitude. Ceci permet alors d'établir un signal autour de 0 (supposant aucun élément rétrodiffusant dans cette partie de l'atmosphère) sur cette partie du profil (signal magenta sur la **Figure 2.7**).

Enfin, après avoir converti les signaux numériques en mV et en MHz (pour les signaux analogique et photocomptage respectivement), le signal est corrigé de l'altitude. En effet, du fait de l'angle de divergence du laser, le volume analysé par chaque impulsion laser croît avec l'altitude ce qui influence significativement la quantité de rayonnement rétrodiffusé.

2.2.3.3. Inversion LIDAR

Après l'application des corrections détaillées dans la section précédente sur le signal (Dark measurements, correction du bruit de fond de ciel, décalage de bin, conversion en mV, et multiplication par le carré de l'altitude), le LIDAR fournit un signal corrigé de l'altitude (Pr^2) qui regroupe à la fois le signal moléculaire et le signal particulaire renvoyés par l'atmosphère. Afin d'obtenir uniquement une information sur le signal particulaire, l'inversion dite de Klett (1981) est appliquée sur les profils verticaux (**Figure 2.8**).

Cette inversion considère une zone de référence (dite zone moléculaire) dans laquelle il n'y a pas d'aérosols. Il est ainsi possible d'accéder à la rétrodiffusion due à la phase particulaire (Backscatter coefficient, β_{aer}) de l'atmosphère grâce à la formule basée sur l'inversion suivante (Weitkamp, 2005):

$$\beta_{aer}(z) = \frac{S(z)e^{-2\int_{R_0}^R (L_{aer}(z') - L_{mol}(z'))\beta_{mol}dz'}}{\frac{S(R_0)}{\beta_{aer}(R_0) + \beta_{mol}(R_0)} - 2\int_{R_0}^R L_{aer}(z)S(z)e^{-2\int_{R_0}^R (L_{aer}(z'') - L_{mol}(z''))\beta_{mol}(z'')dz''}dz - \beta_{mol}} \quad (2.11)$$

Avec $S(R)$ le signal LIDAR corrigé de l'altitude (équivalent à Pr^2), L_{aer} et L_{mol} les rapports LIDAR aérosol et moléculaire, R_0 l'altitude moyenne de la zone moléculaire avec β_{aer} et β_{mol} le signal rétrodiffusé aérosol et moléculaire.

Le signal dû à la phase moléculaire de l'atmosphère (β_{mol}) est calculé à l'aide des profils de température et de pression du lieu de mesures (Bucholtz, 1995). En raison du manque de sondage atmosphérique proche de Clermont-Ferrand, des profils de température et de pression standards sont utilisés et corrigés à partir des mesures au sol sur site.

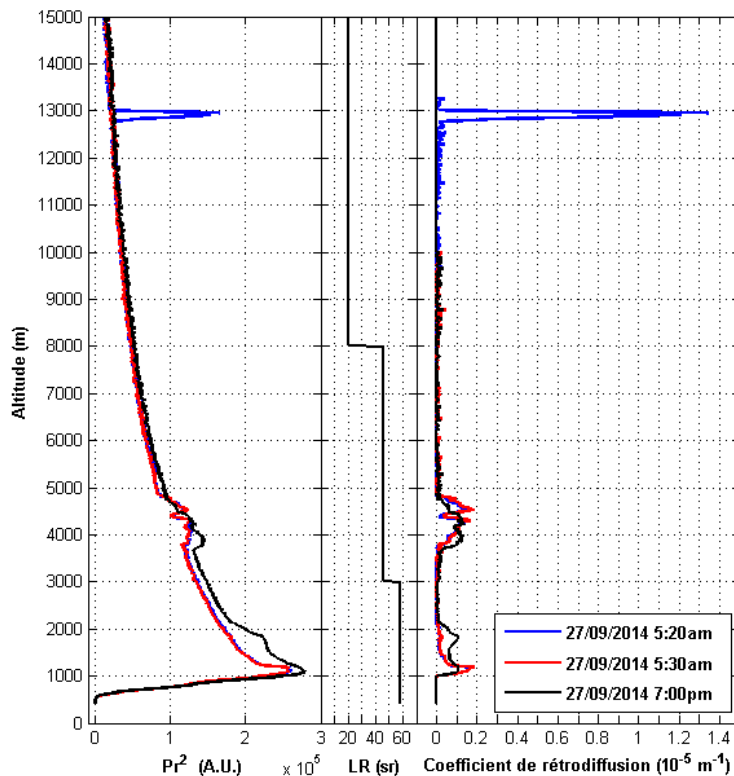


Figure 2.8: Profils Pr^2 (à gauche) de la journée du 27 septembre 2014 à 5h20 (en bleu), 5h30 (en rouge) et 19h (en noir) ainsi que le rapport LIDAR (L_{aer} , au milieu) utilisé dans l'inversion en fonction de l'altitude, et le signal rétrodiffusé (à droite) calculé à partir de l'inversion de Klett.

Une des difficultés majeures rencontrée avec un LIDAR émettant à une seule longueur d'onde est d'utiliser un rapport LIDAR aérosol (L_{aer}) qui représente au mieux les caractéristiques des aérosols mesurés sur toute la colonne. Le rapport LIDAR propre aux gaz est bien défini dans la littérature ($L_{mol}=8\pi/3$). Pour une longueur d'onde donnée, L_{aer} dépend du type d'aérosol : pollution anthropique, embruns marins, poussières désertiques, feux de biomasse,... Plusieurs études ont alors rapporté suivant différentes techniques des L_{aer} pour chaque type de sources d'aérosol (Müller et al., 2007 ; Omar et al., 2009). Dans l'exemple de l'inversion des profils LIDAR de la **Figure 2.8**, trois différents L_{aer} ont été utilisés en prenant en compte la dominance des types d'aérosols dans chacune des couches pour ce cas précis: soit 58 sr en basse couche (entre 0 et 3km d'altitude) correspondant à un L_{aer} typique des masses d'air provenant de l'Europe centrale, 46 sr de 3 à 8 km correspondant à des aérosols issus de feux de biomasse

Chapitre 2 : Outils analytiques

selon une étude plus approfondie du cas du 27 septembre 2014, et 20 sr au-delà correspondant aux cirrus (Müller et al., 2007 ; Reichardt et al., 2002).

A partir d'un rapport LIDAR bien défini et à partir de l'équation 2.10, il est possible de calculer le profil LIDAR du coefficient d'extinction connaissant le coefficient de rétrodiffusion. Mais en raison d'une forte variabilité du L_{aer} en fonction de la nature de l'aérosol et de la difficulté à identifier le type d'aérosol transporté à une altitude donnée, le profil d'extinction calculé par cette méthode est d'autant plus discutable. Il existe d'autres méthodes pour déterminer le profil vertical d'extinction LIDAR, notamment à partir des voies Raman dont est muni le LIDAR de Clermont-Ferrand. Les voies Raman permettent de mesurer le signal inélastique rétrodiffusé par l'atmosphère dû aux changements d'états vibrationnel et rotationnel de certaines molécules (Weitkamp, 2005). Ce signal est directement relié à la composition chimique des particules et à leurs concentrations. Ainsi, le calcul de l'extinction moléculaire à partir de profils de température et de pression permet de supprimer une inconnue de l'équation LIDAR et de calculer directement le profil d'extinction aérosols. Cependant, les voies Ramans sont fortement bruitées et ne peuvent être utilisées que la nuit.

Un autre produit LIDAR également largement utilisé pour caractériser l'aérosol est la dépolarisation δ reliée directement à la forme des particules : les particules sphériques (gouttes d'eau, aérosols liquides) dépolarisent peu ($\delta \approx 0$) alors que les particules asphériques (poussières désertiques, cristaux de glace) dépolarisent fortement (entre 0,30 et 0,33 pour les poussières désertiques, 0,35-0,37 pour les particules volcaniques et entre 0,4 et 0,6 pour les cristaux de glaces à 532 nm selon (Ansmann et al., 2011)). Le LIDAR utilisé à Clermont-Ferrand est muni de deux voies élastiques à 355 nm : une à polarisation parallèle ($\parallel$) et l'autre à polarisation perpendiculaire ($\perp$). Il est ainsi possible de déterminer le profil du rapport de dépolarisation $\delta(z)$ selon l'équation 2.12 et ainsi obtenir une information sur la forme des particules influençant le signal LIDAR:

$$\delta(z) = \frac{S_{\perp}(z)}{S_{\perp}(z) + S_{\parallel}(z)} \quad (2.12)$$

2.2.3.4. Correction de la zone de recouvrement partiel

Le laser et le télescope étant situés à quelques centimètres l'un de l'autre (non coaxiaux), une zone aveugle et une zone de recouvrement partiel apparaissent entre le faisceau laser et le champ de vision du télescope (**Figure 2.5**). Ne pouvant donc mesurer qu'une partie du signal atmosphérique rétrodiffusé aux altitudes correspondant à un recouvrement partiel, il est nécessaire de corriger le signal reçu par le LIDAR par des méthodes bien connues dans le domaine mais spécifiques à chaque instrument et à la méthode d'utilisation des données LIDAR.

La fonction de recouvrement $O(z)$ utilisée dans l'équation LIDAR (équation 2.9) suppose un alignement parfait entre le laser et le télescope. Elle est égale à 1 lorsque le recouvrement est de 100% et 0 lorsque le recouvrement est nul (**Figure 2.9 b**). Kuze et al. (1998) démontrent qu'il est possible de déterminer cette fonction $O(z)$ à partir de la géométrie de l'instrument (champ de vision du télescope, diamètre du miroir primaire du télescope, angle de divergence du laser, distance entre le télescope et le laser,...). La fonction de recouvrement théorique peut alors se trouver sous la forme suivante :

$$O(z) = \frac{1}{2} \left(1 + \tanh \frac{z - z_0}{\Gamma} \right) \quad (2.13)$$

Avec :

$$z_0 = (r_A + r_B)/2 \quad (2.14)$$

$$\Gamma = (r_A - r_B)/\kappa \quad (2.15)$$

Avec r_A et r_B les altitudes du minimum et du maximum de recouvrement respectivement, illustrées sur la **Figure 2.9 a**), et κ une constante du laser due à la dégradation du faisceau laser dans l'air.

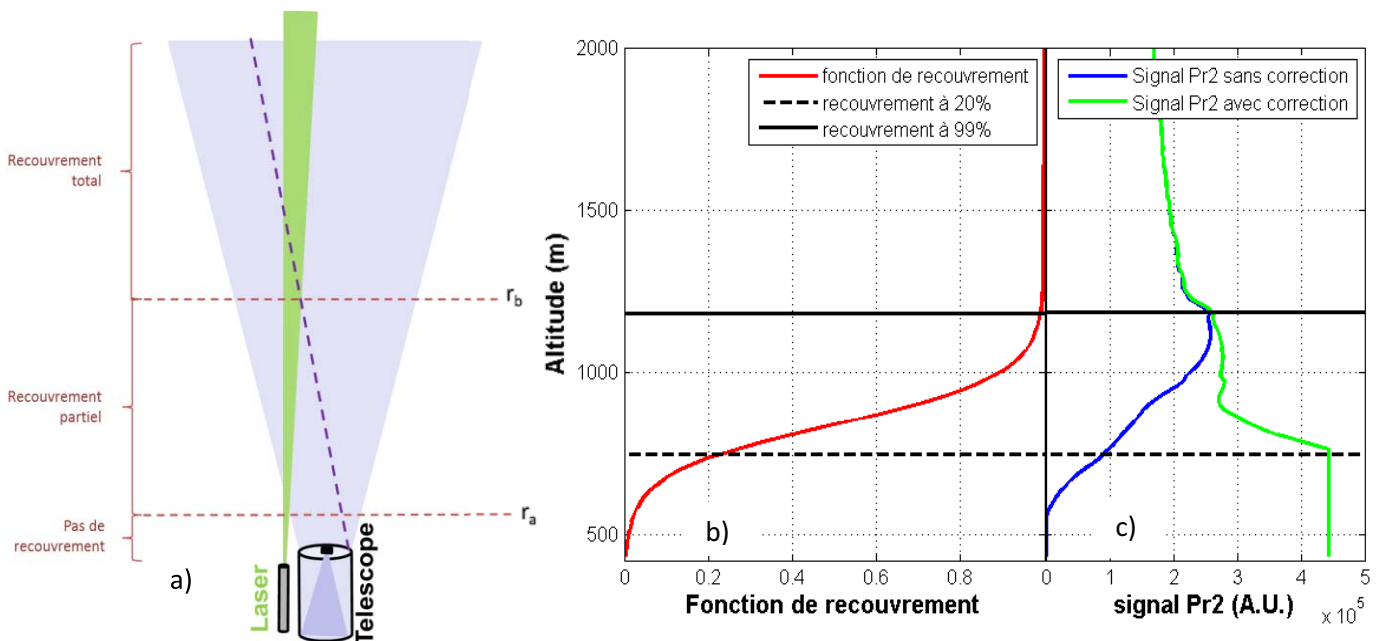


Figure 2.9: a) Schéma représentatif du LIDAR et du recouvrement entre le champ de vision du télescope (en violet) et la divergence du laser (en vert), b) fonction de recouvrement théorique, et c) son application sur le profil vertical du 27 septembre 2014 à 5h20 à partir du maximum du signal $Pr^2_{\max}$ (trait plein noir similaire au r_B) jusqu'au seuil de 20% du recouvrement (pointillés noirs).

Chapitre 2 : Outils analytiques

Les altitudes r_A et r_B peuvent être établies à partir des caractéristiques du LIDAR mais également être mesurées en recouvrant respectivement les secteurs Sud et Nord du télescope (méthode du telecover). Pour la configuration laser/télescope du LIDAR de Clermont-Ferrand, l'altitude de recouvrement minimum théorique r_A est de 200 m au-dessus du LIDAR et l'altitude de recouvrement maximum r_B est de 1000 m au-dessus du LIDAR.

Il est également possible de déterminer la fonction de recouvrement de façon expérimentale grâce à des tirs horizontaux du LIDAR. En effet, en supposant l'atmosphère homogène en basse couche, le signal LIDAR horizontal est supposé constant. Le recouvrement partiel des premières centaines de mètres du profil en dessous du maximum de signal engendre donc un signal plus faible dans cette zone. La correction apportée pour ajuster ce manque de signal à un signal constant constitue donc la fonction de recouvrement $O(z)$ (similaire à la courbe rouge théorique sur la **Figure 2.9 b**)). Néanmoins, cette méthode expérimentale demande une manipulation de l'instrument complexe avec la nécessité d'une constante présence d'un opérateur (inclinaison manuelle du LIDAR et nécessité d'un contrôle sur l'alignement entre le télescope et le laser).

Des tests ont alors été réalisés pendant cette thèse dans le but d'apporter au mieux cette correction des basses couches de la troposphère indispensable à l'analyse des données LIDAR sur des mesures continues de l'instrument. La méthode de correction utilisée dans ces travaux est basée sur une correction théorique décrite dans les travaux de Kuze et al. (1998) et ajustée selon des tests réalisés sur l'instrument de la station du campus des Cézeaux pendant cette thèse.

Des mesures simultanées du signal vertical ainsi que des mesures de l'altitude de recouvrement total (r_B) par telecover ont été réalisées pour différents angles de tir du laser soit différents alignements entre le laser et le télescope. L'altitude r_A étant plus stable au cours du temps, elle est ici calculée en fonction des caractéristiques géométriques de l'instrument. Pour chaque angle de tir du laser, il est alors possible d'établir la relation entre le maximum de recouvrement r_B et le maximum du signal LIDAR $Pr^2_{\max}$.

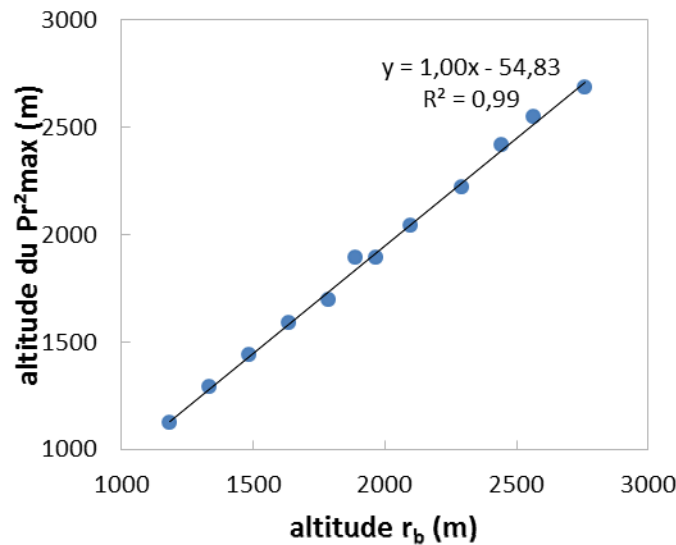


Figure 2.10: Résultat de la comparaison entre la mesure du maximum de signal Pr^2 et l'altitude de recouvrement total r_B .

Les tests ont montré que ces deux paramètres sont fortement corrélés et qu'ils peuvent être reliés directement (**Figure 2.10**). Il est donc possible de calculer r_B sans avoir à le mesurer, en utilisant l'altitude du maximum du Pr^2 , et ainsi de calculer théoriquement (à partir des caractéristiques du LIDAR et de l'altitude du Pr^2_{max}) la fonction de recouvrement $O(z)$ pour chaque profil LIDAR indépendamment. La **Figure 2.9 b**) représente une fonction de recouvrement théorique appliqué à partir du maximum du signal Pr^2_{max} (trait plein noir) jusqu'à 20% du recouvrement. Pour la zone de non recouvrement (entre 20% du recouvrement et l'altitude du LIDAR de 420 m), le signal est quant à lui supposé constant, ce qui semble être un compromis entre une correction trop importante par la méthode théorique et un signal non-corrigé.

2.2.3.5. Détermination de la structure de l'atmosphère

2.2.3.5.1. Masque Nuage

L'inversion LIDAR étant plus difficile lorsqu'il y a présence de nuages dans le signal, il est nécessaire de filtrer les données du LIDAR de façon automatique. Cette étape est réalisée à partir du calcul de la déviation standard du signal normalisé du LIDAR. Le signal normalisé correspond au signal LIDAR divisé par le maximum du signal rencontré entre 1000 m et 1200 m (ligne pointillée noire dans la **Figure 2.11 a**) de telle sorte à pouvoir fixer un seuil constant sur la déviation standard du signal indiquant la présence de nuages. La **Figure 2.11** met en évidence les différentes étapes du filtre nuage sur la journée complète du 1^{er} mars 2016. La déviation standard est calculée sur chaque profil de la série temporelle du signal LIDAR Pr^2 normalisé en (a) et est représentée en 2 et 3 dimensions en (b) et (c) respectivement. En (d) est représenté le filtre nuage ainsi calculé automatiquement avec cette méthode pour la journée complète. Sur cette journée de mesures, il est possible d'observer les aérosols de basse couche

Chapitre 2 : Outils analytiques

(vers 1000 m) se développer au cours de la journée pour atteindre des altitudes de 2000 m. Vers 6h, l'algorithme détecte des nuages vers 3000 m d'altitude au-dessus du LIDAR (zones en blanc sur la **Figure 2.11** de gauche et en bleu clair sur la figure de droite) qui descendent au cours de la journée jusqu'à 1200 m. Une seconde couche de nuages apparaît également après 18h entre 2500 et 4000 m.

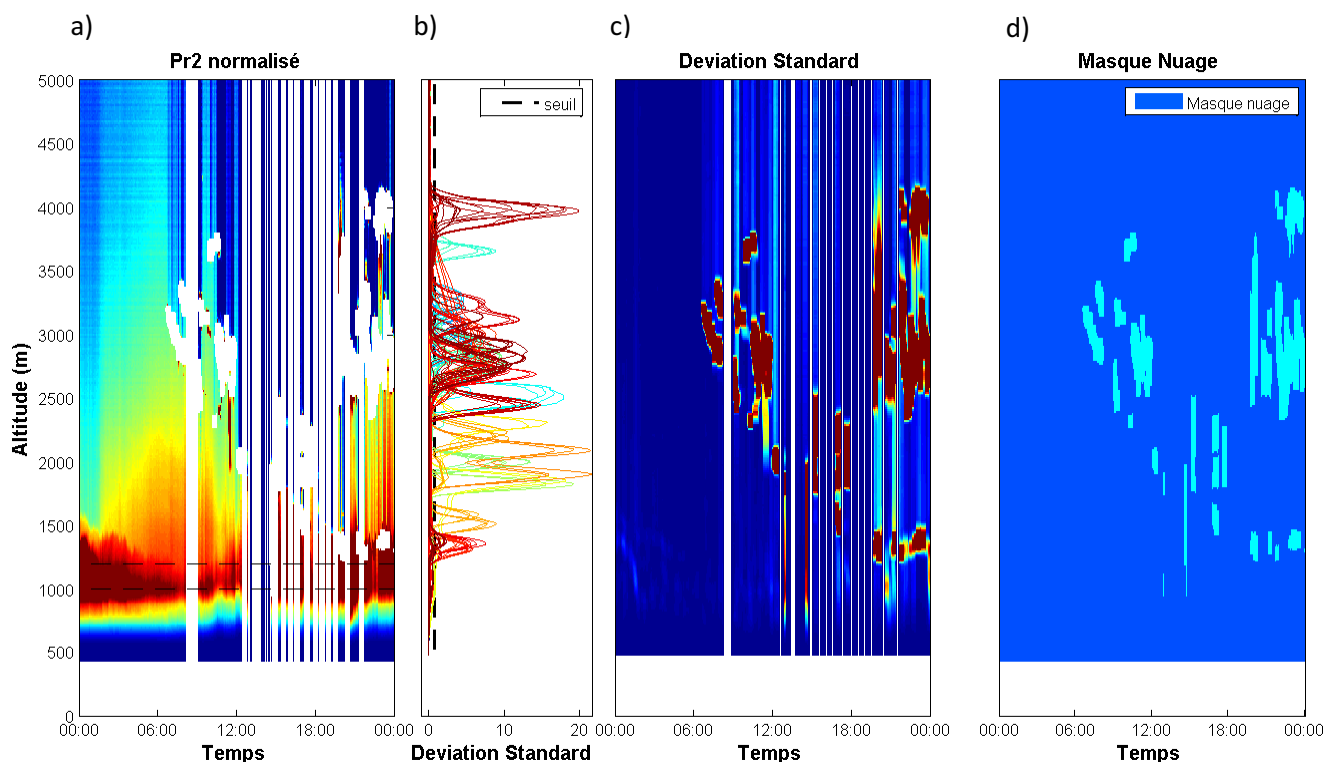


Figure 2.11: Détails de la méthode de masque nuage appliquée au 1^{er} mars 2016 à partir du signal LIDAR Pr2 normalisé (a) du 1^{er} mars 2016, du calcul de la déviation standard pour chaque profil en 2 et 3 dimensions (b et c). Le masque nuage est alors déterminé avec un seuil de la déviation standard de 0,8 et est représenté en d.

Le LIDAR est également programmé pour arrêter les tirs laser lorsqu'il détecte un trop fort signal (assimilé à la présence de nuages) qui pourrait détériorer les photomultiplicateurs. Cela permet également d'économiser le laser. Selon l'intensité du signal, les arrêts automatiques du laser sont plus ou moins longs. Ceci permet alors l'autonomie du LIDAR sur une longue période de temps tout en préservant la partie optique de l'instrument. Cet effet est visible sur la **Figure 2.11** à partir de 8h et de façon répétitive à partir de 12h jusqu'à 21h. En effet, la présence de nuages épais sur cette période conduit à l'arrêt des tirs laser et ainsi un manque de données sur la série temporelle du signal Pr² normalisé (bandes blanches).

2.2.3.5.2. Hauteur de couche de mélange.

Le LIDAR est largement utilisé pour déterminer la hauteur de la couche de mélange atmosphérique (**section 1.4**). De nombreuses techniques ont été développées dans ce but utilisant les données LIDAR comme la méthode du gradient (Flamant et al., 1997 ; Menut et al., 1999), la méthode de la variance (Piironen and Eloranta, 1995) et la méthode de la WCT (Wavelet Covariance Technique ; Brooks, 2003). Dans ces travaux de thèse, la méthode de la WCT a été choisie se montrant alors plus robuste (définissant de manière cohérente la couche limite nocturne stable et la couche de mélange le jour, Hervo (2009)) et adaptée pour des mesures LIDAR en continu (Baars et al., 2008).

La méthode de la WCT repose sur la détection de la forte décroissance de la quantité de particules entre la couche de mélange et la troposphère libre dans le signal LIDAR. Le maximum de la WCT correspond donc à la hauteur de la couche de mélange. La WCT peut se calculer suivant l'**équation 2.16** (Brooks, 2003):

$$WCT = \frac{1}{a} \int_{rb}^{rt} S(r) \cdot h\left(\frac{r-b}{a}\right) \cdot dr \quad (2.16)$$

Avec la fonction de Haar h:

$$h\left(\frac{r-b}{a}\right) = \begin{cases} +1, & b - \frac{a}{2} \leq r \leq b, \\ -1, & b \leq r \leq b + \frac{a}{2} \\ 0, & \text{sinon} \end{cases} \quad (2.17)$$

Avec $S(r)$ le signal LIDAR corrigé de l'altitude (similaire à $P(r)r^2$), r l'altitude, rb et rt les limites inférieure et supérieure du signal LIDAR respectivement, a la largeur de l'ondelette et b l'altitude à laquelle la WCT est calculée. La forme discrétisée est donc la suivante :

$$WCT = \frac{1}{n} \left(\sum_{b-\frac{a}{2}}^b P(r)r^2 \cdot dr - \sum_b^{b+\frac{a}{2}} P(r)r^2 \cdot dr \right) \quad (2.18)$$

2.2.3.5.3. Détection des couches d'aérosols

De manière similaire à la détermination de la hauteur de la couche de mélange, il est possible d'appliquer au signal LIDAR divers algorithmes permettant d'obtenir plus de détails sur la composition verticale de l'atmosphère. L'algorithme STRAT (Structure of the Atmosphere ; Morille et al., 2007) a été développé au SIRTa dans le but de caractériser chaque couche atmosphérique dans les profils LIDAR. Il est ainsi possible d'identifier depuis le signal Pr2 les nuages, les zones moléculaires, les différentes couches d'aérosols (en couche de mélange (en anglais Mixing Layer, ML) ou en Troposphère Libre (en anglais Free Troposphere, FT)), et également obtenir une information sur la détection de la zone de bruit de fond de ciel utile à la correction des données mais également la hauteur de couche de mélange atmosphérique. L'algorithme est basé sur la variation spatiale et temporelle du signal LIDAR et utilise une méthode similaire à la WCT vue dans la [section 2.2.3.5.2](#) qui est la CWT (Continuous Wavelet Transform ; Morille et al., 2007 ; Mallat and Hwang, 1992). Contrairement à la WCT (fonction de Haar égale à 0, -1 ou 1), cette méthode utilise une onde en forme de « chapeau mexicain » (dérivée seconde de la courbe de Gauss) étant plus adaptée à la détection de plusieurs couches dans le signal.

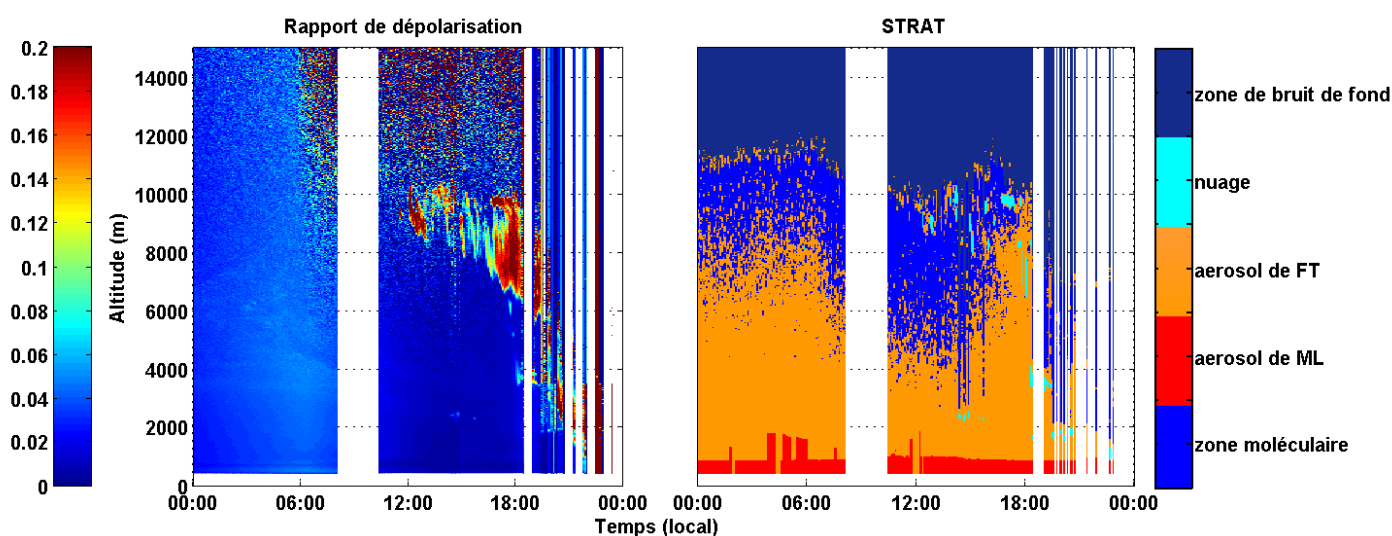


Figure 2.12: Séries temporelles (à gauche) de la dépolariation LIDAR et (à droite) des flags déterminés par l'algorithme STRAT sur la journée du 15 mars 2016. En rouge est représenté la présence d'aérosols dans la couche de mélange, en orange la présence d'aérosols en troposphère libre, en bleu clair la présence de nuages, en bleu foncé les zones moléculaires et en bleu marine les zones de bruit du signal.

La **Figure 2.12** met en relation la série temporelle du rapport de dépolariation mesurée le 15 mars 2016 (à gauche) avec la caractérisation de chaque couche déterminée par l'algorithme STRAT (à droite). La bande blanche entre 8h et 11h correspond à un arrêt des mesures par l'utilisateur pour des raisons de maintenance. La présence de nuages à partir de 14h est bien détectée par l'algorithme (flags bleus clairs). Les nuages de basse couche (< 3 000m) étant bien retrouvés par l'algorithme, les nuages de hautes altitudes type cirrus ne sont que partiellement détectés (principalement répertoriés comme aérosols de troposphère libre). En effet, le signal

rétrodiffusé par la présence de cirrus n'est que peu différent de celui des aérosols et donc difficile à distinguer. A partir de 18h, la forte présence de nuages en basse couche entraîne l'arrêt momentané des mesures LIDAR (bandes blanches).

Dans ces travaux de thèse, cet outil est utilisé pour déterminer les périodes d'atmosphère homogène ne présentant pas de couche d'aérosols transportée à haute altitude et ainsi mieux interpréter les données issues des instruments *in-situ* et du photomètre.

2.2.4. Satellites

Les satellites météorologiques permettent d'obtenir des informations sur la répartition horizontale voire verticale des composants de l'atmosphère. Depuis les années 60, la surveillance du climat est aidée grâce à la couverture mondiale des satellites qui compte aujourd'hui plus de trente stations.

Dans ce travail, les données aérosols issues de l'instrument MODIS (Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer) mesurant au nadir et embarqué sur les satellites Terra (depuis 1999) et Aqua (depuis 2002) de l'A-Train sont utilisées. Ces deux satellites permettent d'obtenir des informations sur la surface terrestre, l'océan et l'atmosphère pour chaque point du globe tous les 1 à 2 jours pour une haute résolution spatiale (de 250 m à 1 km). La partie optique est principalement constituée d'un télescope à deux miroirs (dont l'un rotatif) relié à quatre objectifs permettant la mesure de la luminance sur une large bande spectrale (de 0,4 μm à 14,4 μm). La mesure passive de MODIS permet d'obtenir des caractéristiques intégrées sur la colonne atmosphérique en collectant la luminance solaire rediffusée par la surface de la terre et l'atmosphère (en pointillé jaune sur la **Figure 2.13**) ou la luminance thermique terrestre (en pointillé rouge sur la **Figure 2.13**).

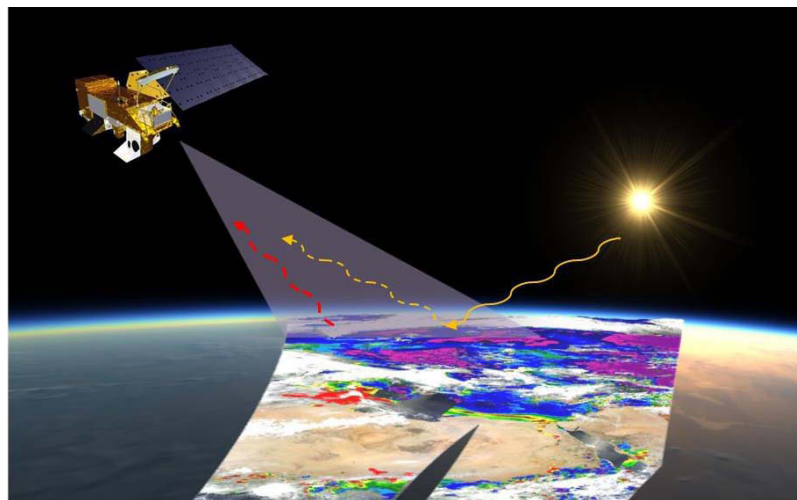


Figure 2.13: Schématisation du principe de mesure de l'instrument MODIS depuis les satellites Terra et Aqua. Les rayonnements solaires sont représentés en traits pleins jaunes, et sa réflexion par la surface de la Terre en traits pointillés jaunes. Le rayonnement thermique émis par la Terre est représenté en traits pointillés rouges.

Chapitre 2 : Outils analytiques

Il existe différentes collections de données MODIS regroupant des informations plus ou moins détaillées sur le contenu de l'atmosphère. La collection utilisée ici est la collection 6 présentant la dernière version des données MODIS (depuis janvier 2014). Parmi les principaux produits disponibles à partir des mesures MODIS, il est possible d'obtenir l'épaisseur optique de l'aérosol (AOD), le type d'aérosols (poussières désertiques, fumée, panache de sulfate, ...), la concentration massique en aérosols, le coefficient d'asymétrie et le coefficient d'angström relatifs à l'aérosol, mais également la fraction nuageuse, l'albédo terrestre, ... et ceci pour la totalité du globe.

La large couverture spatiale de l'instrument MODIS est un atout majeur pour cette technique de mesures. Cependant, certaines localisations particulières ne facilitent pas la mesure, comme au-dessus des surfaces de forte albédo (désert, glace) ou encore au-dessus d'un site de haute altitude (Remer et al., 2005). Ainsi différents algorithmes de restitution des produits MODIS sont utilisés selon le type de surface. Les travaux de Remer et al. (2005) et Sayer et al. (2013) ont montré des incertitudes sur l'épaisseur optique à partir des instruments MODIS de $\pm 0,03$ au-dessus des océans et $\pm 0,05$ au-dessus des continents.

Les données MODIS du satellite Terra sont utilisées dans ces travaux de thèse avec le niveau 2 de la collection 6 (dernière version depuis juin 2014) et une surface d'échantillonnage de 10 km. Le niveau 2 permet ainsi d'accéder aux données géophysiques mesurées soit : une grande partie des propriétés optiques des aérosols, le sommet des nuages, les propriétés optiques des nuages,...

2.3. Modèles

2.3.1. Rétrotrajectoires (Hysplit)

Hysplit (HYgrid single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) est un modèle lagrangien de dispersion atmosphérique (Draxler and Rolph, 2012) développé par le ARL (Air Resource Laboratory) à la NOAA (National Oceanic and Atmosphere Administration). Le modèle permet ainsi d'obtenir des trajectoires en prévision ou des rétrotrajectoires afin de déterminer respectivement la dispersion atmosphérique et la provenance des masses d'air. Le modèle de dynamique atmosphérique WRF (Weather Research and Forecasting) est utilisé dans le modèle Hysplit.

Dans ces travaux de thèse, les rétrotrajectoires établies et analysées par l'équipe de recherche du Laboratorio de Fisica de la Atmosfera (LFA – UMSA) de La Paz pour la station de montagne de Chacaltaya en Bolivie, ont été utilisées ainsi que les clusters définissant les différentes origines de masses d'air influençant les mesures de la station. Les différents clusters seront définis dans le **chapitre 4**.

2.3.2. SBDART

Afin d'estimer le forçage radiatif propre aux aerosols, le modèle de transfert radiatif Santa Barbara DISORT Atmospheric Radiative Transfert (SBDART, Ricchiazzi et al. 1998) a été utilisé dans ces travaux de thèse. Afin de caractériser l'impact radiatif des aérosols, il est nécessaire de définir certaines entrées du modèle comme l'épaisseur optique (AOD), l'albédo de simple diffusion (SSA) et le coefficient d'asymétrie (g) selon différentes longueurs d'onde. Le modèle a été largement et récemment utilisé notamment pour l'étude de l'impact des particules de carbone suie (Liu et al. 2015 ; Raju et al. 2016 ; Singh et al. 2016). Ainsi, le forçage radiatif direct de l'aérosol (ΔF en $W.m^{-2}$) est défini comme la différence entre l'énergie radiative nette (l'énergie reçue ($\downarrow$) moins l'énergie émise ($\uparrow$)) avec et sans la prise en compte des aérosols (F_a et F_0 respectivement) :

$$\Delta F = (F_{a\downarrow} - F_{a\uparrow}) - (F_{0\downarrow} - F_{0\uparrow}) \quad (2.19)$$

De plus, dans le but de caractériser au mieux l'impact radiatif de l'aérosol, il est nécessaire de paramétrer avec le plus de précision possible les conditions atmosphériques dans le modèle. Ainsi, selon la localisation et le but de l'étude les principaux paramètres à définir sont (hormis les propriétés optiques des aérosols) :

- La position de l'étude (latitude, longitude).
- La période de l'année (définissant la saison).
- Le type d'aérosol dans la couche de mélange
- Le profil de température, de pression et d'humidité relative atmosphérique
- Le type de surface (définissant l'albédo de surface)

Pandithurai et al. (2008) estiment qu'une erreur de 0,02 sur l'épaisseur optique et sur l'albédo de simple diffusion peut entraîner des incertitudes sur le forçage radiatif d'environ 0,5 et 1,6 $W.m^{-2}$ respectivement.

Chapitre 3 : Comparaison instrumentale : Impact de la structure de l'atmosphère et de l'hygroscopicité.

Cette partie de l'étude est consacrée à la comparaison de différentes techniques de mesures des propriétés optiques de l'aérosol largement utilisées en sciences de l'atmosphère, en fonction des conditions atmosphériques (structure et composition). En effet, la concentration en aérosol est généralement plus importante dans la basse couche de la troposphère (couche de mélange) que dans la partie haute de la troposphère (troposphère libre). Cependant, des couches d'aérosols comme des poussières désertiques, des sels marins ou encore des panaches volcaniques peuvent être transportées à haute altitude sur de longues distances. Ainsi, les techniques de mesure basées au sol ne sont pas toujours représentatives de la globalité de la colonne atmosphérique et certaines mesures par télédétection ne distinguent pas systématiquement les différentes couches d'aérosol.

De nombreuses études ont été réalisées dans le but de comparer les propriétés de l'aérosol restituées par différentes techniques de mesures mais peu d'entre elles portent sur une longue période de mesures ainsi qu'à partir d'un site de mesures in-situ de haute altitude. La concentration massique en aérosols a été étudiée par Boyouk et al. (2010) selon deux techniques de mesures par télédétection (par satellite et par photomètre solaire basé au sol) et des mesures in-situ au sol sur une période de 12 jours à Lille (France). Les résultats ont montré que les mesures in-situ du PM_{2.5} (concentration de particules avec un diamètre inférieur à 2,5 μm) sont 20% supérieures aux valeurs du PM_{2.5} retrouvées par le photomètre avec un coefficient de corrélation de 0,56 entre les deux techniques de mesures. Leurs travaux montrent également que la prise en compte de l'hétérogénéité de l'atmosphère peut améliorer la corrélation entre les mesures in-situ au sol et les mesures de télédétection. Ainsi, la correction des mesures photométriques par la hauteur de la couche de mélange diminue le biais entre les mesures de PM_{2.5} d'environ 10%. Schmid et al. (2003) ont étudié la distribution verticale du coefficient d'extinction aérosol pendant la campagne de mesures ACE-Asia au Japon. Les mesures ont alors été réalisées avec un photomètre solaire aéroporté ainsi que des instruments in-situ aéroportés. En tout, 26 profils de 0 à 4 km d'altitude au-dessus de 4 zones différentes séparées d'environ 250 km ont été étudiés. Les résultats rapportent des coefficients d'extinction in-situ 13% inférieurs à ceux mesurés par télédétection. Une étude similaire réalisée lors d'épisodes

Chapitre 3 : Comparaison instrumentale

de soulèvement de poussières désertiques au-dessus du Maroc a abouti aux mêmes conclusions avec des AOD in-situ (valeurs intégrées sur le profil aéroporté) 20% inférieures à l'AOD photométrique à une longueur d'onde de 500 nm et à partir de 3 différents vols (Müller et al., 2012). Cependant, les auteurs mettent en évidence des incertitudes importantes sur les propriétés des aérosols restituées par le photomètre en particulier lorsque l'atmosphère est hétérogène. Molero et al. (2012) ont étudié les distributions en taille d'aérosols à partir de mesures in-situ basées au sol et des mesures photométriques lors d'une campagne de mesures de 3 semaines en parallèle avec des mesures LIDAR (SPALI10 en Espagne en 2010). Les résultats montrent une forte divergence des concentrations volumiques retrouvées par les deux techniques de mesures mais des modes accumulation et grossier très proches. Les auteurs expliquent également cette divergence du fait de l'hétérogénéité de l'atmosphère lors de la campagne de mesures en accord avec les conclusions de (Müller et al., 2012)).

Un second facteur important à prendre en compte lors de cette comparaison des techniques de mesures est le caractère hygroscopique des particules. En effet, les mesures in-situ étant réalisées en conditions sèches et le photomètre analysant les particules de la colonne atmosphérique dans leurs conditions ambiantes, il est nécessaire de corriger les mesures in-situ par l'humidité. La méthode utilisée pour prendre en compte ce facteur est expliquée **section 2.1.3** à partir d'une paramétrisation du caractère hygroscopique de l'aérosol selon différentes saisons. Les travaux de Hervo et al., (2014) ont montré que l'hygroscopicité des aérosols mesurés au puy de Dôme a un impact important sur leurs propriétés optiques et radiatives en fonction de l'origine de la masse d'air et de la saison.

Ce chapitre exposera donc l'impact de la structure de l'atmosphère et de l'hygroscopicité des particules sur la comparaison des propriétés optiques (notamment le coefficient d'extinction) entre les mesures in-situ de la station PUY et les mesures du photomètre solaire de la station CZ. La colocalisation des deux stations (moins de 12 km de distance) permet alors de comparer les paramètres restitués par les deux techniques de mesures sur une base de données d'une période d'un an. A notre connaissance, cette étude est la première prenant en compte une aussi longue période de mesures avec des mesures in-situ d'un site de montagne à proximité d'une station de télédétection. Une seconde partie du chapitre s'intéressera particulièrement à la restitution de la distribution en taille des particules établie par les deux techniques de mesures. La majeure partie des résultats exposés dans ce chapitre ont été publiés dans l'article Chauvigne et al. (2016).

3.1. Méthode d'analyse

3.1.1. Distribution en taille d'aérosol

Dans le but de comparer les distributions en taille établies par mesures in-situ (SMPS et OPC – GRIMM, **section 2.1.1**) et par un photomètre (CIMEL 318, **section 2.2.1**), la définition des modes entre les deux techniques de mesures doit être cohérente. La distribution en taille mesurée par le SMPS peut être représentée par la somme de 3 modes log-normaux, dans l'ordre des gammes de taille : le mode Nucleation, le mode Aitken et le mode Accumulation (**section 1.2.2**). Le mode grossier de la distribution en taille de l'aérosol est quant à lui mesuré à partir du GRIMM. Cependant, l'inversion photométrique ne donnant lieu qu'à deux modes pour décrire la distribution en taille complète de l'aérosol (un mode submicronique ou mode fin, et un mode supermicronique ou mode grossier), il est nécessaire de regrouper les 3 modes du mode fin mesurés par le SMPS en un seul mode (en rouge **Figure 3.1**). Dans l'étude, les deux modes (fin et grossier) sont analysés séparément afin d'augmenter le nombre de points de comparaison.

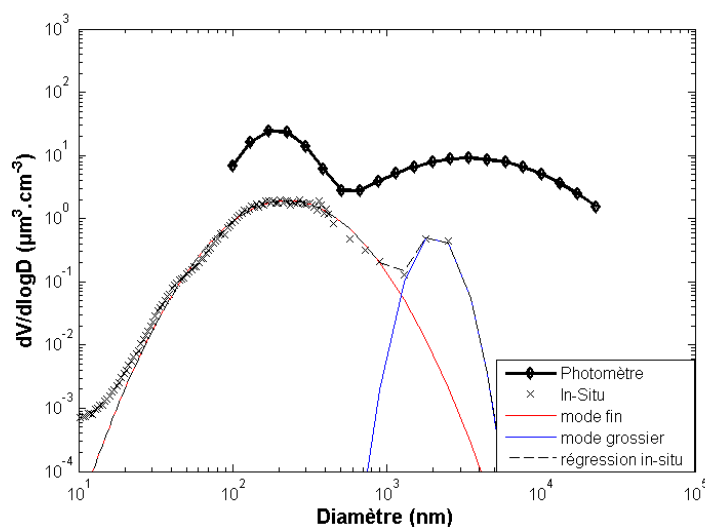


Figure 3.1: Distribution en taille volumique provenant des mesures in-situ (croix noires) et du photomètre (ligne noire en gras) du 7 Février 2011 à 11h03 UTC. Les régressions log-normales in-situ du SMPS (en rouge) et de l'OPC (en bleue) sont regroupées et la ligne en pointillés noirs représente la somme des deux régressions.

La distribution en taille mesurée par le photomètre est convertie de $\mu\text{m}^3.\text{cm}^{-2}$ à $\mu\text{m}^3.\text{cm}^{-3}$ en divisant les concentrations par la hauteur de la couche d'aérosol. Dans un premier temps, tous les aérosols participant à la mesure photométrique sont considérés être confinés dans la couche de mélange. La conversion se fait donc en divisant les concentrations photométriques par la hauteur de la couche de mélange donnée par les mesures LIDAR (**section 2.2.3.5.2**).

Chapitre 3 : Comparaison instrumentale

3.1.2. Hygroscopicité de l'aérosol

Comme vu dans la **section 1.5**, la distribution en taille mesurée par le SMPS et le GRIMM doit être corrigée de l'hygroscopicité des particules. Dans cette étude, le facteur de croissance hygroscopique (HGF) issu de la paramétrisation d'Holmgren et al. (2014) est alors appliqué selon chaque saison aux diamètres in-situ jusqu'à 420 nm. Pour les diamètres supérieurs, le HGF à 420 nm établi par la paramétrisation est appliqué montrant alors un compromis sur la nature hygroscopique des aérosols mesurés du mode grossier (Rose et al., 2013). Deux régressions log-normales sont ensuite appliquées à la distribution en taille in-situ humide afin d'étudier les modes fin et grossier en condition ambiante.

Les propriétés optiques des aérosols sont également mesurées en conditions sèche. A partir de la distribution en taille humide des aérosols ainsi que leur indice de réfraction, l'utilisation d'un code de Mie permet d'établir les propriétés optiques humides des aérosols. Cependant, des hypothèses doivent être faites sur la sphéricité et la nature des aérosols. Une étude de sensibilité sur les propriétés optiques et microphysiques est alors effectuée un fin de chapitre.

3.1.3. Structure de l'atmosphère

Afin de prendre en compte la structure de l'atmosphère et de filtrer le jeu de données des cas d'atmosphère hétérogène, l'algorithme STRAT (Structure of the Atmosphere, Morille et al., 2007) est appliqué aux profils LIDAR (**section 2.2.3.5.3**).

La **Figure 3.2** montre un exemple de contrôle d'homogénéité de l'atmosphère en utilisant les séries temporelles de la dépolarisation LIDAR et de la classification des différentes couches atmosphériques STRAT pour les 21 et 22 Février 2016. Ainsi, pour la journée du 21 Février, ces données montrent la présence de nuage (cyan) de haute altitude type cirrus (environ 10 km d'altitude) présentant de fortes dépolarisations (entre 0,1 et 0,4) et une troposphère (de 0 à 10 km d'altitude) bien homogène. La journée du 22 Février présente quant à elle un épisode important d'aérosols en troposphère avec des dépolarisations d'environ 0.1 et étendue de 1 à 4 km d'altitude. La classification STRAT permet pour cette journée de dissocier le panache d'aérosols de la couche nuageuse apparaissant à 5 km d'altitude vers 9h et s'abaissant au court de la journée pour se mêler au panache. En combinaison avec les profils de dépolarisation, les cas d'atmosphère homogène et hétérogène sans nuage sont alors détectés et représentés sur la **Figure 3.2** par les zones vertes et rouge respectivement.

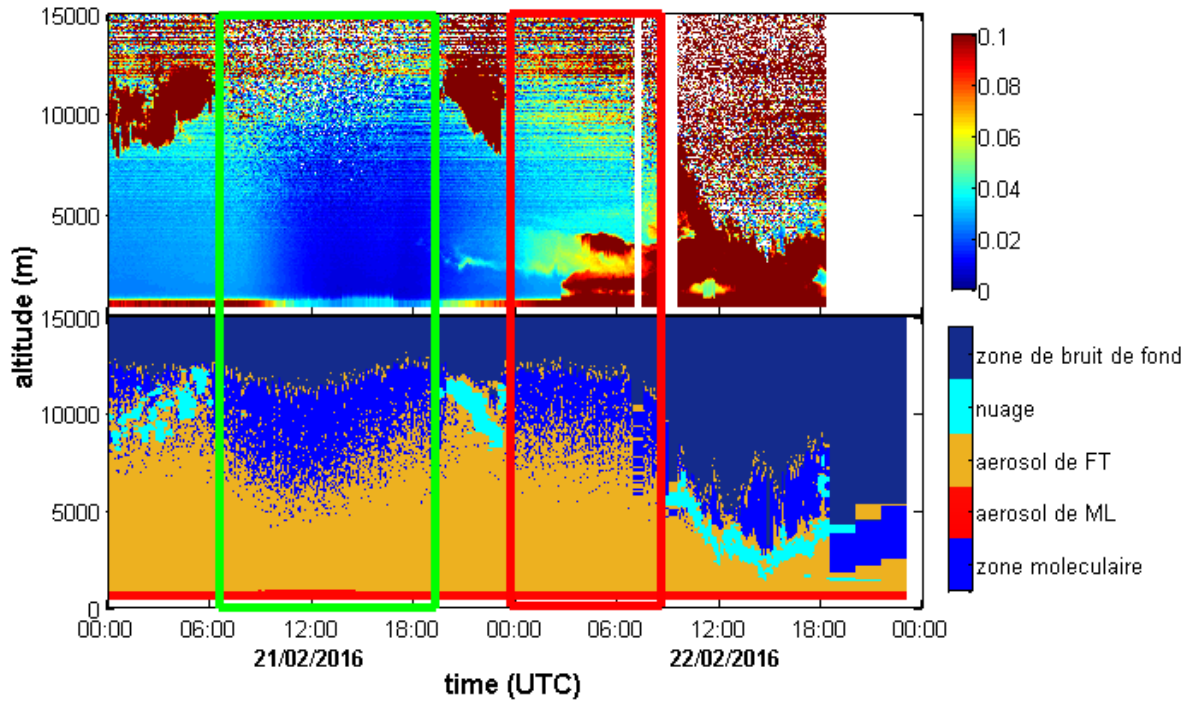


Figure 3.2 : Séries temporelles de la dépolarisation LIDAR (en haut) et de la classification des couches atmosphériques par STRAT (en bas) pour le 21 et 22 Février 2016. La zone verte représente un cas d'atmosphère homogène et la zone rouge un cas d'atmosphère hétérogène sans nuage.

De plus, parce que le photomètre mesure les propriétés intégrées des aérosols sur la colonne atmosphérique, et que la station in-situ PUY est parfois en couche de mélange et parfois en troposphère libre, il est nécessaire de séparer les contributions optiques de chacune des couches d'aérosols dans le signal photométrique. A partir des mesures de hauteur de couche de mélange et des profils de rétrodiffusion LIDAR (β) utilisant un rapport LIDAR constant (**section 2.2.3.3.**), la fraction d'aérosol de la couche de mélange par rapport aux aérosols de toute la colonne atmosphérique est calculée. Cette contribution de la couche de mélange (R_{ML}) est calculée selon l'**équation 3.1** et permet de séparer au sein des mesures photométriques les propriétés extensives des aérosols propres à la couche de mélange ou à la troposphère libre selon les **équations 3.2** et **3.3** :

$$R_{ML} = \frac{\beta_{ML}}{\beta_{colonne}} \quad (3.1)$$

$$AOD_{ML} = AOD_{TOTAL} * R_{ML} \quad (3.2)$$

$$AOD_{FT} = AOD_{TOTAL} * (1 - R_{ML}) \quad (3.3)$$

Où β_{ML} est le coefficient de rétrodiffusion LIDAR intégré du sol jusqu'à la hauteur de la couche de mélange, $\beta_{colonne}$ le coefficient de rétrodiffusion LIDAR intégré du sol jusqu'à l'altitude de 5 km, au-delà de laquelle le signal aérosol devient négligeable (Nicolas et al., en préparation).

Chapitre 3 : Comparaison instrumentale

Cette contribution est ensuite appliquée à l'épaisseur optique totale mesurée par le photomètre (AOD_{TOTAL}) pour obtenir l' AOD propre à la couche de mélange (AOD_{ML} , équation 3.2) et propre à la troposphère libre (AOD_{FT} , équation 3.3).

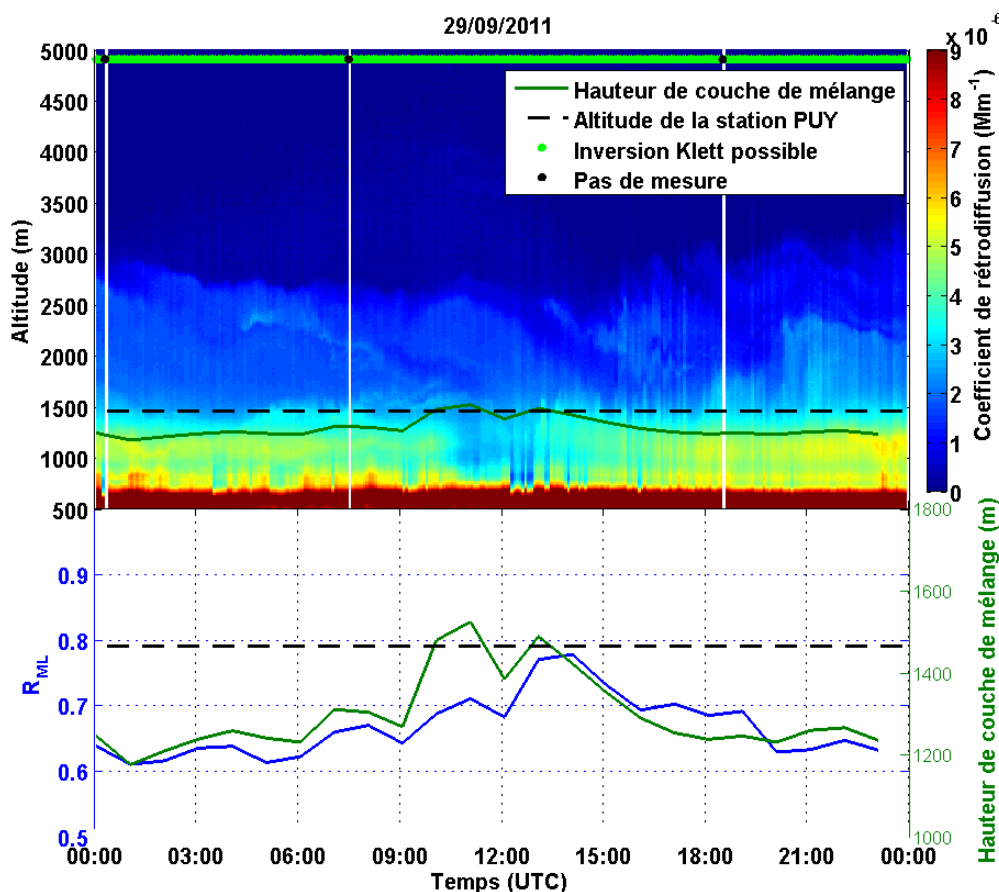


Figure 3.3: Haut: Série temporelle (UTC) du coefficient de rétrodiffusion LIDAR du 29 Septembre 2011 à 5 min de résolution temporelle et 15 m de résolution verticale. Les points verts en haut de la figure indiquent la possibilité d'utiliser l'inversion Klett sur les profils LIDAR et les points noirs l'absence de mesure. La ligne noire en pointillé représente l'altitude de la station PUY. Bas : Hauteur de couche de mélange (ligne verte) et contribution de la couche de mélange (R_{ML} , ligne bleue).

La **Figure 3.3** montre un exemple d'une série temporelle du coefficient de rétrodiffusion LIDAR (en haut), de la hauteur de couche de mélange issue du calcul de la WCT (ligne verte) et de la contribution des aérosols de couche de mélange (R_{ML} , ligne bleue) du 29 Septembre 2011. Les points verts et noirs au-dessus de la série temporelle LIDAR correspondent respectivement aux profils dont l'inversion LIDAR (**section 2.2.3.3**) est possible et l'absence de mesure LIDAR. La ligne noire en pointillée sur les deux graphiques représente l'altitude de la station in-situ du puy de Dôme. Pour cette journée, la hauteur de la couche de mélange varie de 1200 m au-dessus du niveau de la mer pendant la nuit à 1500 m en journée correspondant à une faible convection (automne). La contribution de la couche de mélange montre une variation diurne avec un maximum au milieu de la journée (vers 14h UTC), provenant alors de l'augmentation des sources d'aérosols en journée qui n'est pas totalement compensée par dilution lorsque la couche de mélange se développe. Pour ce cas précis, la contribution de la

couche de mélange sur la colonne atmosphérique varie entre 60% pendant la nuit à 78% en milieu d'après-midi.

3.2. Base de données

Les mesures en continu présentent l'avantage de pouvoir analyser de façon statistiquement représentative une large variabilité de cas et permettent d'analyser les variations journalières et saisonnières, différentes conditions météorologiques et différentes origines de masses d'air. Dans cette étude, nous nous sommes consacrés à l'analyse de l'année de mesures 2011 présentant une large disponibilité des mesures sur les deux stations étudiées. La **Figure 3.4** rend compte de la disponibilité des mesures sur l'année 2011 pour chaque instrument utile à cette étude (LIDAR, photomètre, SMPS et OPC – GRIMM, MAAP, Néphélomètre et les instruments consacrés aux mesures des paramètres météorologiques). Un seuil d'humidité relative (RH) de 95% est pris en compte comme filtre nuage en complément de la classification de l'algorithme STRAT appliquée sur les profils LIDAR. Malgré la grande quantité d'instruments nécessaire à l'étude et le besoin de conditions particulières (ciel clair), 357 points à 1h de résolution temporelle sont comparés pour le coefficient d'extinction dont 116 points présentant des cas d'atmosphère homogène. Pour la distribution en taille d'aérosols, 412 points à 1h de résolution temporelle sont disponibles pour la comparaison dont 155 points (en noir sur la **Figure 3.4**) présentant des cas d'atmosphère homogène. Sur ces 155 points, 92 sont disponibles pour l'analyse du mode fin de la distribution en taille et 80 points pour le mode grossier.

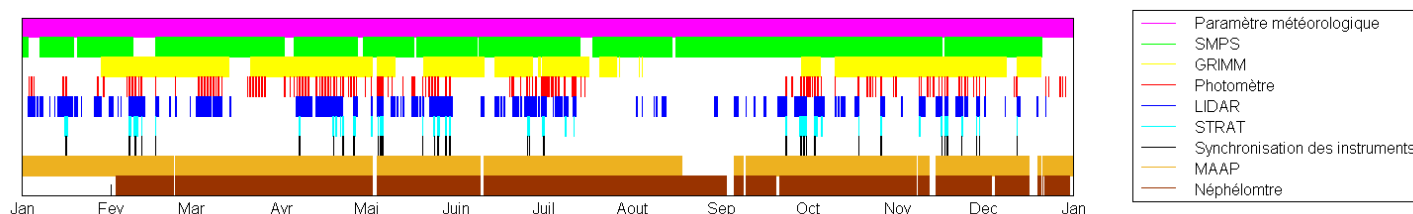


Figure 3.4 : Série temporelle des disponibilités instrumentales et application du filtre STRAT (cyan) sur les profils LIDAR (bleu) sur l'année 2011. Chaque couleur représente un instrument ou un ensemble d'instruments et les zones noires (synchronisation des instruments) représentent les points sélectionnés pour cette étude.

Aucune mesure de l'OPC – GRIMM n'est disponible en Janvier ainsi qu'entre août et septembre 2011, et un manque important de données du photomètre est observé entre août et septembre principalement dû à des problèmes techniques de l'instrument. Malgré ce manque de données, toutes les saisons peuvent être analysées dans cette étude avec un nombre de point significatif (43 points l'été, 80 points l'automne, 86 points l'hiver et 148 points le printemps).

3.3. Epaisseur optique et extinction

3.3.1. Atmosphère sans nuage

Une première étude a porté sur la comparaison des mesures directes de l'extinction in-situ et de l'épaisseur optique d'extinction (AOD) mesurée par télédétection. Pour cette étude, les nuages sont filtrés du jeu de données (niveau L2 des mesures photométriques) ce qui représente 357 points de comparaison.

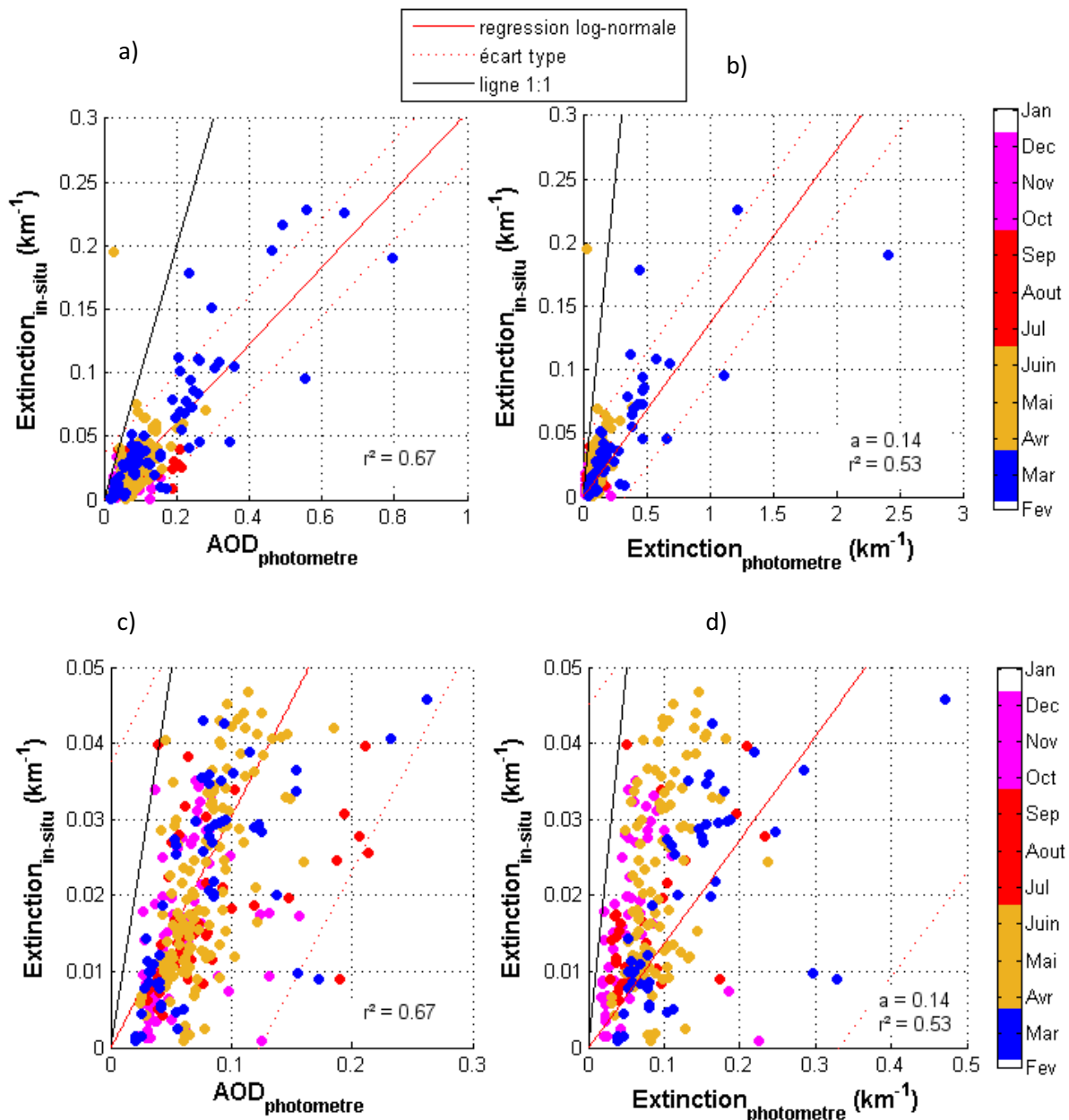


Figure 3.5 : Coefficient d'extinction in-situ à 675 nm calculé à partir des mesures du néphélomètre et du MAAP en fonction de a) l'AOD du photomètre à 675 nm et c) un zoom sur les faibles extinctions, b) le coefficient d'extinction établie par le photomètre pour chaque saison et d) un zoom sur les faibles extinctions. Les lignes rouges pleines et en pointillées représentent respectivement les régressions linéaires de la comparaison et les zones de prédiction établies par l'écart type et la ligne noire représente la ligne 1:1.

La **Figure 3.5 a)** montre l'extinction aérosol à 675 nm mesurée par les instruments in-situ (néphélomètre et MAAP) de la station PUY en condition sèche en fonction de l'AOD à 675 nm mesurée par le photomètre installé sur la station CZ selon les différentes saisons. Un zoom sur les faibles extinctions est appliqué **Figure 3.5 c)** et permet ainsi une meilleure visualisation selon chaque saison. Seuls quelques points pendant l'été 2011 sont pris en compte en raison de problèmes instrumentaux (43 points l'été en rouge, 80 points l'automne en violet, 86 points l'hiver en bleu et 148 points le printemps en orange). Bien que l'AOD soit une mesure intégrée sur la colonne atmosphérique et que la mesure in-situ ne soit spécifique qu'à une seule altitude, les deux mesures sont fortement corrélées ($r^2=0.67$). Ceci montre que l'altitude intermédiaire du puy de Dôme (1465 m) est globalement représentative de la colonne atmosphérique dans sa totalité et ceci pour chaque saison.

Afin de comparer quantitativement les mêmes propriétés optiques selon les deux méthodes de mesure, il est nécessaire de faire l'hypothèse, dans un premier temps, que le signal mesuré par le photomètre est principalement dû aux aérosols de la couche de mélange. Ainsi, il est possible d'établir une extinction moyenne issue de l'AOD photométrique propre à la couche de mélange suivant l'expression suivante :

$$Ext_{photomètre} = \frac{AOD_{photomètre}}{\text{Hauteur de couche de mélange}} \quad (3.4)$$

Avec la hauteur de couche de mélange établie à partir des mesures LIDAR (**section 2.2.3.5.2**)

La **Figure 3.5 b)** montre ainsi le coefficient d'extinction in-situ en fonction du coefficient d'extinction issu des mesures photométriques et de l'équation (3.4). Les deux paramètres restent fortement corrélés ($r^2=0.53$). Cependant, une plus basse corrélation qu'avec l'AOD totale peut être expliquée par le fait que la station du puy de Dôme ne se situe pas tout le temps en couche de mélange mais peut également être en troposphère libre comme montré sur la **Figure 3.3**, et que l'intégralité de l'AOD photométrique n'est pas entièrement due aux aérosols de la couche de mélange.

Les résultats montrent que l'extinction in-situ ne représente en moyenne que 14% de la mesure photométrique (12% en hiver, 17% en été, 22% en automne et 24% au printemps). Ceci est principalement dû au fait que les mesures in-situ sont parfois caractéristiques des conditions de troposphère libre. En effet, les cas en hiver où la hauteur de couche de mélange est la plus basse, présentent la plus large différence entre les deux techniques de mesures. De plus, le biais entre les deux techniques de mesures peut être expliqué par de fortes concentrations en aérosol pouvant être transportées à haute altitude. Les travaux de Bourcier et al. (2011) mettent en évidence les mesures d'épisodes de poussières désertiques provenant de masses d'air du Sud de la station ou de sel marins provenant majoritairement des masses d'air d'ouest. Selon les conditions ambiantes, ces aérosols peuvent être transportés au-dessus de l'altitude du puy de Dôme et ainsi être captés par les mesures du photomètre mais être invisibles pour les instruments in-situ de la station PUY.

Chapitre 3 : Comparaison instrumentale

3.3.2. Impact des multicouches d'aérosols

Dans le but d'établir la contribution des aérosols de chaque couche homogène de l'atmosphère et en particulier la contribution des aérosols de troposphère libre, il est nécessaire de filtrer le jeu de données des événements aérosol conduisant à une structure de l'atmosphère en multicouches. L'algorithme STRAT (section 2.2.3.5.3) a été utilisé dans ce but en se basant sur les séries temporelles des profils LIDAR mesurés depuis la station CZ.

Après avoir filtré des cas de multicouche d'aérosols en utilisant l'algorithme STRAT, seulement 116 cas (33%) ont été retenus sur le jeu de données initial. La diminution de la corrélation entre les coefficients d'extinction des mesures in-situ et de télédétection peut être expliquée par la baisse significative du nombre de points de comparaison (**Figure 3.6**).

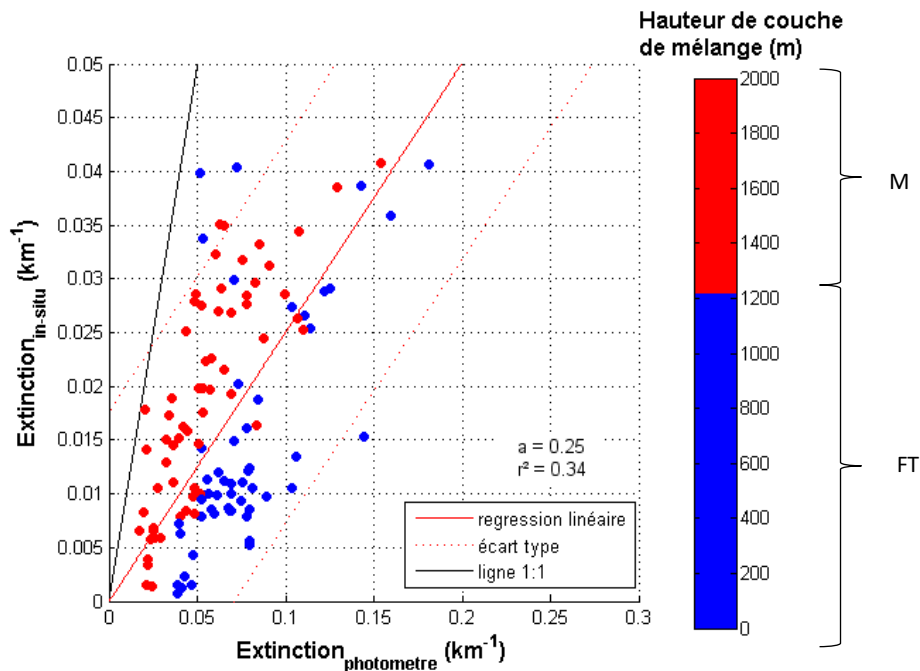


Figure 3.6: Coefficient d'extinction in-situ en fonction du coefficient d'extinction photométrique à 675 nm pour les cas d'atmosphère homogène colorés par la hauteur de la couche de mélange (ML: couche de mélange, FT: troposphère libre).

Dans ces conditions atmosphériques d'homogénéité, les coefficients d'extinction in-situ mesurés au puy de Dôme sont compris entre $8 \cdot 10^{-4}$ et $0,04 \text{ km}^{-1}$ alors que les coefficients d'extinction retrouvés par télédétection sont compris entre $6 \cdot 10^{-3}$ et $0,2 \text{ km}^{-1}$. Les valeurs photométriques supérieures à $0,2 \text{ km}^{-1}$ observées dans la **Figure 3.5 b)** et **c)** mais absentes dans la **Figure 3.6** sont principalement dues aux cas d'atmosphère hétérogène, ce qui correspond probablement à des événements de poussières désertiques ou d'aérosols marins transportés à des altitudes supérieures à celle du puy de Dôme. Ces points correspondant aux cas de multicouches d'aérosols restant bien corrélés (**Figure 3.5**), il est possible que les instruments

in-situ installés au puy de Dôme capturent également les événements aérosol transportés à haute altitude mais à des concentrations diluées.

Après avoir filtré des cas multicouches, les mesures d'extinction in-situ sont plus proches des mesures photométriques (25% du coefficient d'extinction photométrique contre 14% avant l'application du filtre). Ceci prouve alors l'importance de la prise en compte de la structure de l'atmosphère dans l'analyse des mesures de chacune des méthodes instrumentales.

Les instruments in-situ mesurent dans certains cas dans une couche d'aérosols moins concentrée (la troposphère libre) expliquant ainsi des extinctions plus faibles mesurées au puy de Dôme par rapport aux mesures par télédétection sur le campus des Cézeaux. Ceci est mis en évidence lorsque les cas de mesures en couche de mélange ou en troposphère libre sont séparés (marqueurs rouges et bleus respectivement dans la **Figure 3.6**). Un seuil à 1200 m au-dessus du niveau de la mer est pris en compte pour séparer les cas de couche de mélange et de troposphère libre prenant ainsi en considération l'impact de la convection forcée due à l'effet topographique du site (Venzac et al., 2009). Les résultats montrent clairement des corrélations différentes entre les cas de couche de mélange (en rouge lorsque la hauteur de couche de mélange est supérieure à 1200 m) et les cas de troposphère libre (en bleu lorsque la hauteur de couche de mélange est inférieure à 1200 m). Dans les conditions de troposphère libre, les mesures in-situ sont principalement inférieures à la droite de corrélation alors qu'en conditions de couche de mélange, les mesures in-situ sont principalement supérieures (33% des mesures photométriques en couche de mélange et 20% en troposphère libre). La prise en compte de la structure de l'atmosphère et ainsi les conditions de mesures de chaque technique est alors un facteur important dans l'étude des propriétés optiques des aérosols.

3.3.3. Impact de la contribution de la couche de mélange et de la troposphère libre à la colonne

Les biais entre les mesures in-situ et les mesures photométriques étant différents selon la couche de l'atmosphère dans laquelle les mesures in situ sont réalisées, il est nécessaire de séparer la comparaison des propriétés optiques selon que les mesures sont en couche de mélange ou en troposphère libre dans la suite de l'étude. Les mesures photométriques sont alors corrigées de la contribution de chacune des couches étudiées. Lorsque la station de mesure in-situ du puy de Dôme est située dans la couche de mélange, la fraction de l'AOD photométrique comprise en couche de mélange est établie en utilisant le rapport de rétrodiffusion (**équation 3.2**) calculé à l'aide des profils LIDAR. En utilisant la même méthode, lorsque la station de mesures in-situ est située en troposphère libre, la fraction correspondante de l'AOD photométrique est calculée suivant l'**équation 3.3**.

Les résultats sont montrés **Figure 3.7**. Une analyse globale regroupant tous les points (cas de couche de mélange et cas de troposphère libre regroupés) montre une nette augmentation de l'accord entre les deux techniques de mesures avec des coefficients d'extinction photométriques 49% inférieurs aux coefficients d'extinction in-situ. Cette différence entre les deux techniques

Chapitre 3 : Comparaison instrumentale

de mesures est plus importante que celles trouvées dans la littérature entre les mesures photométriques et les mesures in-situ aéroportées. Les travaux de Schmid et al. (2003) et Müller et al. (2012) ont établi des mesures in-situ intégrées sur la colonne atmosphérique 15% inférieures aux mesures directes du photomètre. Les mesures in-situ de cette thèse ne sont pas issues de mesures aéroportées de profil de l'atmosphère mais de mesures réalisées en un seul point fixe de l'atmosphère. Ceci pourrait alors expliquer cette différence avec les précédentes études réalisées. Il est donc important d'analyser ces résultats en séparant couche de mélange et troposphère libre.

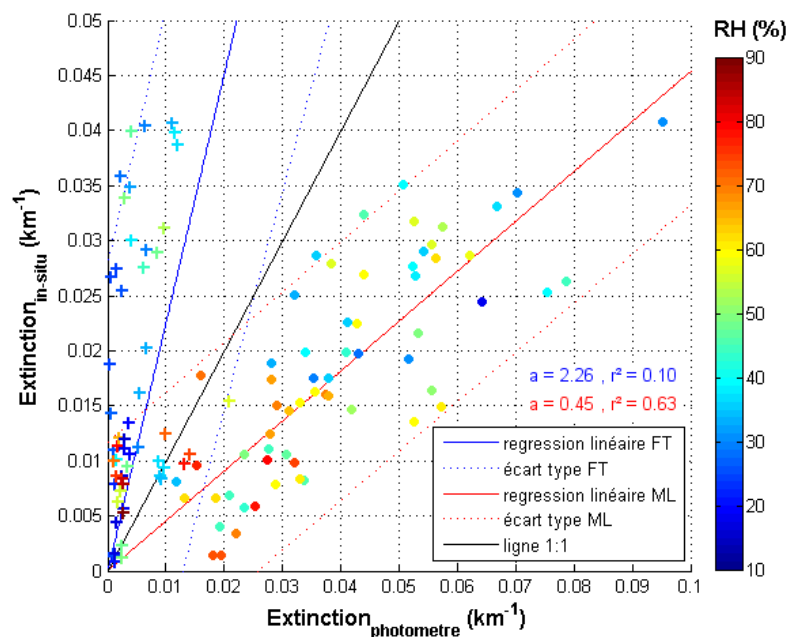


Figure 3.7: Coefficient d'extinction in-situ en fonction du coefficient d'extinction photométrique en prenant en compte la contribution de chaque couche sur la colonne atmosphérique. Les points sont colorés en fonction de l'humidité relative moyenne entre les deux sites. La régression linéaire rouge ainsi que les ronds pleins correspondent aux cas de couche de mélange (ML) et la régression bleue ainsi que les croix correspondent aux cas de troposphère libre (FT).

En détails, les 116 points de comparaison ont été séparés entre les cas pour lesquels la station du puy de Dôme mesure en couche de mélange (63 points, cercles pleins et régression linéaire en rouge) et troposphère libre (53 points, croix et régression linéaire en bleue) à partir du calcul de la hauteur de couche de mélange selon les profils LIDAR (**section 2.2.3.5.2**). Pour les cas de couche de mélange, les mesures du photomètre sont plus proches des mesures in-situ que dans la précédente section (les mesures in-situ représentent 45% des mesures photométriques contre 33% sans prendre en compte la contribution de chaque couche). Pour les cas de troposphère libre, les mesures in-situ sont plus de deux fois supérieures aux mesures du photomètre ($a=2,26$). Ces résultats sont principalement expliqués par la présence d'un gradient de concentration d'aérosol dans les deux couches étudiées. En effet, l'instrumentation in-situ

mesure parfois dans la partie haute de la couche de mélange, où les concentrations en aérosols ne sont pas aussi élevées qu'à la surface (proche des sources), parfois dans la limite basse de la troposphère libre, plus influencée par les aérosols de la couche de mélange que la partie haute de la troposphère libre. De façon générale, les mesures in-situ de la station du puy de Dôme surestiment et sous-estiment ainsi les propriétés optiques moyennes des aérosols en couche de mélange et en troposphère libre respectivement.

La comparaison des extinctions sur la **Figure 3.7** est colorée par l'humidité relative (RH) moyenne entre les deux stations. Ce paramètre est souvent utilisé comme traceur de la hauteur de la couche de mélange (Seidel et al., 2010). Le but est ainsi de déterminer si la prise en compte de l'humidité dans la mesure du coefficient d'extinction peut expliquer la différence entre les deux techniques de mesures en condition de couche de mélange vu que les mesures in-situ du puy de Dôme sont réalisées en conditions sèches ($RH < 40\%$). On observe que même si les conditions de troposphère libre (croix sur la **Figure 3.7**) sont plus sèches que les conditions de couche de mélange, les humidités relatives élevées (en rouge) ne correspondent pas exactement aux points dispersés de la comparaison. De cette première analyse, le contenu en eau des aérosols ne semble pas être le principal facteur influençant le biais entre les extinctions in-situ et mesurées par le photomètre. Cependant, cet effet sera davantage mis en évidence à partir de l'analyse des distributions en taille de l'aérosol établies par les deux techniques.

3.3.4. Décroissance de l'extinction avec l'altitude

L'application d'un profil linéaire de forme $\sigma_{\text{ext}}(z) = a.z + b$, avec $\sigma_{\text{ext}}(z)$ le coefficient d'extinction à une altitude donnée, a la pente de la droite, et b le coefficient d'extinction au niveau du sol, définissant la répartition des aérosols dans l'atmosphère a également été testée dans ces travaux de thèse.

En effet, l'hypothèse de couches d'aérosols homogènes peut également expliquer la différence significative entre mesures in-situ et mesures photométriques. Ainsi, la décroissance linéaire du coefficient d'extinction avec l'altitude a été établie à partir des deux conditions suivantes :

- L'extinction est nulle au dessus de 5 km d'altitude (Nicolas et al., en préparation). Pour $z = 5 \text{ km}$, $\sigma_{\text{ext}} = 0$.
- L'intégrale de l'extinction entre le sol et 5 km d'altitude correspond à l'épaisseur optique d'extinction donnée par le photomètre.

L'extinction photométrique est calculée à partir de l'équation linéaire ainsi établie et ses valeurs à 1465 m d'altitude sont comparées aux mesures in-situ sur la **Figure 3.8**.

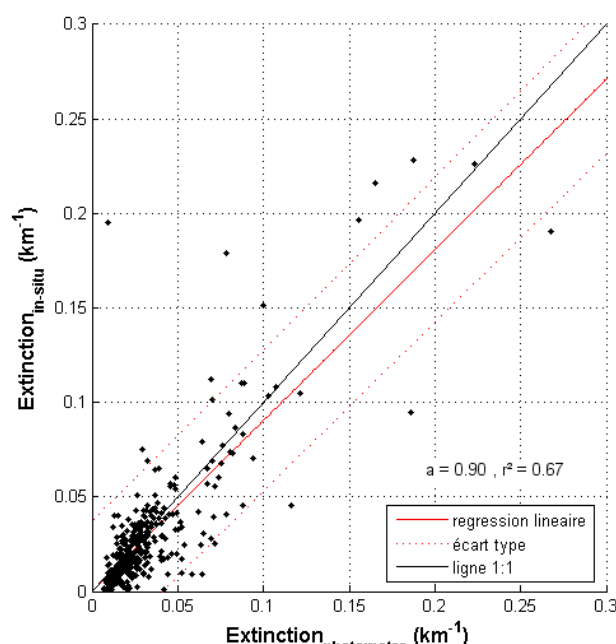


Figure 3.8 : Coefficient d'extinction in-situ sec en fonction du coefficient d'extinction photométrique en prenant en compte une décroissance linéaire du coefficient d'extinction avec l'altitude.

Les résultats **Figure 3.8** montrent une meilleure corrélation entre les deux techniques de mesures que les précédents résultats. Cette définition de la distribution verticale des aérosols dans la troposphère semble ainsi être la plus appropriée. Cependant, des profils d'extinction constants avec l'altitude restent observés et utilisés comme hypothèse simple dans la littérature (Sheridan et al., 2012; Kanitz et al., 2013; Wagner et al., 2015). Le fait que l'extinction mesurée in-situ soit plus faible que l'extinction photométrique peut s'expliquer par la non-prise en compte de l'humidité sur les propriétés optiques des mesures in-situ. Cet effet est étudié **section 3.4**.

3.3.5. Impact de la structure de l'atmosphère

Les distributions en taille volumiques in-situ (SMPS et OPC – GRIMM) sont comparées à celles établies par les mesures du photomètre pour les modes fin (mode Aitken et mode Accumulation) et grossier (**section 1.2.2**). La comparaison de la totalité des distributions en taille in-situ et photométriques sans prendre en compte la structure de l'atmosphère est analysée **Figure 3.9**. Les résultats montrent que les diamètres in-situ du mode fin sont significativement supérieurs aux diamètres mesurés par le photomètre (environ 72%) pour chaque saison alors que les concentrations in-situ sont majoritairement inférieures à celles mesurées par le photomètre (environ 23% inférieures) en accord avec l'analyse du coefficient d'extinction. Comme montré pour la comparaison des coefficients d'extinction, les paramètres de la distribution en taille peuvent également être influencés par les conditions de la couche atmosphérique dans laquelle la station in-situ mesure. Les mesures in-situ sont parfois représentatives de la troposphère libre, alors que l'inversion photométrique prend en compte la totalité de la colonne atmosphérique.

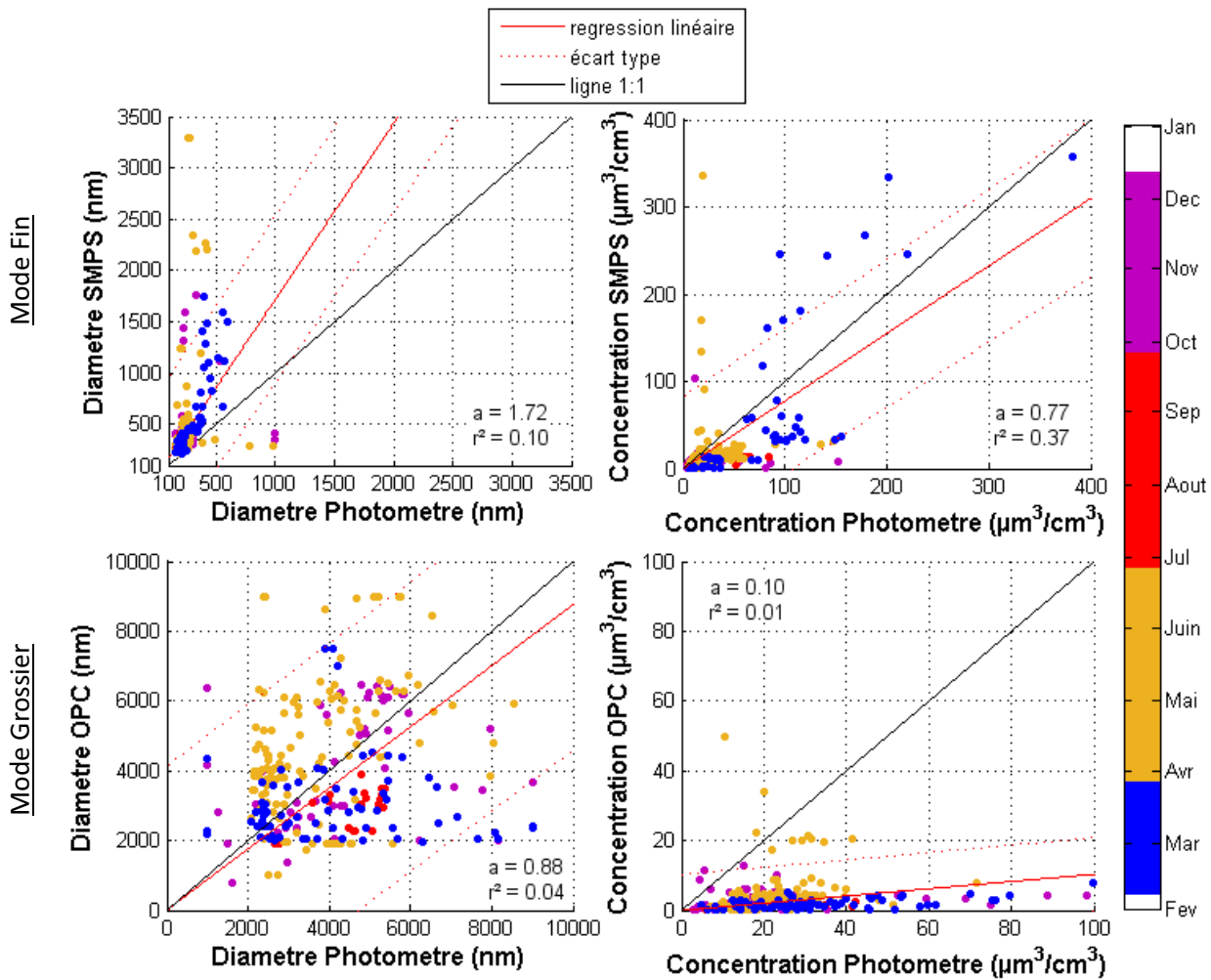


Figure 3.9: Paramètres de la distribution en taille d'aérosols in-situ en fonction des paramètres de la distribution en taille d'aérosols photométrique pour le mode fin (en haut) et le mode grossier (en bas) en fonction des saisons. Les figures de gauche correspondent à l'analyse des diamètres des particules et les figures de droite, à l'analyse des concentrations volumiques.

La **Figure 3.10** montre les résultats de la comparaison des paramètres des distributions en taille in-situ et photométriques pour les cas d'atmosphère homogène uniquement. Les mesures in-situ sont alors séparées selon leurs conditions de mesures (couche de mélange, ML en rouge, ou troposphère libre, FT en bleu). Pour la concentration, la fraction de la mesure photométrique intégrée présente dans chacune des couches est prise en compte selon l'**équation 3.3**. 73 points sont ainsi disponibles pour la comparaison des paramètres du mode fin et 66 points pour le mode grossier. Comme analysé avec l'extinction, la prise en compte des conditions de mesures in-situ ainsi que de la contribution de chaque couche dans les mesures photométriques sont des facteurs influençant fortement la comparaison des deux techniques de mesures.

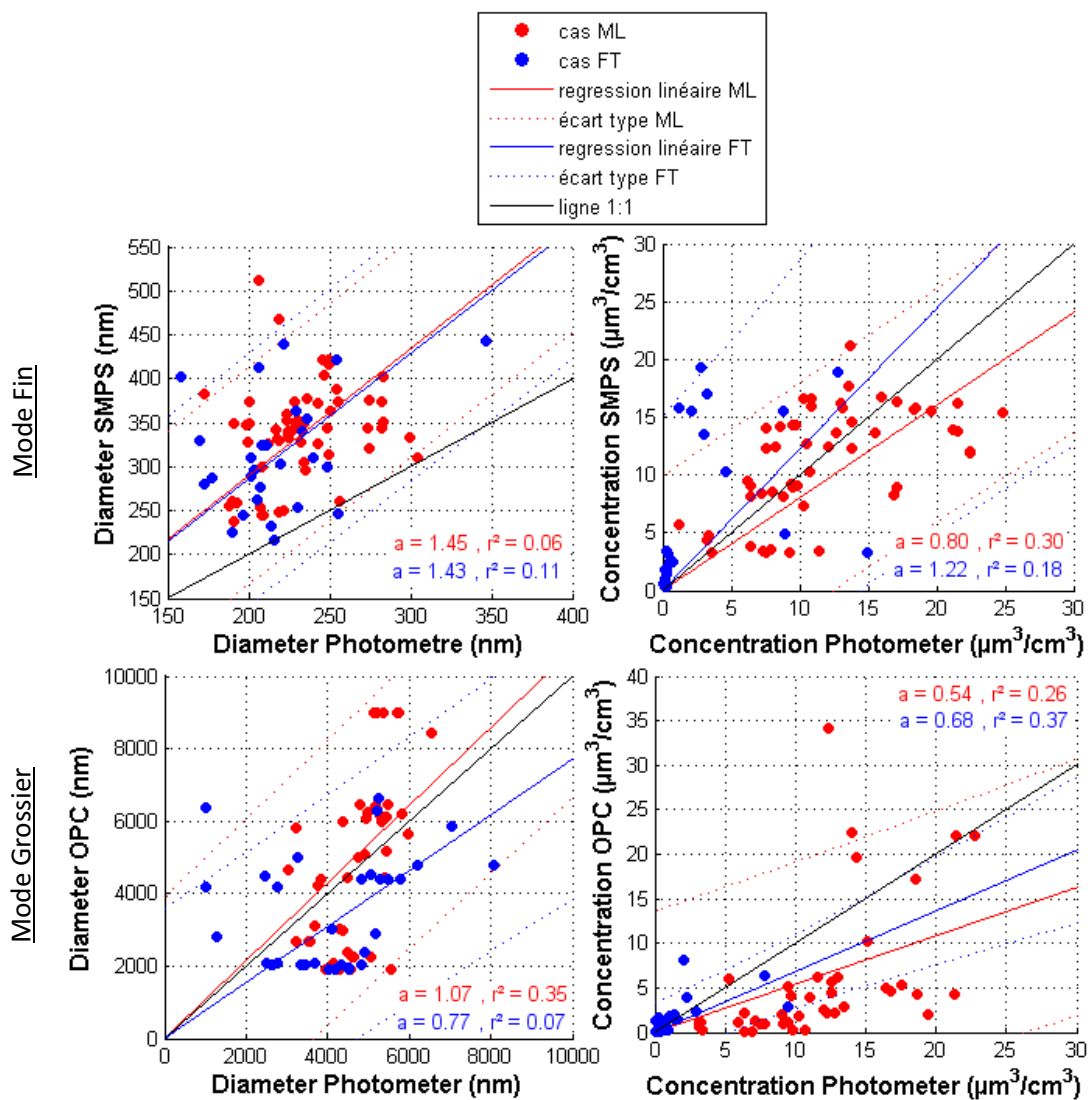


Figure 3.10: Paramètres de la distribution en taille d'aérosol in-situ en fonction des paramètres de la distribution en taille d'aérosol photométrique pour le mode fin (en haut) et le mode grossier (en bas) pour les cas homogènes, avec l'application des contributions de chaque couche d'aérosol, et en fonction de la couche d'aérosol (ML en rouge ou FT en bleu).

Le rapport moyen entre les diamètres mesurés par l'instrumentation in-situ et les inversions du photomètre sont très différents selon les conditions atmosphériques (entre 0,77 et 1,45). En prenant en compte à la fois les conditions de couche de mélange et de troposphère libre, les diamètres in-situ du mode fin sont 44% supérieurs aux diamètres calculés à partir des mesures du photomètre. Les précédentes études du mode submicronique de la distribution en taille in-situ ont montré que ce mode est caractérisé par deux modes, Aitken (pour des diamètres entre 10 et 100 nm) et Accumulation (entre 100 et 1000 nm), regroupés en un seul et unique mode dans cette étude lors de la régression du mode fin de la distribution en taille. Or la diffusion des aérosols est plus sensible au mode Accumulation de la distribution en taille d'aérosols qu'au mode Aitken (**Figure 1.1**), l'inversion du photomètre devrait donc être biaisée vers le mode Accumulation, ce qui devrait mener à une surestimation des diamètres retrouvés à partir du

photomètre comparé aux mesures in situ. Cependant, les diamètres du mode fin mesurés en in-situ sont déjà supérieurs aux diamètres du mode fin retrouvés par le photomètre, le biais entre les deux techniques de mesures doit donc être encore plus important que celui observé dans cette étude. Il est possible que le biais sur les diamètres soit le résultat d'une inhomogénéité des propriétés des aérosols dans la couche de mélange, avec des aérosols plus gros vers la surface et plus fins vers le haut de la couche de mélange. Un gradient similaire dans la troposphère libre est également possible. Concernant le mode grossier, les diamètres in-situ sont relativement en accord avec les diamètres photométriques (pente de la régression linéaire de 1,07 en couche de mélange et de 0,77 en troposphère libre). Cependant, les diamètres du mode grossiers sont mieux corrélés et en meilleur accord lorsque la station du puy de Dôme est en couche de mélange que lorsqu'elle se situe en troposphère libre.

Pour les cas de couche de mélange, les concentrations volumiques in-situ sont de 20% et 46% inférieures à celles du photomètre pour le mode fin et le mode grossier respectivement (par rapport à 65% pour le coefficient d'extinction). La comparaison des concentrations du mode fin montre un écart similaire à celui trouvé pour les extinctions dans l'étude de (Schmid et al., 2003) rapportant des extinctions in-situ aéroportées (entre 0 et 4 km au-dessus du niveau de la mer) 13% inférieures à celles calculées à partir d'un photomètre. Cependant, le coefficient de corrélation en condition de couche de mélange est significativement inférieur ($r^2 \leq 30$) pour les concentrations volumiques que pour les coefficients d'extinction de la section précédente ($r^2 = 0,63$), ce qui indiquerait que ce relativement bon accord serait le résultat d'une compensation d'écarts.

Pour les cas de troposphère libre, les coefficients d'extinction in-situ étaient 2,26 fois supérieures aux extinctions retrouvées par le photomètre, alors que les concentrations volumiques du mode fin et du mode grossier des mesures in-situ sont 22% supérieures et 32% inférieures aux mesures du photomètre respectivement. Contrairement aux cas de couche de mélange, la corrélation observée en condition de troposphère libre entre les concentrations volumiques augmente par rapport à l'étude du coefficient d'extinction ($r^2 = 0,18$ et $0,37$ pour les modes fin et grossier respectivement par rapport à $0,10$ pour les coefficients d'extinction).

Ces résultats indiquent que la procédure d'inversion des données photométriques pour restituer les paramètres de la distribution en taille de l'aérosol est relativement fiable lorsque la hauteur de couche de mélange est basse et que les mesures du photomètre représentent principalement la partie haute de la troposphère, mais moins fiable lorsque la couche de mélange est d'avantage développée et que les mesures in situ sont effectuées en couche de mélange. Le fait que les pentes de corrélation entre mesures in-situ et photométriques des concentrations volumiques en aérosols soient plus basses que pour l'étude du coefficient d'extinction pour les cas de troposphère libre indique une légère sur-estimation des concentrations volumiques (pour les deux modes étudiés) par l'inversion photométrique lorsque la hauteur de couche de mélange est basse. Au contraire, l'inversion photométrique sous-estime légèrement les concentrations

Chapitre 3 : Comparaison instrumentale

volumiques (pour les deux modes) lorsque la hauteur de couche de mélange est plus développée.

3.3.6. Impact de l'hygroscopicité des aérosols

Dans cette section, l'impact de l'hygroscopicité des aérosols sur la comparaison des mesures in-situ et photométriques est étudié. La **Figure 3.11** montre les paramètres des distributions en taille de l'aérosol après la prise en compte du facteur de croissance hygroscopique (HGF, **section 1.5**) sur les distributions en taille in-situ pour des humidités relatives ambiantes et pour les deux couches de l'atmosphère étudiées. L'application du HGF sur les distributions en taille in-situ influence significativement les paramètres du mode fin et de nettes croissances des diamètres et des concentrations volumiques sont observées pour les fortes humidités relatives ($RH > 50\%$). Les biais entre les diamètres in-situ et photométriques sont environ 40% supérieurs à ceux étudiés en cas sec pour les cas de couche de mélange et de troposphère libre. Pour les concentrations volumiques du mode fin, le biais entre mesures in-situ et mesures photométriques est plus de 70% supérieur à celui du cas sec en troposphère libre et les concentrations volumiques in-situ deviennent supérieures (28%) à celles du photomètre en couche de mélange. Pour le mode grossier, on observe qu'en appliquant un facteur hygroscopique aux distributions en taille in-situ, les diamètres in-situ deviennent 20% supérieurs à ceux du photomètre pour les cas de couche de mélange, et 14% inférieurs pour les cas de troposphère libre. Ces résultats ne sont que peu différents de ceux observés en condition sèche et les mêmes observations peuvent être faites selon l'étude des concentrations volumiques du mode grossier. La prise en compte de l'hygroscopicité de l'aérosol n'a donc que peu d'impact sur les propriétés du mode grossier de la distribution.

Cependant, les aérosols peuvent être plus hygroscopiques que ce qui est prédit par la paramétrisation s'ils sont de type sel de mer, ou moins hygroscopiques que prédit s'ils sont de type poussière désertique. De plus, l'effet de l'humidité est d'autant plus incertain pour le mode grossier du fait de l'application d'un même facteur hygroscopique pour tous les diamètres supérieurs à 420 nm (**section 2.1.3**). Néanmoins, sur la station du puy de Dôme, la plupart des particules du mode grossier proviennent des poussières désertiques du Sahara qui sont particulièrement peu hygroscopiques et donc peu influencées par l'humidité ambiante.

Une étude de sensibilité du facteur de croissance hygroscopique est donc nécessaire à l'évaluation des conclusions de cette étude.

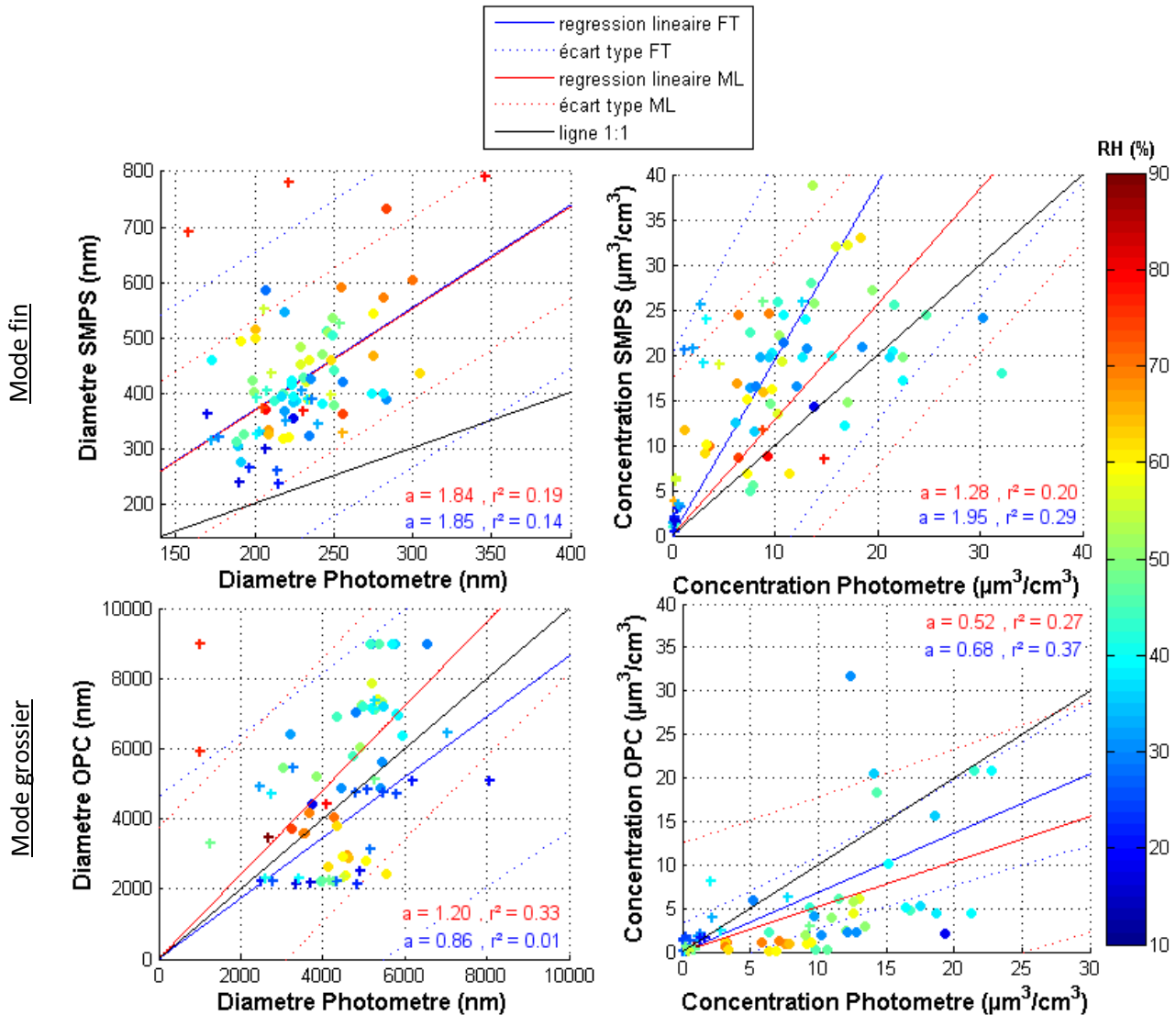


Figure 3.11: Paramètres de la distribution en taille d'aérosol in-situ en fonction des paramètres de la distribution en taille d'aérosol photométrique pour le mode fin (en haut) et le mode grossier (en bas) en fonction l'humidité relative et après avoir appliqué les facteurs hygroscopiques (HGF) aux distributions en tailles in-situ.

3.4. Etude de sensibilité des propriétés optiques et microphysiques à partir d'un code de Mie

En se basant sur les principes de diffusion de Mie, il est également possible de déterminer les propriétés optiques de l'aérosol en fonction de leurs distributions en taille et de leurs indices de réfraction. Ainsi, en appliquant des facteurs de croissances hygroscopiques (HGF) appropriés à la distribution en taille sèche de l'aérosol, les propriétés optiques à humidité ambiante peuvent être établies. Dans cette partie de l'étude, les impacts du facteur hygroscopique HGF et de l'indice de réfraction m de l'aérosol sur les propriétés optiques (coefficient d'extinction) et microphysiques (concentration volumique et diamètres des particules pour les modes

Chapitre 3 : Comparaison instrumentale

accumulation et grossier) sont analysés à partir de la distribution moyenne caractéristique des masses d'air océaniques mesurées à la station PUY (Hervo, 2012).

3.4.1. Etude de sensibilité sur l'hygroscopicité

Une première analyse de sensibilité a été menée sur l'effet de l'humidité sur les propriétés optiques de l'aérosol. L'hygroscopicité de l'aérosol supermicronique étant difficilement mesurable avec les techniques classiques (HTDMA), l'étude se porte en particulier sur l'impact de la croissance hygroscopique de l'aérosol supermicronique. Ainsi, trois conditions sont analysées :

- Condition 1 : distribution en taille sèche, $m = 1,54 + 0,01i$.
- Condition 2 : distribution en taille humide avec $HGF = 1,4580$ pour toute la distribution, et $m = 1,54 + 0,01i$.
- Condition 3 : distribution en taille humide avec $HGF = 1,4580$ pour la partie submicronique, $HGF = 1,7330$ pour la partie supermicronique, et $m = 1,54 + 0,01i$.

Les masses d'air océaniques ont été choisies pour ces tests de sensibilité, car elles contiennent la plus grande fraction d'aérosols supermicroniques, et sont fortement hygroscopiques. L'indice de réfraction sec est pris à $1,54 + 0,01i$ caractérisant une moyenne pour différentes stations in-situ européennes d'après l'étude de Zieger et al. (2013). Pour les facteurs hygroscopiques HGF, deux techniques de mesures ont été utilisées pour caractériser les propriétés hygroscopiques des aérosols de différentes origines de masses d'air mesurées à la station PUY : à partir des mesures du HTDMA et à partir de mesures chimiques par classe de tailles sur impacteur en cascade (section 2.1.3). Ainsi, les travaux d'Holmgren et al. (2014) ont établi un HGF de 1,4580 ($\kappa=0,26$, $RH=90\%$ et $D_p=110$ nm) à partir des mesures du HTDMA pour les masses d'air océaniques et des particules de 110 nm de diamètre. Pour les plus grosses particules, un facteur de 1,7330 ($\kappa=0,47$, $RH=90\%$ et $D_p=2$ μm) est établi à partir des mesures sur impacteur.

	TOTAL			Submicronique			Supermicronique		
Conditions	1	2	3	1	2	3	1	2	3
Ext (Mm^{-1})	10,91	20,52	20,57	10,16	19,80	-	0,66	0,67	0,75
Concentration ($\mu m^3.cm^{-3}$)	-	-	-	2,05	2,98	-	0,61	0,89	1,05
Dp (nm)	-	-	-	312	455	-	1885	2748	3078

Tableau 3.1 : Propriétés optiques (coefficient d'extinction) et microphysiques (concentration volumique et diamètre de particules) pour chacune des 3 conditions analysées mettant en jeu différents coefficients hygroscopiques et pour chacun des modes de la distribution en taille.

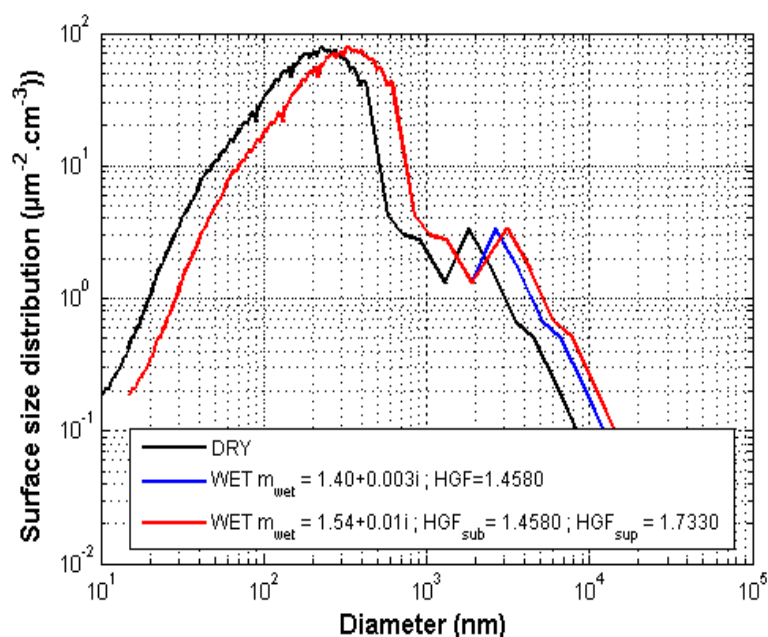


Figure 3.12 : Distribution en taille surfacique moyenne pour le cas des masses d'air océaniques. Cas sec en noir, cas humide avec $HGF = 1,4580$ en bleu et cas humide avec $HGF = 1,4580$ pour les particules submicroniques et $HGF = 1,7330$ pour les particules supermicroniques en rouge.

La **Figure 3.12** montre l'impact de l'hygroscopicité des aérosols sur les deux modes de la distribution en taille surfacique, et le **Tableau 3.1** les paramètres microphysiques des distributions pour chacune des conditions et les résultats du calcul de Mie à partir des distributions en nombre de particules.

Comme vu précédemment dans le chapitre, la prise en compte de l'hygroscopicité des aérosols a un fort impact sur les diamètres des particules et leurs concentrations volumiques. Par conséquent, la prise en compte de l'hygroscopicité des aérosols impacte également significativement le calcul des propriétés optiques des aérosols. Pour un coefficient hygroscopique de 1,4580 appliqué sur tous les diamètres de la distribution (condition 2), le coefficient d'extinction global croît d'un facteur 2 par rapport au cas sec (condition 1). En analysant séparément les modes submicronique et supermicronique, l'étude montre l'importance du mode submicronique dans la caractérisation des propriétés optiques des aérosols : 96% du coefficient d'extinction totale provient de la partie submicronique de la distribution. Ceci est en accord avec les résultats de l'étude du coefficient de diffusion en fonction de la taille des particules d'aérosols détaillée dans la **section 2.1.1**. Par conséquent la prise en compte d'un HGF plus réaliste du mode supermicronique n'a que peu d'impact sur les propriétés optiques calculées ; en effet, la séparation des caractéristiques hygroscopiques des deux modes (condition 3) ne révèle pas de réelle influence sur les propriétés optiques ($0,05 \text{ Mm}^{-1}$ de différence entre les conditions 2 et 3). Cependant, l'hygroscopicité du mode supermicronique reste un facteur important quant à l'analyse des propriétés microphysiques des aérosols.

Chapitre 3 : Comparaison instrumentale

3.4.2. Etude de sensibilité sur l'indice de réfraction

En utilisant la même méthode, l'impact de l'indice de réfraction sur les propriétés optiques de l'aérosol a été analysé. Le **Tableau 3.2** montre les résultats du calcul du coefficient d'extinction selon 4 conditions différentes :

- Condition 4 : distribution en taille humide ($HGF = 1,4580$) ; $m_{dry} = 1,54 + 0,01i$
- Condition 5 : distribution en taille humide ($HGF = 1,4580$) ; $m_{wet} = 1,40 + 0,003i$
- Condition 6 : distribution en taille humide ($HGF = 1,7330$) ; $m_{dry} = 1,54 + 0,01i$
- Condition 7 : distribution en taille humide ($HGF = 1,7330$) ; $m_{wet} = 1,37 + 0,002i$

Afin d'obtenir les indices de réfraction humide propre à chaque facteur hygroscopique, la méthode détaillée dans les travaux de Hasan and Dzuby (1983) est utilisée (**équation 3.5**).

$$m_{wet} = \frac{D_p^3}{(D_p \cdot HGF)^3} \cdot m_{dry} + \left(1 - \frac{D_p^3}{(D_p \cdot HGF)^3}\right) \cdot m_{H_2O} \quad (3.5)$$

Avec m_{wet} l'indice de réfraction humide

D_p le diamètre des particules

HGF le facteur de croissance hygroscopique

m_{dry} l'indice de réfraction sec

m_{H_2O} l'indice de réfraction de l'eau pure ($1,33 + 0i$)

Pour un même coefficient hygroscopique, soit la même distribution en taille, les résultats montrent une modification significative des propriétés optiques de l'aérosol en fonction de l'indice de réfraction utilisé pour le calcul de Mie. Pour un facteur hygroscopique de 1,4580, l'utilisation de l'indice de réfraction humide ($m_{wet} = 1,40 + 0,003i$ au lieu de $m_{dry} = 1,54 + 0,01i$) correspond à une décroissance du coefficient d'extinction d'environ 45% (de $20,52 \text{ Mm}^{-1}$ à $13,22 \text{ Mm}^{-1}$) et pour un facteur hygroscopique de 1,7330 ($m_{wet} = 1,37 + 0,002i$), une décroissance du coefficient d'extinction d'environ 40% (de $25,12 \text{ Mm}^{-1}$ à $15,62 \text{ Mm}^{-1}$). Les mêmes conclusions peuvent être établies à partir de l'étude du mode submicronique. Pour le mode supermicronique, l'impact de l'indice de réfraction reste très faible.

	TOTAL				Submicronique				Supermicronique			
	4	5	6	7	4	5	6	7	4	5	6	7
Ext (Mm ⁻¹)	20,52	13,22	25,12	15,62	19,80	12,49	24,47	14,96	0,67	0,67	0,59	0,60

Tableau 3.2 : Propriétés optiques pour chacune des 4 conditions analysées mettant en jeu différents indices de réfraction et pour chaque mode de la distribution en taille.

Dû à l'augmentation de la taille des particules, la prise en compte de la croissance hygroscopique des aérosols a pour conséquence une augmentation de leurs propriétés optiques. Cependant, l'utilisation d'un indice de réfraction humide, plus faible que l'indice de réfraction sec, entraîne une diminution des propriétés optiques de l'aérosol. Malgré des effets opposés et pouvant se compenser sous certaines conditions, la prise en compte du caractère hygroscopique des aérosols semble avoir un effet conséquent sur les propriétés optiques des aérosols et est donc essentielle dans l'étude des aérosols.

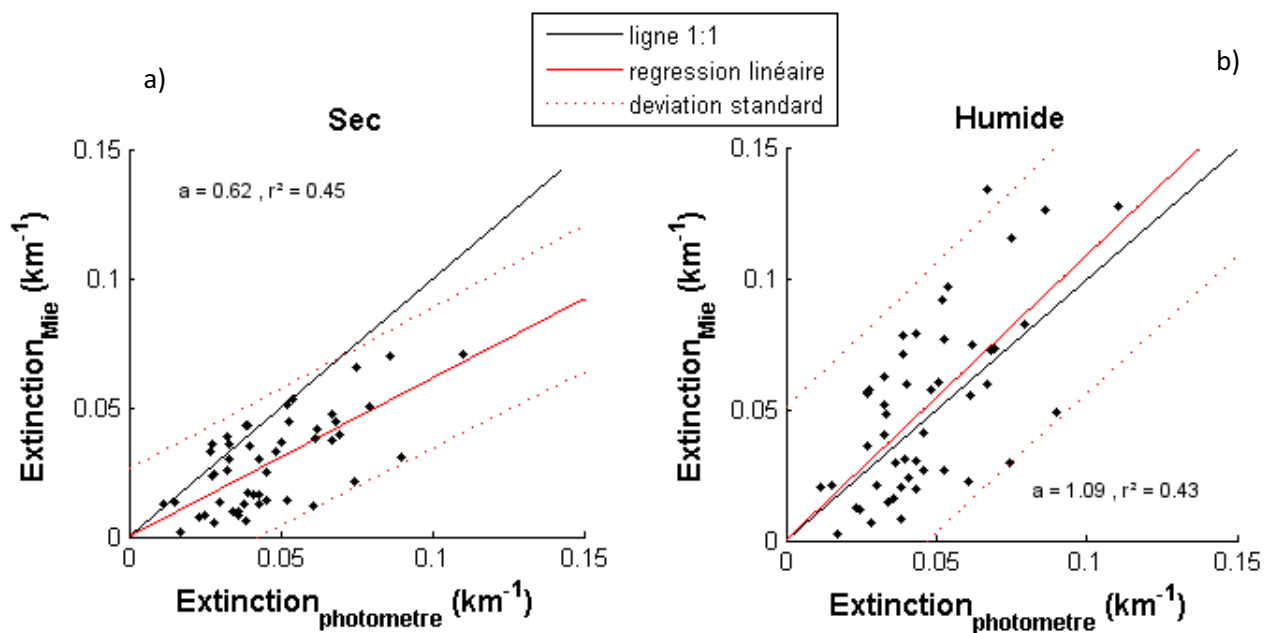


Figure 3.13 : Comparaison des coefficients d'extinction établie à partir du photomètre et du calcul de Mie selon a) des distributions en taille sèches, et b) des distributions en taille humides.

Le coefficient d'extinction ainsi calculé à partir de la distribution en taille mesurée au puy de Dôme est comparé à l'extinction établie à partir du photomètre sur l'année 2011. La **Figure 3.13** montre les résultats de la comparaison entre les coefficients d'extinction établis par les mesures photométriques (**equation 3.4**) et le calcul de Mie pour des distributions en taille sèches et humides. L'indice de réfraction sec est pris à $1,54 + 0,01i$. Pour le cas humide, le facteur de croissance hygroscopique HGF est pris à humidité ambiante et l'indice de réfraction

Chapitre 3 : Comparaison instrumentale

est calculé selon l'équation 3.5. Seulement les cas d'atmosphère homogène sont pris en compte.

De même que pour les mesures des propriétés optiques in-situ, les coefficients d'extinction calculés à partir des distributions en taille in-situ sont inférieures aux extinctions établies par les mesures photométriques dans le cas sec. En prenant en compte l'humidité, les deux techniques de mesures du coefficient d'extinction sont davantage en accord (**Figure 3.13 b**).

Conclusions du chapitre:

Ce chapitre s'est particulièrement intéressé à l'étude de la mesure des propriétés optiques et microphysiques de l'aérosol suivant différentes techniques de mesures largement utilisées en science de l'atmosphère. Une année complète de mesures regroupant la mesure en simultanée de 6 instruments différents a été utilisée dans cette partie de l'étude. La comparaison des mesures du coefficient d'extinction entre les instruments in-situ de la station PUY et du photomètre de la station CZ a montré que les mesures réalisées à la station PUY sont représentatives de la colonne atmosphérique. Pour chaque saison, les deux techniques de mesures sont bien corrélées. Cependant, un biais important (86%) entre les mesures in-situ et les mesures photométriques est observé lorsque la totalité du signal photométrique est considéré comme provenir de la couche de mélange atmosphérique et que la structure de l'atmosphère n'est pas prise en compte. Ce biais est d'autant plus important lorsque la couche de mélange est basse et que les mesures d'altitude in-situ sont majoritairement représentatives de la troposphère libre.

Le biais est diminué lorsque les cas de l'étude sont filtrés des conditions d'atmosphère hétérogène et que la structure verticale de l'atmosphère est prise en compte (séparation des cas de couche de mélange et de troposphère libre). En combinant l'application de l'algorithme STRAT sur les profils LIDAR et les mesures in-situ d'humidité relative, l'année de mesures est filtrée des cas nuageux et des événements de panache d'aérosol transportés à haute altitude et dissociés de la couche de mélange. Le filtre nuage réduit significativement le nombre de points de comparaison de l'étude (33% du nombre de point initial pour l'extinction et 30% des points pour la distribution en taille) et diminue également les facteurs de corrélation. Cependant, en ne prenant en compte que les conditions d'atmosphère homogène et en corrigeant les extinctions photométriques par les contributions des différentes couches d'aérosols, le biais entre les deux techniques de mesures est réduit considérablement (de 86% à 55% pour les cas de couche de mélange).

Le biais entre les deux techniques de mesures est également nettement diminué (10% de différence entre les deux techniques) lorsque la structure de la troposphère est définie comme une décroissance linéaire de la quantité d'aérosols avec l'altitude. Les résultats sont très probants et cette définition de la structure de l'atmosphère figure être un choix prioritaire lors de l'analyse des données in-situ et photométriques. Cependant, les résultats présentés dans cette

partie à ce niveau, ne prennent pas en compte l'effet de l'humidité sur les mesures in-situ et pourraient alors montrer un biais important entre les deux techniques de mesures.

Cette première étape a permis d'étudier plus en avant les paramètres microphysiques de l'aérosol restitués par les mesures photométriques. En conditions sèches, la comparaison de la distribution en taille des aérosols montre des diamètres du mode fin in-situ 44% plus importants que ceux issus des inversions photométriques, et des concentrations volumiques 20% inférieures et supérieures pour les cas de couche de mélange et de troposphère libre respectivement. En parallèle avec le biais de l'étude du coefficient d'extinction, les résultats permettent de rendre compte de la surestimation de la concentration volumique établie par le photomètre en condition de troposphère libre à la fois pour le mode fin et le mode grossier.

L'étude s'est également intéressée à l'impact de l'humidité sur la comparaison des paramètres des distributions en taille. L'application d'un facteur hygroscopique sur les distributions en taille in-situ montre un fort impact de l'humidité sur le mode fin qui augmente alors le biais entre les diamètres mesurés par les deux techniques de mesures.

Un test de sensibilité a en effet montré que les propriétés des aérosols sont particulièrement influencées par le coefficient de croissance hygroscopique appliqué sur la distribution en taille ainsi que l'indice de réfraction. L'analyse portée sur le calcul du coefficient d'extinction à partir des distributions en taille in-situ et selon la théorie de Mie rend également compte de l'importance de la prise en compte de l'humidité ambiante dans la comparaison des techniques de mesures des propriétés optiques de l'aérosol surtout pour le mode submicronique.

Ces premiers résultats de thèse sont primordiaux pour (1) asseoir la représentativité du site du puy de Dôme par rapport à la colonne atmosphérique, la couche de mélange et la troposphère libre et (2) analyser la cohérence de l'ensemble de la base de données pour permettre de nous attacher, à présent, à l'analyse de l'importance optique des aérosols de haute altitude.

Chapitre 4 : Transport des aérosols à haute altitude : étude des propriétés optiques des aérosols depuis l'observatoire de Chacaltaya (5240 m), Bolivie.

Dans la couche de mélange, les aérosols sont soumis à de nombreux processus qui diminuent leur durée de vie comme la sédimentation, la coagulation ou encore la pluie. Dans la troposphère libre, ces processus sont nettement moins conséquents et la durée de vie des aérosols dans l'atmosphère ainsi que leur répartition spatiale augmente considérablement. Il est donc important de caractériser le transport des aérosols en haute couche et de connaître leurs propriétés optiques et radiatives ainsi que leur évolution au cours du temps. Les mesures in-situ et de télédétection décrites et étudiées dans les chapitres précédents sont utilisées dans ce but.

L'atmosphère de l'Amérique du Sud est influencée par de multiples sources d'aérosol. Selon la direction du vent et la localisation de la station de mesures, les aérosols présents dans l'atmosphère peuvent provenir de sources naturelles comme les poussières minérales provenant de l'Ouest de la Cordillère des Andes, de la Patagonie ou du désert du Sahara, des sels marins provenant des océans Pacifique et Atlantique, des cendres volcaniques provenant des nombreux volcans actifs de la Cordillère des Andes, mais également des émissions anthropiques importantes provenant des transports, des industries et des feux de biomasse principalement d'Amazonie. Ceci fait de cette région du globe, encore peu documentée, un lieu privilégié pour l'étude des aérosols.

Les conditions atmosphériques du nord de l'Amérique du Sud étant principalement influencées par un climat tropical, l'année est définie selon deux saisons: une saison sèche de mai à octobre, et une saison humide de novembre à avril. La saison humide est caractérisée par une atmosphère peu chargée en aérosols par rapport à la saison sèche, ce qui est principalement expliqué par le lessivage des aérosols par les précipitations pendant cette période.

En fin de période sèche, généralement en août et en septembre, d'importants feux de biomasse (Biomass Burning, BB) déclenchés par la sécheresse et la déforestation de la forêt Amazonienne influencent de façon significative la composition de l'atmosphère et ainsi ses propriétés

Chapitre 4 : Transport des aérosols à haute altitude

optiques et radiatives. 80% de la déforestation mondiale est localisée en zone tropicale dont un tiers en Amazonie. En l'espace de 10 ans, le Brésil a perdu environ 7,4% de sa superficie en forêt et 5,2% pour la Bolivie (4,8% pour la France) (selon www.globalforestwatch.org). Les panaches alors émis par ces feux sont fortement concentrés en particules absorbantes comme le carbone suie (Black Carbon, BC) et les composés organiques (Organic Compounds, OC), et engendrent ainsi d'importants effets sur les propriétés optiques de l'atmosphère.

De nombreuses études s'intéressent aux conséquences importantes des épisodes de feux de biomasse sur les propriétés optiques de l'atmosphère. Holben et al. (1996) ont étudié ces propriétés optiques de l'aérosol à partir de mesures photométriques sur différents sites au Brésil, plus ou moins proches des sources (Jamari, Santarem, Tucuruí, Porto National, Brasília, Cuiaba, Alta Foresta et Ji Parana) (**Figure 4.1**). Ainsi, des panaches ont été analysés avec des épaisseurs optiques (AOD) supérieures à 1,0 (contre un maximum de 0,27 à 440 nm avant l'influence des panaches) et pouvant résider dans l'atmosphère sur une durée de 2 mois. Pour l'albédo de simple diffusion (SSA), Reid et al. (2005) ont également établi à partir de mesures photométriques de différents sites AERONET de zones tropicales des valeurs de 0,85 à 550 nm proche de la source augmentant avec le temps après émission jusqu'à 0,89. La dépendance spectrale du SSA donne également des informations importantes sur la nature des aérosols (**section 1.2.3.2.3**). Le **Tableau 4.1** référence les études sur la dépendance spectrale du SSA pour différentes régions et différents types de masse d'air. Ainsi, les cas de poussières désertiques (ou dust) sont principalement caractérisés par des pentes positives alors que les cas de pollution urbaine ou de feux de biomasse sont caractérisés par des pentes négatives liées au caractère absorbant des particules ainsi émises.

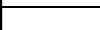
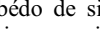
		SSA slope	
Dubovik et al., 2002	Goddard Space Flight Center, Maryland		-3,01E-05
	Creteil/Paris		-3,69E-05
	Maldives		-1,03E-04
	Mexico City		-1,05E-04
	Boreal Forest		-5,95E-05
	Amazonian Forest		-6,83E-05
	South American Cerrado		-8,67E-05
	African Savanna		-1,65E-04
	Lanal/Hawaii		-1,84E-05
	Cape Verde		9,74E-05
	Solar Village/Saudi Arabia		9,05E-05
	Bahrain/Persian Gulf		6,70E-05
Derimian et a., 2016	Urban (Paris)		-7,98E-05
	Dust (Dakar, Senegal)		1,08E-04
	Mixture dust and urban (Kanpur, India)		4,22E-07
	Biomass burning (Mongu, Zambia)		-2,19E-04
	Mixture dust and biomass burning (Dakar, Senegal)		2,44E-05
Mishra et al., 2014	Polluted Dust		3,80E-05
	Dust		1,10E-04
	Polluted Continental		-5,47E-05

Tableau 4.1: Pentes caractéristiques de la dépendance spectrale de l'albédo de simple diffusion issues de la littérature pour différents type de masse d'air (désertiques en orange, urbaine en noir, et de feux de biomasse en vert).

Chapitre 4 : Transport des aérosols à haute altitude

L'impact des particules d'aérosols issues des différentes sources locales ou régionales sur les propriétés de l'atmosphère dépend également de l'altitude du site de mesures. Les travaux de Husar et al. (2000) ont établi des coefficients d'extinction à partir de mesures au sol autour du bassin Amazonien lors de la période BB. L'étude montre en moyenne des coefficients d'extinction entre 0,1 et 0,2 km^{-1} mais pouvant atteindre des valeurs de 0,6 km^{-1} sur la station de Sucre (2903 m), 1,0 km^{-1} à Valleggrande (1998 m) et 2,0 km^{-1} à Camiri (792 m) (**Figure 4.1**). Sur la station de "Fazenda Nossa Senhora Aparecida" (FNSA, 770 m) au Brésil, Chand et al. (2006) ont mesuré depuis le sol des coefficients d'absorption et de diffusion atteignant 70 Mm^{-1} (à 532 nm) et 1435 Mm^{-1} (à 545 nm) respectivement lors d'importantes émissions ($\text{PM}_{2.5} > 225 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$).



Figure 4.1: Carte des lieux d'études des feux de biomasse en Amérique du Sud. Les zones vertes représentent la couverture forestière et les zones roses la surface forestière perdue entre 2000 et 2014 (www.earthenginepartners.appspot.com).

Les travaux d'Andrews et al. (2011) mettent également en évidence l'importance des propriétés optiques des aérosols de troposphère libre à partir de différentes stations d'altitude et montrent que l'AOD de troposphère libre représente entre 10 et 35% des propriétés optiques moyennes pour les stations de l'étude (Mauna Loa, USA; Lulin Mountain, Taiwan; Nepal Climate Observatory — Pyramid; Izaña, Espagne; Mount Waliguan, Chine; Beo Moussala, Bulgarie; Mount Bachelor, USA; Monte Cimone, Italie; Jungfraujoch, Suisse; Whistler Mountain, Canada). Grâce à l'important panel instrumental des stations in-situ d'altitude utilisé dans leur étude, une grande partie des paramètres nécessaires à l'étude de l'effet des aérosols sur le climat (coefficients d'extinction, albédo de simple diffusion et coefficient d'angström) a donc été analysé. Ainsi, leurs travaux montrent que les paramètres optiques intensifs et extensifs décrivant l'aérosol en troposphère libre sont très variables en fonction de la saison et des sources (coefficient d'extinction entre environ 1 Mm^{-1} et 320 Mm^{-1} pour une même saison mais des sites différents). A partir de différentes techniques instrumentales (in-situ, LIDAR au sol et

Chapitre 4 : Transport des aérosols à haute altitude

spatiale), l'étude montre également de bons accords quant à la restitution du coefficient d'extinction des aérosols de troposphère libre. Néanmoins, aucune des stations de l'étude n'est référencée dans l'hémisphère sud alors que cette région du globe présente la part la plus importante des émissions naturelles d'aérosols.

Les mesures des propriétés optiques de l'atmosphère nécessaires à l'étude de l'impact radiatif des aérosols sont étudiées dans cette partie depuis le site de montagne particulier de Chacaltaya (5240 m, Bolivie) entre 2012 et 2014. Regroupant un panel instrumental complet entre mesures in-situ et de télédétection, le site permet alors d'étudier en détails les caractéristiques des aérosols provenant de diverses sources ainsi que de leurs contributions optiques en haute troposphère. Après avoir analysé les variations saisonnières et journalières des propriétés optiques générales de l'aérosol, elles sont étudiées plus en détail selon leurs origines et leurs implications dans les différentes couches de l'atmosphère.

4.1. Conditions météorologiques du site de l'étude

Influencées par un climat tropical, les conditions atmosphériques de cette région sont séparées selon deux périodes : une période humide de décembre à mars (valeurs moyennes à La Paz en Bolivie : $T_{\max} = 17^{\circ}\text{C}$, $T_{\min} = 6^{\circ}\text{C}$ et précipitation = 95 mm/mois, WET, en bleue sur la **Figure 4.2**) et une période sèche de mai à septembre ($T_{\max} = 17^{\circ}\text{C}$, $T_{\min} = 2^{\circ}\text{C}$ et précipitation = 15 mm/mois). Dans cette étude, la période sèche est séparée en deux périodes : une période sèche (DRY, en orange sur la **Figure 4.2**) et une période sèche influencée par les feux de biomasse

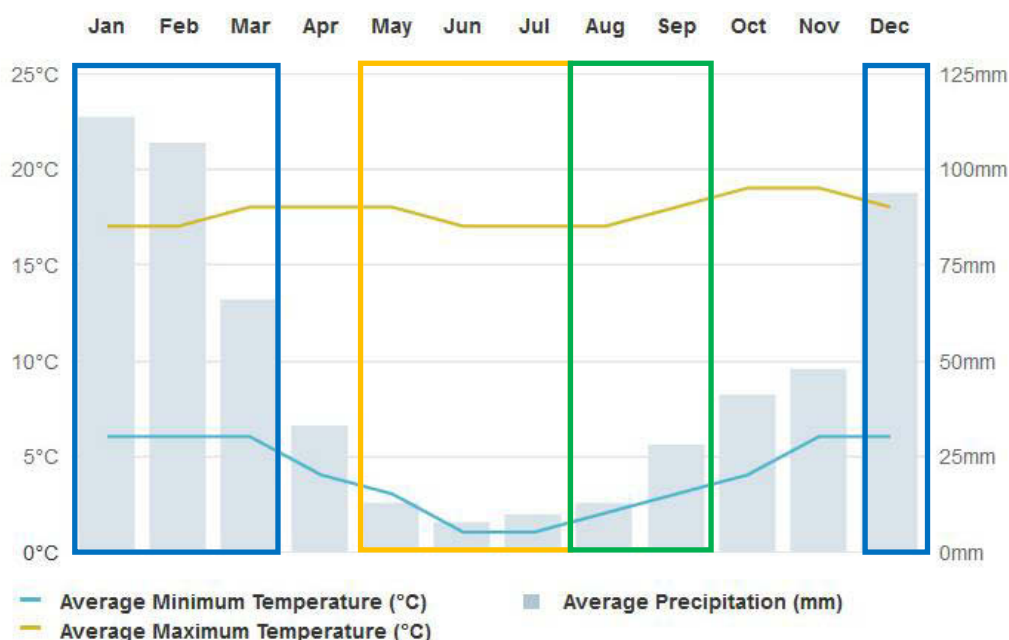


Figure 4.2: Moyennes mensuelles des précipitations (histogramme), et des températures minimales (ligne bleue) et maximales (ligne jaune) à La Paz, Bolivie (www.andes-amazonia.com, données météorologiques de l'aéroport de El Alto).

(BB, en vert sur la **Figure 4.2**). Les mois d'avril, octobre et novembre sont pris comme périodes de transitions.

La station de mesures in-situ GAW de Chacaltaya en Bolivie décrite dans le **chapitre 2** enregistre une grande diversité de particules. Les données utilisées dans ce chapitre ont été accumulées sur 3 années de mesures continues. La complémentarité des mesures in-situ de la station d'altitude de Chacaltaya et des mesures de télédétection de La Paz permet d'obtenir une information complète et précise sur les aérosols de chaque couche atmosphérique. De par son altitude (5240 m), la station est souvent représentative des conditions de troposphère libre (Moreno et al., en préparation) et permet alors d'étudier de façon spécifique les aérosols transportés dans cette couche.

4.2. Caractérisation des conditions météorologiques des mesures

4.2.1. Séparation des mesures selon couche de mélange ou troposphère libre

Il est possible de déterminer de quelle couche de l'atmosphère les aérosols mesurés sont représentatifs à partir de l'analyse de différents traceurs. Dans le cas de Chacaltaya, une méthode basée sur la variation de la direction horizontale du vent est utilisée afin de séparer les conditions de couche de mélange des conditions de troposphère libre au niveau de la station de mesures (Moreno et al, en préparation). En effet, la couche de mélange est caractérisée par de fortes turbulences (variations importantes de la direction du vent) alors que la troposphère libre est caractérisée par des flux majoritairement laminaires (variations faibles de la direction du vent). La **Figure 4.3** présente la déviation standard de la direction du vent mesurée depuis la station de Chacaltaya sur une période de 3 jours. Un seuil de 12.5 degrés sur la variation de la direction du vent est pris afin de séparer les conditions de couche de mélange (en bleu, ML) et de troposphère libre (en rouge, FT). Les cas en jaune (gFT) présentent des conditions d'interface difficile à caractériser (Moreno et al., en préparation).

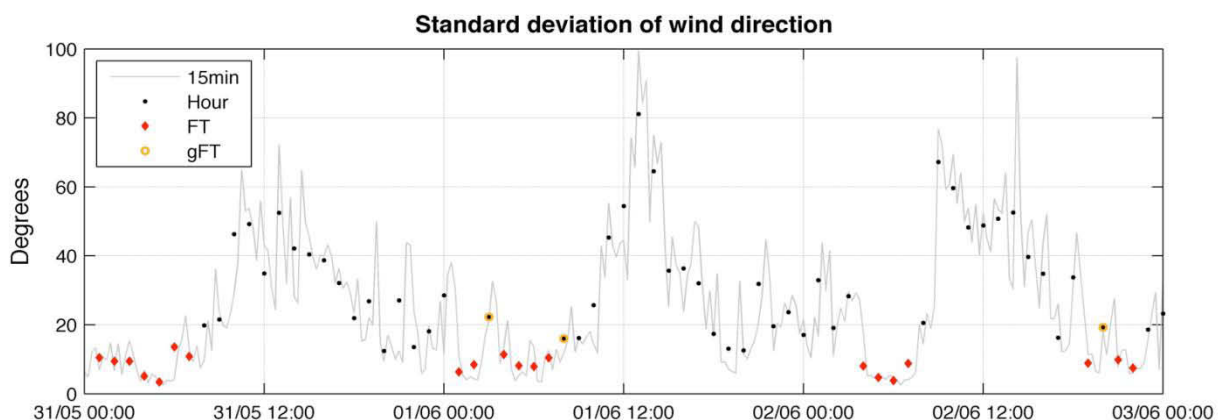


Figure 4.3: Exemple de variation standard de la direction du vent mesurée à la station d'altitude de Chacaltaya (5240 m) entre le 31 Mai 2015 et le 2 Juin 2015 avec 15 min de résolution.

Chapitre 4 : Transport des aérosols à haute altitude

Les marqueurs ainsi établis à partir de cette méthode permettent alors de séparer le jeu de données de la station entre les différentes conditions atmosphériques et ainsi de déterminer les propriétés optiques, microphysiques et chimiques de chacune des couches d'aérosols indépendamment.

La **Figure 4.4** met évidence la variation journalière et saisonnière de la fraction de chacun des marqueurs (ML en rouge, FT en bleu et gFT en noir). Il est clairement visible que les conditions de troposphère libre dominant pendant la nuit alors que les conditions de couche de mélange dominant pendant la journée pour chaque saison. Ce phénomène est d'autant plus marqué en saison sèche avec plus de 80% de cas de ML en journée (contre 60% en période humide) et plus de 70% de cas de FT pendant la nuit (contre moins de 60% en période humide). Il est également intéressant d'observer que la période d'inversion de la dominance entre ML et FT (ligne pointillée noire) se fait toujours aux mêmes heures pour chaque saison, soit aux environs de 9h (heure locale) le matin et aux environs de 21h (heure locale) le soir.

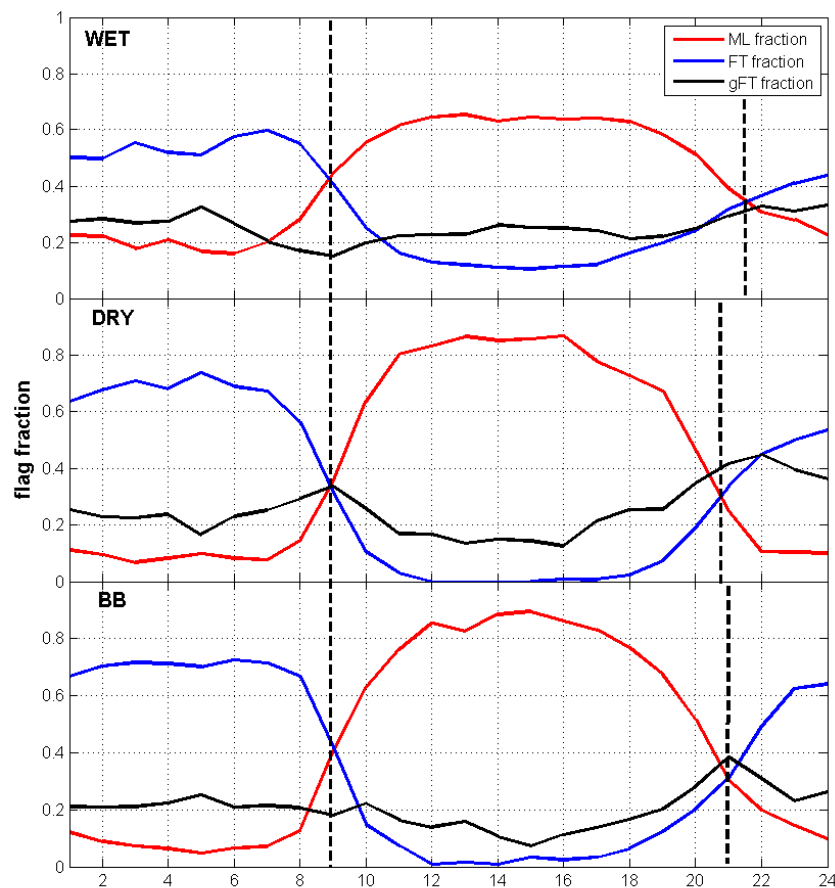


Figure 4.4: Variations journalières de la fraction des cas de couche de mélange (ML, en rouge), de troposphère libre (FT, en bleu) et des cas de troposphère libre modifiée (gFT, en noir) pour chacune des trois saisons (humide en haut, sèche au centre et influencée par les feux de biomasse en bas). Les marqueurs sont définis selon la déviation standard de la direction du vent mesurée depuis la station d'altitude de Chacaltaya (5240 m).

4.2.2. Origines des masses d'air

A partir de modèles détaillés des flux d'air atmosphériques, il est possible d'étudier le transport des aérosols à courte et longue distance autour du site de l'étude. Ainsi, les sources d'émissions et les propriétés des aérosols selon leurs origines peuvent être analysées.

Le modèle Hysplit (Hybrid Single Lagrangian Integrate Trajectory, **section 2.3.1**), utilisant le modèle de dynamique atmosphérique WRF (Weather Research and Forecasting), est donc utilisé dans cette partie pour des rétrotrajectoires sur 12h calculées toutes les heures. Afin de prendre en compte la complexité de la topographie du site d'altitude dans le modèle WRF, les rétrotrajectoires à partir de 9 points répartis autour du site (maximum de 1 km de distance) ont été calculées.

Afin de faciliter la compréhension de l'analyse des rétrotrajectoires, des clusters ont été définis selon la provenance des masses d'air et pouvant chacun caractériser des sources d'émissions différentes. Ces clusters sont issus de l'important travail du groupe de recherche du Laboratorio de Fisica de la Atmosfera (LFA - UMSA) en Bolivie, notamment de Fernando Velarde. Ils ont ainsi été définis selon des rétrotrajectoires privilégiées dues à la topographie de la région et des flux atmosphériques dominants. Pour chaque cluster, il est possible d'attribuer les types de sources pouvant influencer les propriétés des aérosols de ces masses d'air.

- Cluster 1 : Région urbaine de La Paz
- Cluster 2 : El Alto et haut plateau bolivien
- Cluster 3 : Lac Titicaca et haut plateau bolivien
- Cluster 4 : Bassin Amazonien
- Cluster 5 : Bassin Amazonien et région urbaine de La Paz

Selon la saison et les provenances des masses d'air, il est possible de trancher entre les différentes sources possibles depuis chaque cluster pour définir la nature des aérosols mesurés. Les clusters 1 et 2 sont principalement influencés par les émissions anthropiques de la zone urbaine de La Paz et de El Alto (aéroport et industries), et des poussières minérales du haut plateau bolivien. L'océan Pacifique ne se trouvant qu'à environ 300 km à l'ouest de Chacaltaya, les masses d'air échantillonnées dans ces clusters 1, 2 et 3 sont plus humides que celles provenant de l'est. Au contraire, les clusters 4 et 5 sont principalement influencés par des émissions de particules organiques provenant de la forêt amazonienne, et de particules de suie issues des feux de biomasse.

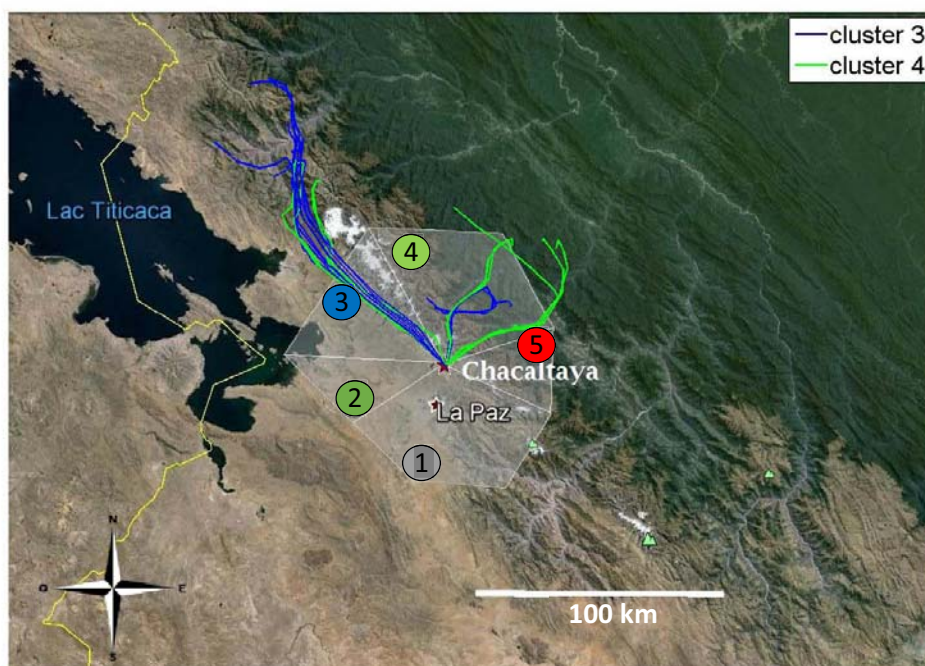


Figure 4.5: Carte de la région de La Paz centrée sur la station de Chacaltaya et définition des clusters (numérotés de 1 à 5) pour la classification des rétrotrajectoires. Exemple des rétrotrajectoires du 3 Août 2012 (24 rétrotrajectoires sur 12h). Le repère blanc représente 100 km.

La **Figure 4.5** présente des exemples de rétrotrajectoires sur 12h pour la journée du 3 août 2012, la définition de chaque cluster et l'attribution de chaque rétrotrajectoire à chaque cluster (couleurs). Pour cette journée, 12 rétrotrajectoires sur 24 proviennent du cluster 3 (en bleu), et 12 du cluster 4 (en vert). La classification des rétrotrajectoires selon les 5 clusters porte sur l'ensemble de la trajectoire mais avec un poids donné plus important sur les premières heures de la rétrotrajectoire (proche de la station) où celle-ci est supposée plus fiable. Ainsi des rétrotrajectoires classées dans un cluster peuvent avoir transité par un autre cluster précédemment comme cela est le cas pour certaines trajectoires des clusters 3 et 4. Cet exemple montre également l'importance de la connaissance de la topographie locale pour l'étude des rétrotrajectoires avec des masses d'air suivant distinctement les vallées au Nord-Est de la ville de La Paz.

4.3. Analyses des propriétés optiques de l'aérosol

4.3.1. Variations saisonnières et journalières

Les médianes saisonnières du coefficient de diffusion (σ_{scat}), du coefficient d'absorption (σ_{abs}), du coefficient d'extinction (Ext) et de l'albédo de simple diffusion (SSA) mesurées à partir du jeu de données de Chacaltaya de 2012 à 2014 sont montrées **Figure 4.6**.

La médiane [25^{ième} percentile – 75^{ième} percentile] du coefficient d'absorption mesurée à la station CHC est de 1,30 [0,81 – 2,16] Mm^{-1} à 500 nm. Les valeurs les plus basses sont mesurées pendant la période humide de décembre à mars (0,98 [0,57-1,86] Mm^{-1}) et sont significativement inférieures à celles de la période sèche de mai à juillet (1,22 [0,80-1,83] Mm^{-1}). Les coefficients d'absorption les plus importants sont observés pendant la période sèche lors des épisodes de feux de biomasse localisés à l'est de la station (1,61 [1,04 – 2,76] Mm^{-1}). Les mêmes variations sont observées pour les coefficients de diffusion et d'extinction avec des valeurs médianes de 11,80 Mm^{-1} [6,50 – 19,27] et 13,72 Mm^{-1} [8,01 – 21,93] respectivement. La station de Chacaltaya étant la station d'observation des composés atmosphériques de plus haute altitude dans le bassin amazonien, ces valeurs restent très faibles en comparaison d'autres études des feux de biomasse dans cette région (Husar et al. 2000 ;Chand et al., 2006).

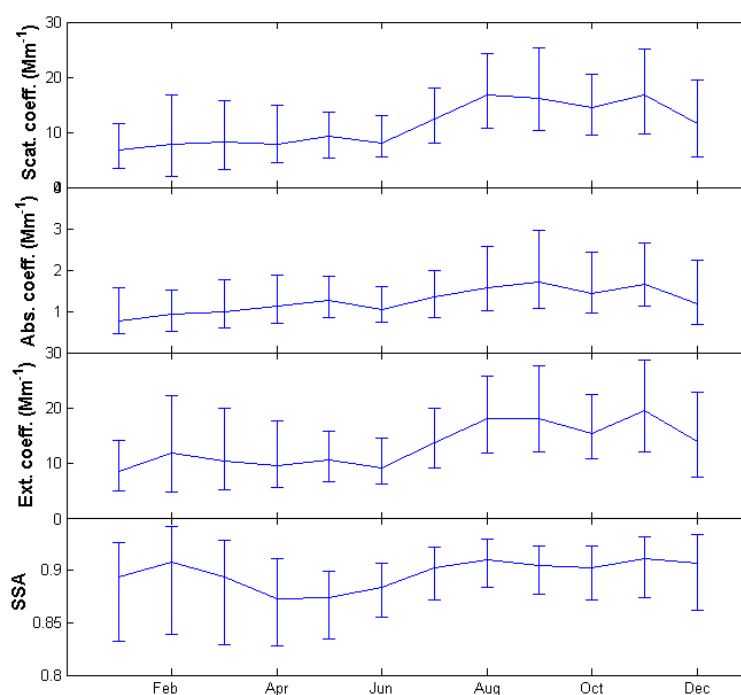


Figure 4.6: Médianes mensuelles du coefficient d'absorption à 500 nm, du coefficient de diffusion à 500 nm, du coefficient d'extinction et de l'albédo de simple diffusion mesurées à la station de CHC sur les 3 ans de 2012 à 2014. Les lignes correspondent à la médiane et les barres au domaine délimité par les 25^{ième} et 75^{ième} percentiles.

L'albédo de simple diffusion médian est de 0,90 [0,86 – 0,92]. Il est de 0,90 [0,84 – 0,93] pendant la période humide, de 0,89 [0,86 – 0,91] pendant la période sèche et est le plus élevé lors des épisodes de feux de forêt en Amazonie (0,91 [0,86 – 0,93]). Ceci est en désaccord avec ce qui est observé plus proche des sources de feux de biomasse aux alentours de la forêt amazonienne. Reid et al. (1998) rapportent, pour les régions de Cuiaba, Porto Vello et Maraba (**Figure 4.1**), des SSA d'environ 0,80 à partir de mesures avion lors d'épisodes de feux de forêt. Cependant, les valeurs du SSA évoluent rapidement avec le temps et des valeurs de 0,85 voire 0,90 sont observées à partir de 1 à 2 journées après émission dans ces régions (Reid et al., 1998 ;

Chapitre 4 : Transport des aérosols à haute altitude

Reid et al., 2005). Ceci explique alors les valeurs élevées du SSA mesurées depuis la station CHC, plus éloignée des zones d'émissions principales et mesurant ainsi des particules âgées déjà de plusieurs jours. Les faibles valeurs du SSA observées en mars et en avril résultent majoritairement des émissions de particules de BC locales moins importantes que les feux amazoniens, expliquant également les plus faibles valeurs des coefficients d'absorption pendant cette période.

La **Figure 4.7** montre les variations journalières des propriétés optiques de l'aérosol mesurées à la station CHC entre 2012 et 2014 pour les saisons humide, sèche et influencée par les feux de biomasse. Pour chacune des 3 saisons, une nette augmentation (entre 50% et 100%) des paramètres optiques de l'aérosol est observée autour de 12h UTC (8h locale). Cet effet est principalement expliqué par la variation de la hauteur de la couche de mélange au cours de la journée. Les particules émises au niveau du sol sont transportées et diffusées dans la couche de mélange et atteignent l'altitude de la station de CHC du fait de la convection thermique et/ou des effets topographiques peu après le lever du soleil (**section 1.4**).

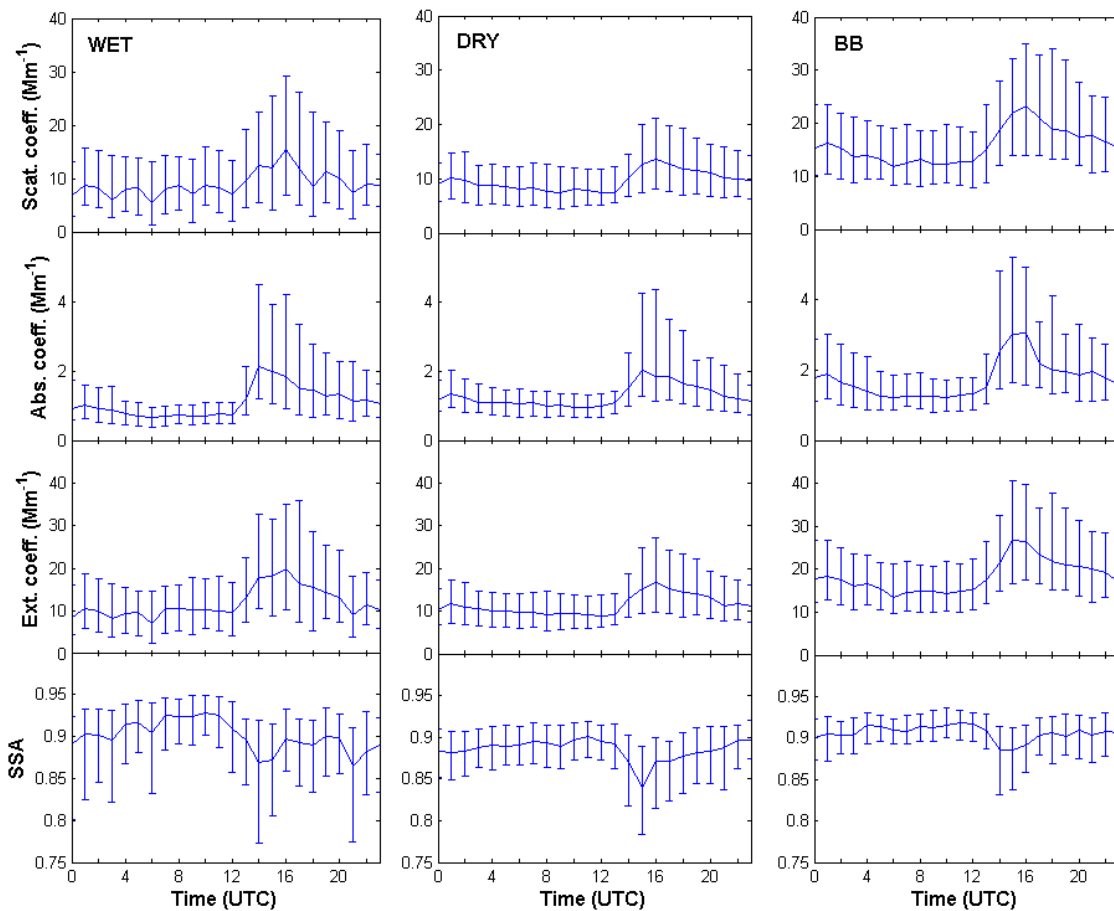


Figure 4.7: Variations journalières des médianes du coefficient de diffusion, du coefficient d'absorption, du coefficient d'extinction et de l'albedo de simple diffusion (de haut en bas) pour la saison humide (WET), sèche (DRY) et influencée par les feux de biomasse (BB) à 500 nm. Les barres représentent les 25^{ième} et 75^{ième} percentiles.

Ces résultats permettent également d'observer que les conditions saisonnières influencent à la fois les propriétés optiques de l'aérosol pendant la journée et pendant la nuit. Malgré une forte dispersion des propriétés optiques de l'aérosol pendant la saison humide, principalement due au manque de données causé par de fortes précipitations, une nette augmentation des propriétés est observée entre les saisons humide et sèche ainsi qu'entre les saisons sèche et de feux de biomasse, y compris pendant la nuit où l'on échantillonne principalement des conditions de troposphère libre.

Pour chaque saison, une baisse significative du SSA est observée (de 0,92 à 0,87 pendant la saison humide et de 0,90 à 0,84 pendant la saison sèche) vers 15h UTC lorsque les particules présentes dans la couche de mélange atteignent la station in-situ de Chacaltaya. Ceci indique alors une dominance des particules absorbantes dans la couche de mélange par rapport aux particules des couches supérieures de l'atmosphère, en accord avec les précédentes conclusions.

4.3.2. Représentativité régionale

Les propriétés optiques des aérosols aux alentours de la station de Chacaltaya ont également été étudiées au cours de cette thèse. Pour se faire, les mesures d'épaisseur optique issues de l'instrument MODIS et particulièrement celles du satellite Terra ont été analysées. La **Figure 4.8** montre un exemple de mesures réalisées avec cette méthode lors du passage du satellite au-dessus de l'Amérique du Sud le 21 septembre 2015.

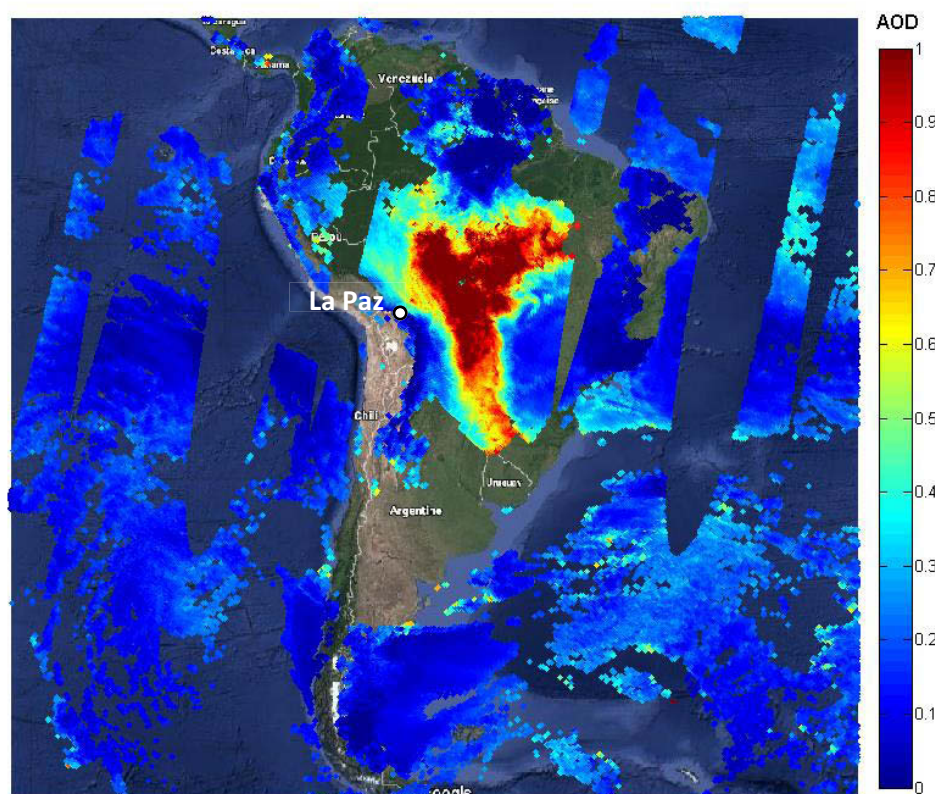


Figure 4.8 : Epaisseur optique mesurée le 21 septembre 2015 par l'instrument MODIS installé sur le satellite Terra.

Chapitre 4 : Transport des aérosols à haute altitude

Les mesures montrent de fortes épaisseurs optiques (> 1) autour du bassin amazonien dues à d'importants feux de forêt au cours de cette période. L'absence de données au sud du continent (Argentine) est due à la présence de nuages. Aucun nuage n'est répertorié dans la région de La Paz et le panache issu des feux de biomasse ne semble pas influencer l'atmosphère au-dessus de cette région. Cependant, les travaux de Remer et al. (2005) (environ 130 stations AERONET) concluent que les mesures MODIS au-dessus des sites d'altitude ne sont que très peu fiables.

Les mesures d'AOD produites par l'instrument MODIS ont été comparées aux mesures similaires fournies par le photomètre installé à La Paz en extrayant le point de mesure du satellite le plus proche géographiquement. La **Figure 4.9** met ainsi en relation les deux méthodes de mesures selon la distance (en km) entre les deux mesures (à gauche) et la saison (à droite).

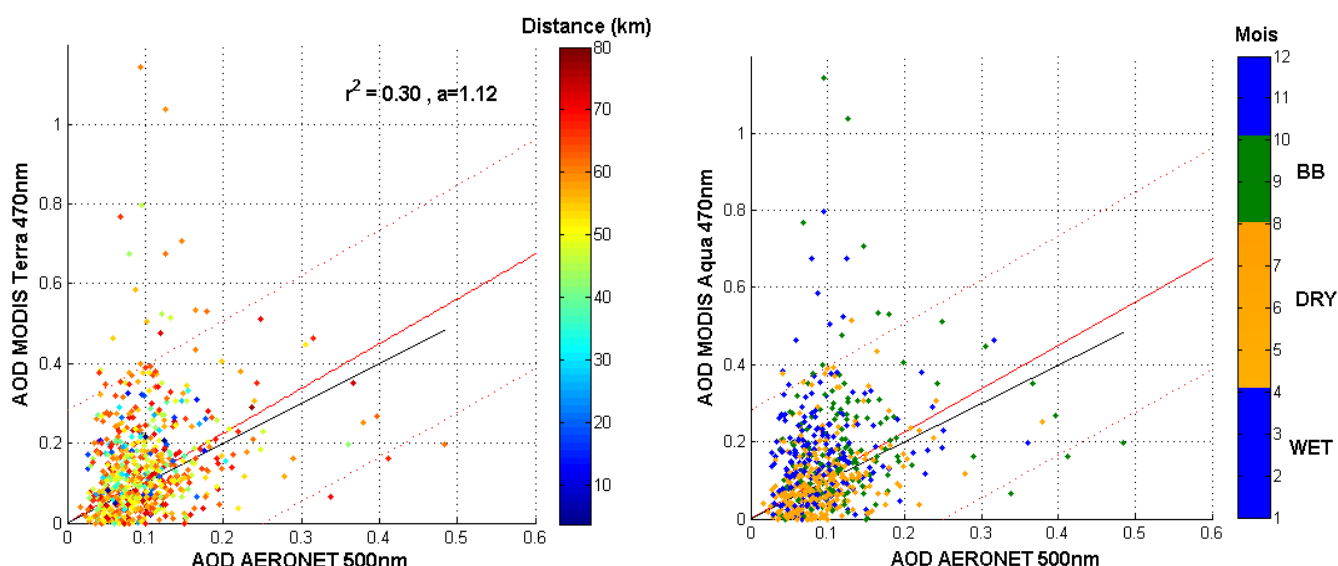


Figure 4.9 : Comparaison des épaisseurs optiques établies par les mesures photométriques et satellites en fonction de la distance entre les deux points de mesures (à gauche) et en fonction de la saison (à droite).

Bien que la différence de longueurs d'onde (30 nm de différence) entre les deux instruments puisse jouer un rôle sur le biais observé entre les deux mesures, on remarque une forte dispersion et une faible corrélation ($r^2 = 0,30$). L'étude de Remer et al. (2005) rapporte des coefficients de corrélation r^2 entre 0,45 et 0,70 au-dessus des continents et autour de 0,80 au-dessus des océans. Les résultats au-dessus du haut plateau bolivien peuvent refléter des difficultés encore accrues de MODIS à établir les propriétés optiques des aérosols au-dessus des sites de haute altitude. Cette corrélation ne semble pas pouvoir être améliorée en ne prenant en compte que les points très proches de la station AERONET. Cependant, la relation entre les deux mesures semble être dépendante de la saison. En effet, en période sèche (en orange), les mesures MODIS sont clairement en dessous des mesures photométriques alors qu'en période humide (en bleu), la corrélation semble plus dispersée.

Dans la suite de ces travaux de thèse, les mesures satellites n'ont donc pas été utilisées pour évaluer la représentativité de la station d'un point de vue spatial par manque de précision dans cette région du globe mais elles ont toutefois été utiles quant à la détection d'épisodes intenses de feux de biomasse.

4.3.3. Propriétés optiques de l'aérosol selon l'origine des masses d'air

4.3.3.1. Provenance des masses d'air

La **Figure 4.10** présente la répartition des rétrotrajectoires autour de la station de mesures de Chacaltaya pour chaque saison. Ces roses des vents représentent la fréquence de passage des rétrotrajectoires dans une certaine zone (résolution angulaire de 10°). Les résultats montrent que la saison sèche est particulièrement influencée par des masses d'air provenant du nord-ouest de la station de mesures alors que pour la saison humide, les masses d'air proviennent principalement du nord-est de la station. Il est important de noter que pour la saison influencée par les feux de biomasse (BB), une part plus importante des masses d'air provient de l'est de la station contrairement au reste de la saison sèche. Les différents clusters définis dans la **section 4.2.2** sont représentés en couleur sur la **Figure 4.10** (le cluster 1 en noir, le cluster 2 en orange, le cluster 3 en bleu, le cluster 4 en vert et le cluster 5 en rouge). Cependant, comme analysé depuis la **Figure 4.5**, une rétrotrajectoire complète peut passer par plusieurs clusters mais est assignée à un seul. Ces roses des vents indiquent donc une fréquence de passage et non pas une proportion des rétrotrajectoires dans chacun des clusters. Les zooms pour chaque saison montrent également que les masses d'air peuvent provenir du sud de la station, soit de la région urbaine de La Paz (cluster 1).

Chapitre 4 : Transport des aérosols à haute altitude

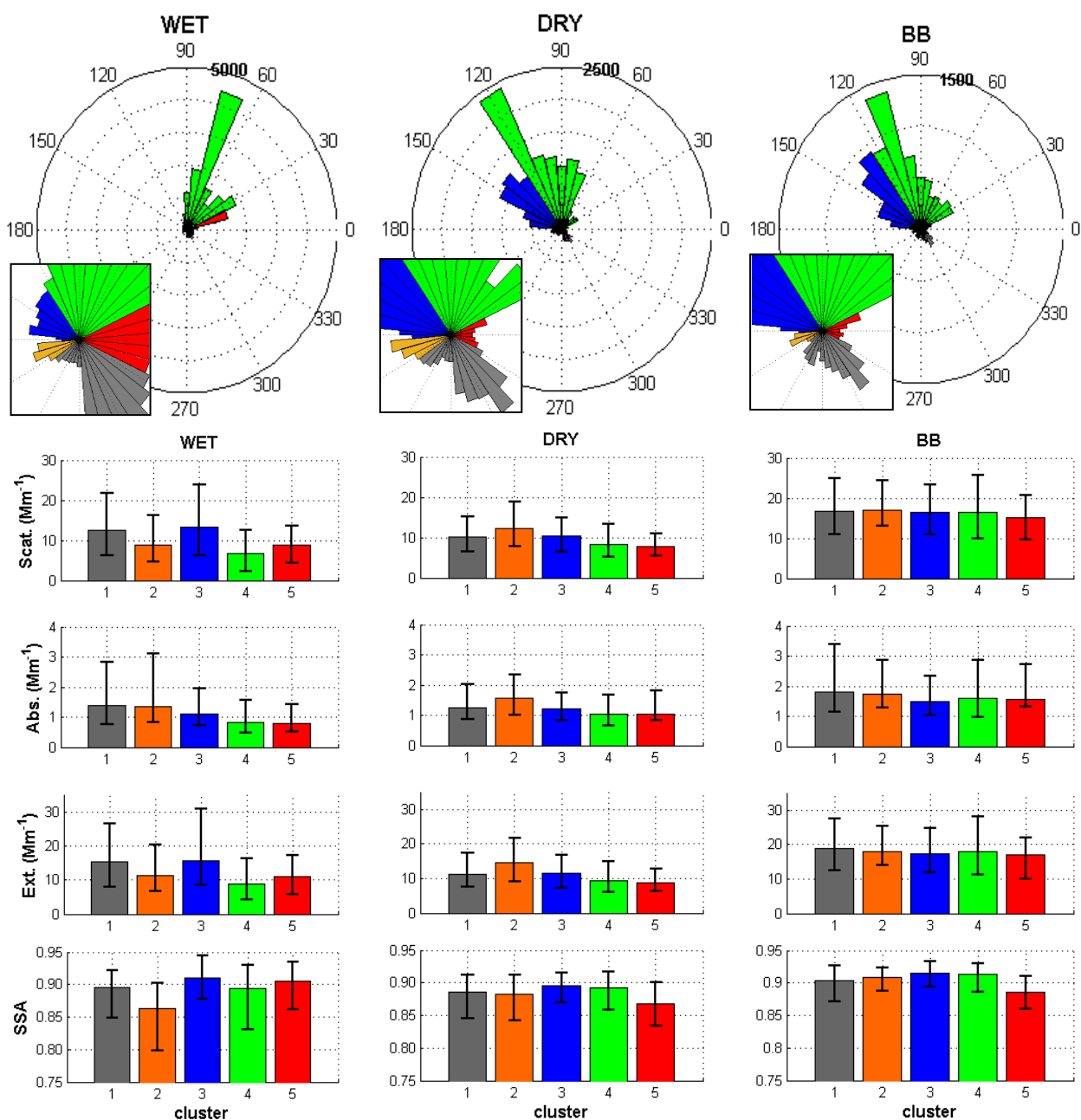


Figure 4.10 : Rose des vents des rétrotrajectoires sur 12h pour chaque saison et histogrammes des propriétés optiques médianes et percentiles (25^{ième} et 75^{ième}) à 500 nm pour chaque cluster. Cluster 1 en noir, cluster 2 en orange, cluster 3 en bleu, cluster 4 en vert et cluster 5 en rouge.

4.3.3.2. Test statistique de Wilcoxon-Mann-Whitney

Afin d'évaluer si les propriétés optiques d'un cluster de rétrotrajectoires présente des différences statistiquement significatives avec les autres clusters, le test U des médianes de Wilcoxon-Mann-Whitney a été appliqué. Ainsi les résultats de l'analyse des coefficients d'extinction (**Figure 4.11**) ont montré que tous les clusters ne sont pas comparables statistiquement. En effet, si le nombre de point définissant un cluster n'est pas assez important ou si les médianes des deux clusters comparés sont trop proches, le test U peut être nul (en blanc). Chaque comparaison issue de la **Figure 4.10** devra donc être pondérée par les résultats du test U dans la suite de l'étude.

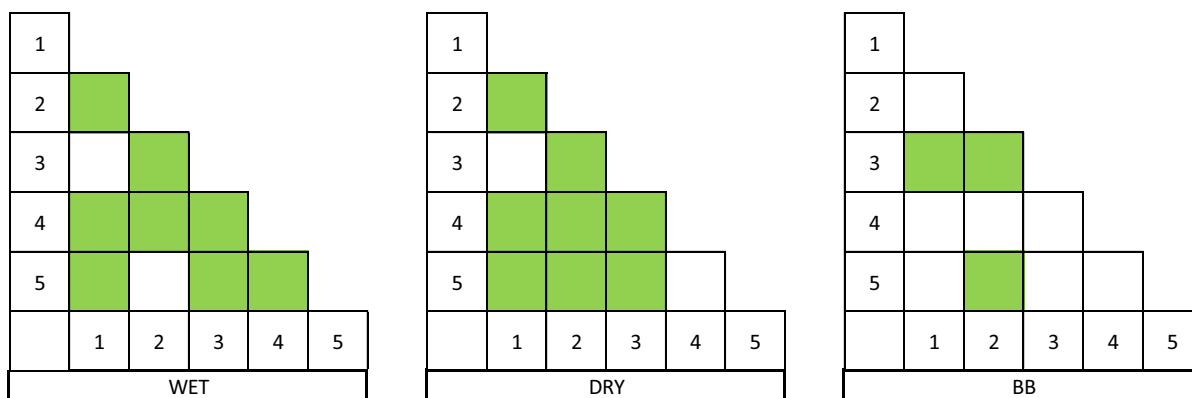


Figure 4.11 : Résultats du test U de Wilcoxon-Mann-Whitney entre les coefficients d'extinction de chaque cluster et pour les trois saisons. Un test positif est représenté en vert.

4.3.3.3. Etude des paramètres extensifs

Les propriétés optiques des aérosols mesurées selon chacune des origines des masses d'air et pour chaque saison sont également représentées **Figure 4.10**. Les tendances saisonnières analysées dans la section précédente sont majoritairement retrouvées dans chacun des clusters. Les coefficients d'extinction mesurés depuis la station in-situ de Chacaltaya sont beaucoup plus faibles que les valeurs mesurées en plaine au Brésil et dans les études plus proches des sources (Chand et al., 2006; Husar et al., 2000) (de $0,004 \text{ km}^{-1}$ à $0,031 \text{ km}^{-1}$ en saison humide et de $0,004 \text{ km}^{-1}$ à $0,021 \text{ km}^{-1}$ en saison sèche). Néanmoins, pour chacun des clusters, la saison présentant les coefficients d'extinction les plus importants est la saison des feux de biomasse (de 28% à 80% supérieurs à ceux rencontrés en saison sèche), ce qui montre l'influence des feux de biomasse d'Amazonie d'un point de vue régionale.

De plus, selon les saisons, les masses d'air présentant les propriétés optiques les plus importantes ne proviennent pas des mêmes clusters. Pendant la saison humide, les masses d'air provenant de la région urbaine de La Paz (cluster 1 en noir) et du haut plateau bolivien (cluster 3 en bleu) possèdent des coefficients d'extinction supérieurs à 15 Mm^{-1} contre environ 10 Mm^{-1} pour les masses d'air provenant du bassin Amazonien (cluster 4 et 5 en vert et rouge). Le test

Chapitre 4 : Transport des aérosols à haute altitude

U pour la saison humide confirme que les clusters 1 et 3 sont similaires (région urbaine de La Paz), et statistiquement différents des clusters 4 et 5 (bassin Amazonien). En saison sèche, ce sont principalement les masses d'air provenant de El Alto (cluster 2 en orange) qui présentent les coefficients d'extinction les plus élevés (environ 14 Mm^{-1} contre entre 8 et 12 Mm^{-1} pour les autres clusters). Selon les résultats du test U, seuls les couples de clusters 1/3 et 4/5 sont des coefficients d'extinction proches pendant cette saison, alors que le cluster 2 est bien significativement supérieur aux autres clusters. Pour la saison BB, chaque cluster présente des coefficients d'extinction supérieurs à 17 Mm^{-1} et sont les plus élevés pour les masses d'air provenant de la région urbaine de La Paz (cluster 1). Les mêmes conclusions sont établies à partir des coefficients de diffusion et d'absorption. En effet, de fortes pollutions locales provenant principalement de la région urbaine de La Paz et de El Alto peuvent expliquer la dominance des propriétés optiques des clusters 1 et 2 pour les saisons humide et sèche. Lors de la saison BB, en plus de ces pollutions locales, d'importants feux de biomasse (locaux ou régionaux) influencent chacune des masses d'air mesurées depuis la station de CHC et particulièrement les masses d'air venant du bassin Amazonien (cluster 4), ce qui explique alors d'importants paramètres optiques pour les deux types de masse d'air (bassin amazonien et région urbaine). Cependant, du fait de la proximité des propriétés optiques de chaque cluster, les résultats du test U montrent que peu de couples de clusters sont différenciables.

4.3.3.4. Etude des paramètres intensifs

Les variations de l'albédo de simple diffusion SSA sont également en accord avec les tendances saisonnières analysées dans la section précédente et ceci pour la majorité des clusters. Les valeurs les plus importantes sont observées en saison BB et les plus basses en saison humide. Toutefois, les masses d'air présentant les valeurs de SSA les plus basses, et donc caractérisant des aérosols absorbants, n'ont pas les mêmes origines selon les saisons. En saison humide, les SSA les plus faibles sont observés pour des masses d'air provenant de El Alto (0,80) (cluster 2) alors qu'en saison sèche et BB, elles proviennent du bassin Amazonien (entre 0,83 et 0,89) (cluster 5). Selon l'étude de Reid et al. (2005), les mesures du SSA proches des sources présentent des valeurs autour de 0,85 et atteignent des valeurs autour de 0,89 au bout de quelques heures après émission. En effet, la station étant située à longue distance de la forêt Amazonienne, les fortes extinctions mesurées correspondent à des particules ayant été émises plusieurs jours avant d'arriver sur la station CHC. Les faibles valeurs observées en périodes sèche et humide liées à la présence de particules absorbantes dans l'atmosphère peuvent être expliquées par des feux de biomasse locaux ou des émissions anthropiques importantes.

4.3.3.5. Impact de la topographie régionale sur les mesures

Comme montré dans le chapitre précédent, les propriétés optiques des aérosols mesurées depuis une station d'altitude dépendent fortement des conditions atmosphériques ambiantes et donc de la couche atmosphérique dans laquelle elle réside. La station de Chacaltaya étant située à très haute altitude et à l'interface entre la forêt Amazonienne et le haut plateau de la région de La

Paz, il est possible d'étudier à la fois les propriétés des aérosols de couche de mélange et de troposphère libre présentant des sources d'émission et des transports verticaux et horizontaux diversifiés. La **Figure 4.12** rend compte de l'altitude des masses d'air le long des rétrotrajectoires sur 12h entre 2012 et 2014 pour les trois saisons. Les résultats montrent clairement que les masses d'air suivent la topographie, notamment pendant la saison sèche, avec des rétrotrajectoires suivant les vallées à l'est de La Paz. De plus, selon la saison et le cluster d'où provient la masse d'air, il est possible d'étudier à la fois des masses d'air provenant des basses couches de la troposphère (<5000 m) et des masses d'air ayant résidé pendant plus ou moins longtemps à haute altitude (>5000 m).

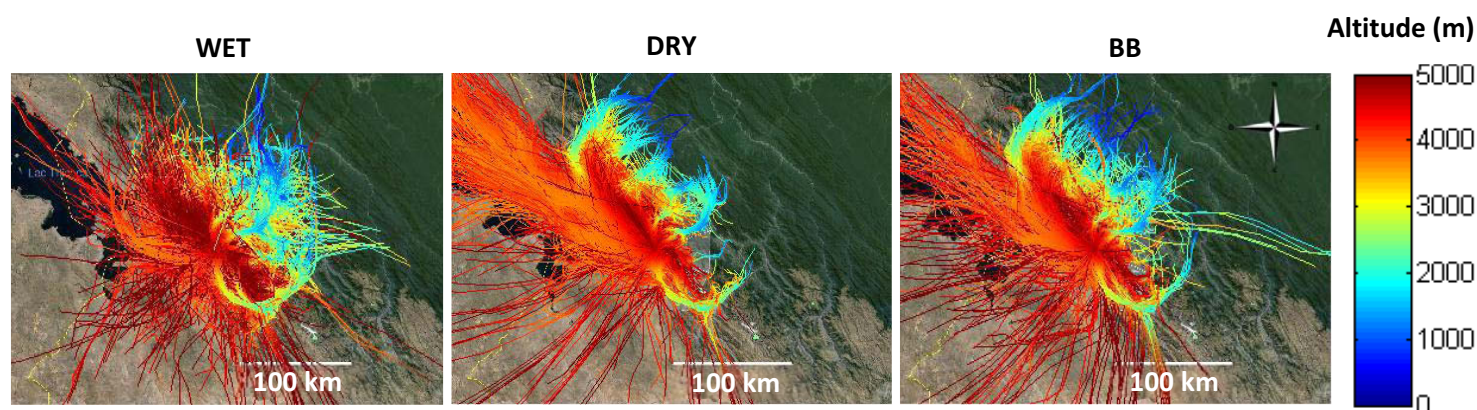


Figure 4.12: Rétrotrajectoires sur 12h des masses d'air arrivant à la station de Chacaltaya calculées entre 2012 et 2014 en fonction de leurs altitudes.

4.3.4. Propriétés optiques de l'aérosol selon la couche atmosphérique

Le but de l'étude étant de caractériser les propriétés optiques des aérosols transportés dans la haute troposphère, la méthode basée sur l'analyse de la variation de la direction du vent, détaillée précédemment (**section 4.2.1**), est appliquée au jeu de données de la station de CHC sur trois années de mesures.

Chapitre 4 : Transport des aérosols à haute altitude

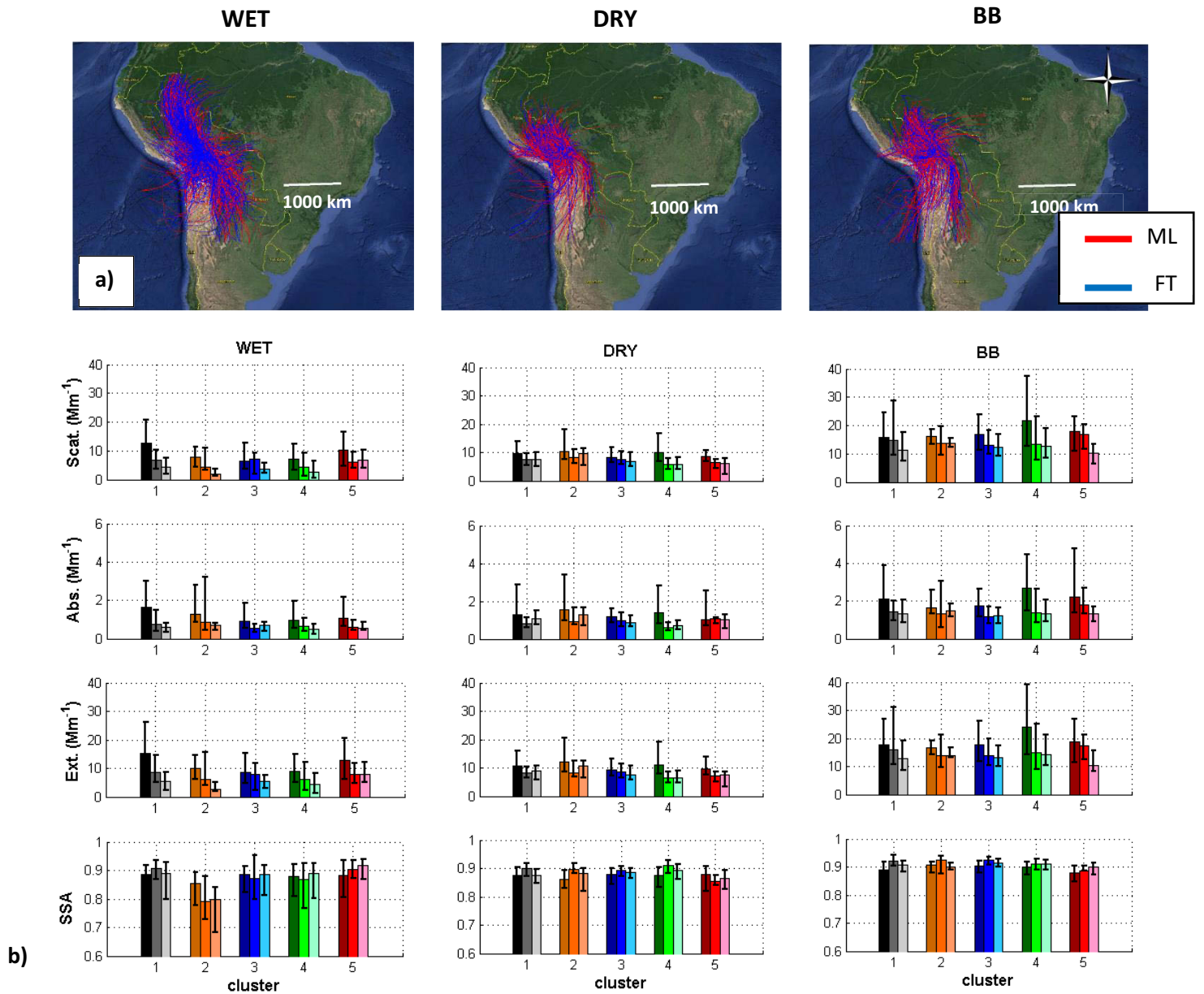


Figure 4.13: a) Application de la classification des rétrotrajectoires sur 96h selon la couche de mélange (en rouge) et la troposphère libre (en bleu) pour chaque saison. b) Propriétés optiques médianes et percentiles (25^{ième} et 75^{ième}) des aérosols mesurées depuis la station de mesures in-situ de Chacaltaya entre 2012 et 2014 à 500 nm pour les cas de couche de mélange (première barre), les cas intermédiaires (barre centrale) et les cas de troposphère libre (troisième barre) pour chacun des clusters.

L'étude des rétrotrajectoires sur 96h (**Figure 4.13 a**) présente différentes conclusions que celles apportées par l'étude des rétrotrajectoires sur 12h (**Figure 4.10** et **Figure 4.12**). En effet, sur de plus longues distances, la saison humide présente un axe nord/sud beaucoup plus prononcé, et la saison sèche une plus large répartition des rétrotrajectoires autour de la station. De plus, les cas de couche de mélange (en rouge) et de troposphère libre (en bleu) établis à partir de la méthode de la déviation standard du vent depuis la station ne semblent pas être caractéristiques d'un cluster en particulier mais permettent ainsi de définir les propriétés optiques des aérosols de chaque couche pour toutes les origines de masses d'air.

La **Figure 4.13 b** résume les propriétés optiques médianes dans chacun des clusters et dans chacune des couches (dans l'ordre : ML, gFT et FT). Pour chacune des couches de l'atmosphère et pour chaque cluster, les variations saisonnières des propriétés optiques sont identiques à celles observées dans les sections précédentes. De plus, au sein de chaque saison, la prédominance des clusters se retrouve à la fois en couche de mélange et en troposphère libre. En saison humide, les plus forts coefficients d'extinction sont observés pour des masses d'air provenant majoritairement de la région urbaine de La Paz (cluster 1 et 5) pour les deux couches. En saison sèche, les plus forts coefficients d'extinction sont observés pour des masses d'air provenant de El Alto (cluster 2), et en saison BB, pour les masses d'air provenant de la forêt Amazonienne (cluster 4). Ces observations montrent clairement l'influence importante des émissions d'aérosols depuis le sol sur les propriétés de la totalité de la colonne atmosphérique, incluant la troposphère libre.

WET					
	1	2	3	4	5
1					
2					
3					
4					
5					

DRY					
	1	2	3	4	5
1					
2					
3					
4					
5					

BB					
	1	2	3	4	5
1					
2					
3					
4					
5					

Figure 4.14: Résultats du test U de Wilcoxon-Mann-Whitney entre les coefficients d'extinction de chaque cluster et pour les trois saisons. Un test positif en couche de mélange est représenté en rouge, et en troposphère libre en bleu. Les résultats positifs du test sur la comparaison des mesures en couche de mélange et en troposphère libre pour un même cluster sont représentés en vert.

La **Figure 4.14** répertorie les résultats du test U sur les coefficients d'extinction de chaque cluster pour les cas de couche de mélange (en rouge) et de troposphère libre (en bleu). Le test montre que pour un même cluster, les médianes des coefficients d'extinction en couche de mélange et en troposphère libre sont statistiquement similaires (en vert) pour chaque cluster et pour chaque saison. Cependant, les tests montrent que les résultats établis précédemment sont

Chapitre 4 : Transport des aérosols à haute altitude

moins fiables en troposphère libre qu'en couche de mélange pour les saisons humide et BB : les différences entre types de masses d'air s'atténuent en troposphère libre, qui montre moins de contraste qu'en couche de mélange.

De plus, pour chaque cluster et pour chaque saison, les propriétés optiques des aérosols sont significativement supérieures en couche de mélange par rapport à celles mesurées en troposphère libre. Dans le but de déterminer la part des aérosols de troposphère libre dans les propriétés optiques de la colonne atmosphérique totale, il est intéressant d'analyser le rapport des extinctions entre troposphère libre et couche de mélange. Pour la saison humide, les rapports des extinctions FT/ML sont de 27% à 50%, pour la saison sèche de 27% à 88% et pour la saison BB de 23% à 80%. Ainsi, la contribution des aérosols de troposphère libre est plus importante en saison sèche qu'en saison humide. A partir de la classification des masses d'air selon leurs origines, les contributions des aérosols de troposphère libre sont les plus importantes pour les masses d'air venant de El Alto et du haut plateau bolivien (cluster 2) pour la saison sèche (88% et 80% des extinctions en couche de mélange pour les saisons sèche et BB respectivement). Ces contributions sont également importantes pour les masses d'air provenant de la région urbaine de La Paz et du haut plateau bolivien (cluster 1 et 3) (supérieurs à 60%). Ceci indique un transport des aérosols en troposphère libre pour cette région principalement dû à la convection forcée due à la topographie et une forte convection thermique au-dessus de la région aride du plateau bolivien.

L'analyse de l'albédo de simple diffusion (SSA) révèle également des informations importantes sur la nature des aérosols mesurés. Le SSA est généralement moins bas en troposphère libre qu'en couche de mélange avec des valeurs médianes de 0,88, 0,88 et 0,91 en saison humide, sèche et BB respectivement, contre 0,87, 0,87 et 0,89 pour les cas de couche de mélange. Les aérosols de troposphère libre sont donc généralement moins absorbants que les aérosols de couche de mélange. En effet, les aérosols de troposphère libre étant plus éloignés de leurs sources, leurs propriétés optiques ont évolué, et leur SSA augmenté. Les études de Balis et al. (2003) et Reid et al. (2005) ont montré cette augmentation du SSA en fonction du temps après émission à partir de mesures avion ou de télédétection. A notre connaissance, aucune étude ne rapporte de mesures long terme du SSA en troposphère libre. Néanmoins, les résultats du test statistique de Wilcoxon-Mann-Whitney montrent que cette conclusion n'est applicable que sur certains clusters (en vert sur la **Figure 4.15**). Cette tendance est inversée pour les masses d'air provenant du haut plateau bolivien (cluster 3) pour les saisons humides et BB pour lesquelles le SSA est plus élevé en ML qu'en FT. Des aérosols alors plus absorbants sont présents en troposphère libre qu'en couche de mélange pour ce type de masse d'air. Ceci peut être expliqué par la prépondérance de poussières minérales dans la couche de mélange alors que la troposphère libre présente des particules majoritairement issues de combustion et transportées à haute altitude.

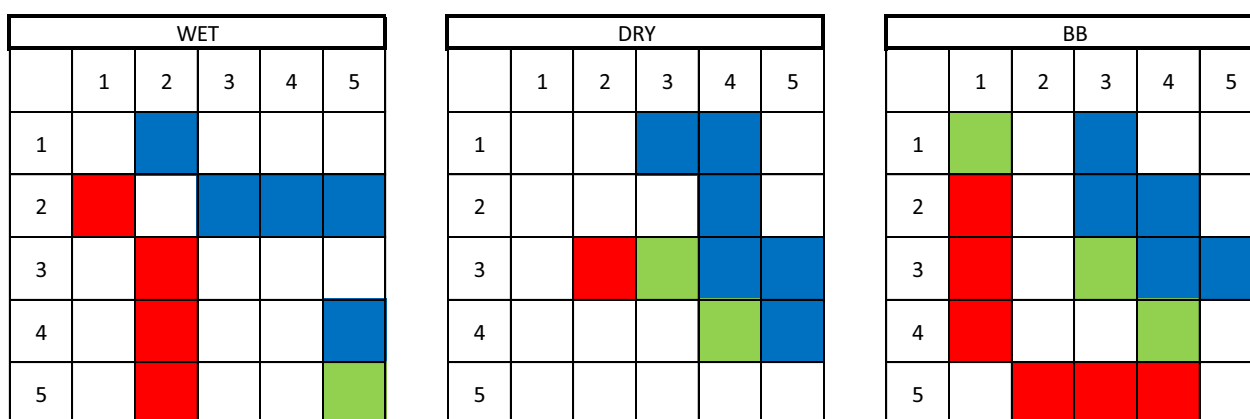


Figure 4.15 : Résultats du test U de Wilcoxon-Mann-Whitney entre les albédos de simple diffusion de chaque cluster et pour les trois saisons. Un test positif en couche de mélange est représenté en rouge, et en troposphère libre en bleu. Les résultats positifs du test sur la comparaison des mesures en couche de mélange et en troposphère libre pour un même cluster sont représentés en vert.

Selon l'analyse par cluster, en condition de couche de mélange, les particules les plus absorbantes (SSA faible) proviennent principalement de la région urbaine de La Paz (cluster 2) pour les saisons humide et sèche et du bassin amazonien (cluster 5) pour la saison BB. En condition de troposphère libre, ces particules proviennent principalement du haut plateau bolivien (cluster 2 et 3) pour toutes les saisons. Ceci est en accord avec l'étude des coefficients d'absorption précédente, ce qui confirme le rôle important des particules absorbantes dans la composition de ces masses d'air. Ces résultats montrent également l'influence des émissions anthropiques locales sur les propriétés optiques de la basse couche de la troposphère et la mesure de particules « âgées » issues des feux de biomasse amazoniens.

4.3.5. Etude de la nature des aérosols à partir de la variation spectrale du SSA

La **Figure 4.16** montre la dépendance à la longueur d'onde de l'albédo de simple diffusion des aérosols pour chaque saison et pour chaque cluster pour tout le jeu de données (de 2012 à 2014). Ces résultats donnent une information sur la nature des aérosols comme établi dans les travaux de Dubovik et al. (2002), Mishra et al. (2014) et Derimian et al. (2016). La saison humide présente de façon significative les aérosols les plus absorbants (pente de $-2,54 \cdot 10^{-4} \text{ nm}^{-1}$) alors que la saison BB présente les aérosols les moins absorbants (pente de $-3,18 \cdot 10^{-5} \text{ nm}^{-1}$). Ces résultats sont en accord avec les précédentes conclusions de ce chapitre sur l'analyse de l'albédo de simple diffusion à 500 nm. En effet, lors de la saison humide, les pollutions locales et les feux de biomasse locaux influencent de façon significative les mesures à Chacaltaya avec des particules fraîchement émises, alors que les particules de feux de biomasse du bassin amazonien en saison BB ont subies une plus longue distance et donc, une modification importante de leurs propriétés optiques. Néanmoins, selon l'analyse par cluster, les clusters 4 et 5, représentatifs des masses d'air du bassin amazonien, présentent les pentes les plus importantes (pente d'environ $-1 \cdot 10^{-4} \text{ nm}^{-1}$), et caractérise alors majoritairement des particules absorbantes, ce qui prouve tout de même la nature des particules provenant de l'est de la station de Chacaltaya. Les clusters 1 et 2 (pente d'environ $-4,5 \cdot 10^{-5} \text{ nm}^{-1}$) sont représentatifs de particules issues de régions

Chapitre 4 : Transport des aérosols à haute altitude

polluées (pentes légèrement négatives, **section 1.2.3.2.3**) en accord avec la définition des clusters (région urbaine de La Paz et El Alto). Et enfin, présentant une moins forte dépendance avec la longueur d'onde, le cluster 3 (pente de $-5.7 \cdot 10^{-6} \text{ nm}^{-1}$) est représentatif de particules minérales en accord avec le caractère aride du haut plateau bolivien.

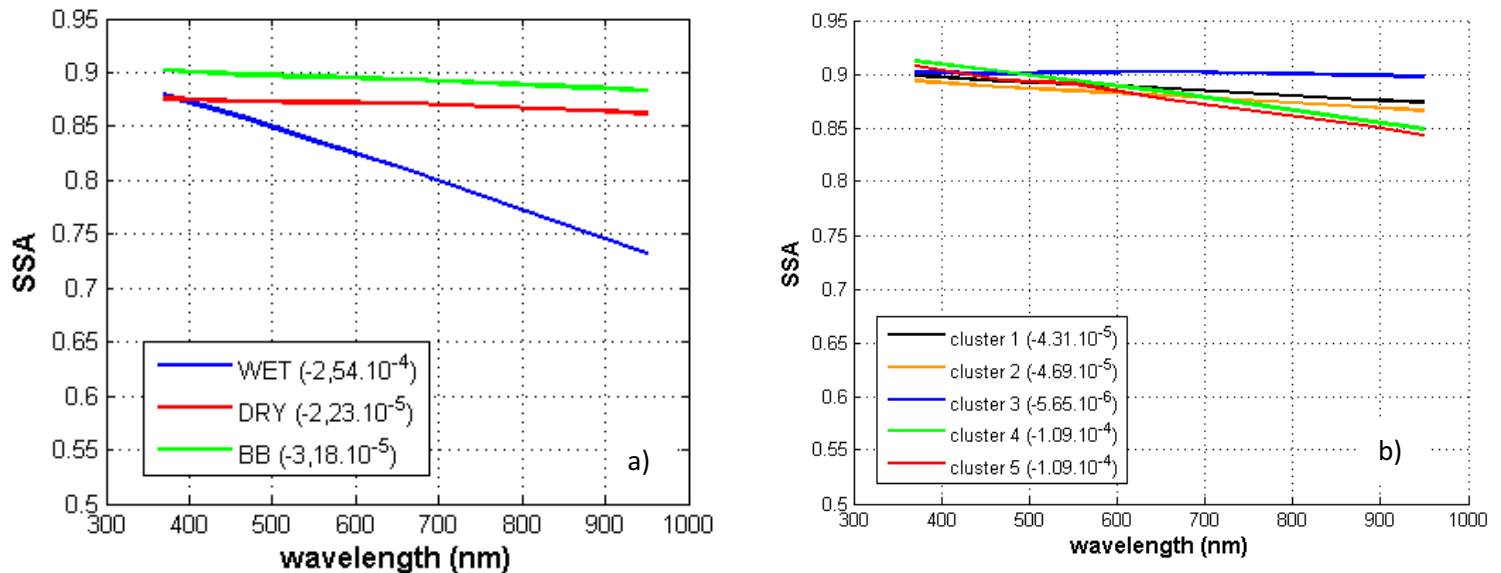


Figure 4.16: Albédo de simple diffusion mesurée depuis la station de Chacaltaya en fonction de la longueur d'onde a) pour chaque saison et b) pour chaque cluster, et pour tout le jeu de données. La pente pour chaque cluster est indiquée entre parenthèses et en nm^{-1} .

La **Figure 4.17** montre la dépendance de l'albédo de simple diffusion des aérosols en fonction de la longueur d'onde pour chaque cluster, chaque saison et chaque couche atmosphérique. Il est possible d'observer que pour chaque saison et chaque couche atmosphérique, chacun des clusters présente des caractéristiques similaires. Ceci prouve ainsi de faible modification des propriétés optiques des aérosols lors de leurs transports à haute altitude. La saison humide présente les aérosols les plus absorbants pour chaque origine de masse d'air (forte dépendance avec la longueur d'onde). Ceci pourrait alors expliquer la nature des aérosols émis pendant la saison humide (feux de biomasse, chauffage au bois,...) et influençant ainsi de façon significative les coefficients d'extinction mesurés depuis la station CHC. La saison sèche présente des masses d'air majoritairement influencées par des poussières minérales (pente proche de 0). Cependant, pour chaque couche atmosphérique (ML et FT), les masses d'air provenant du bassin amazonien (cluster 4 et 5) sont caractérisées par d'avantage de dépendance spectrale que les autres origines de masses d'air. Les particules de carbone suie (Black Carbon, BC) émises par les feux de biomasse d'Amazonie peuvent alors influencer les propriétés optiques de ces masses d'air.

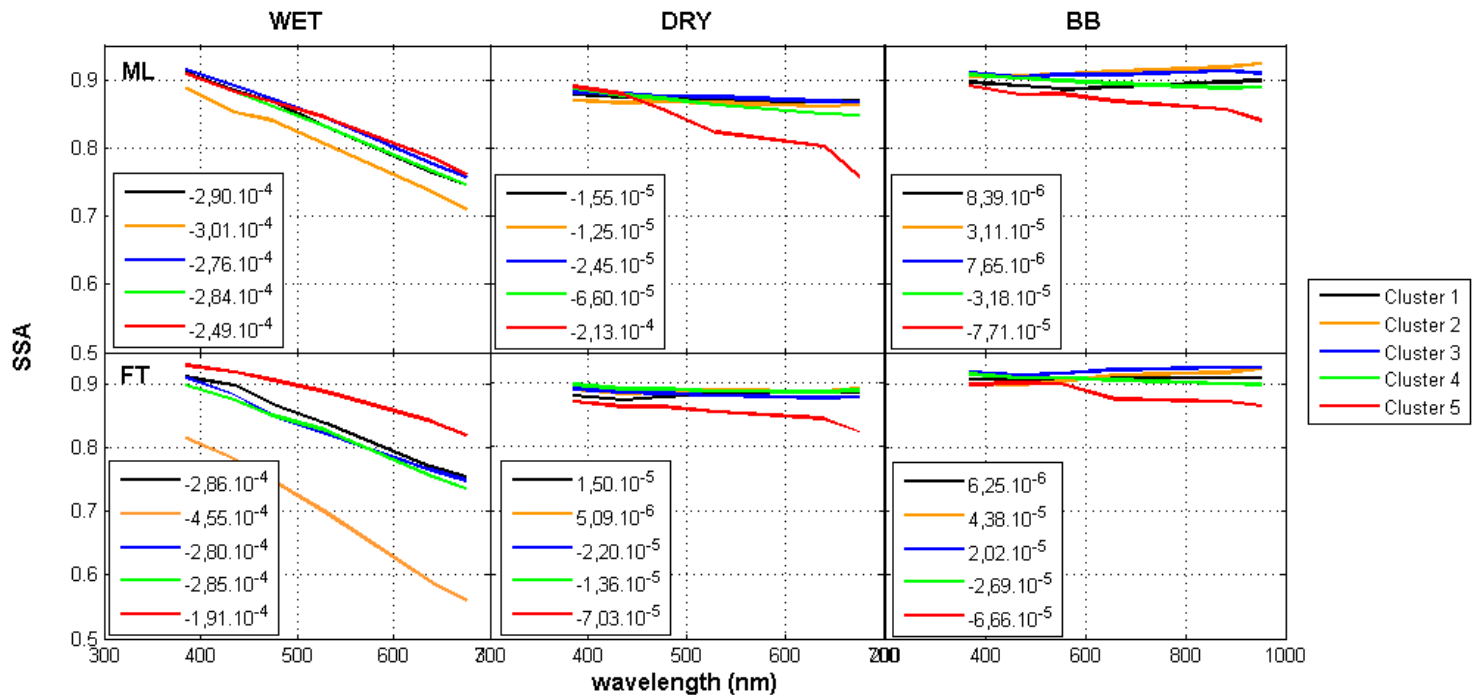


Figure 4.17: Albédo de simple diffusion mesuré depuis la station de Chacaltaya en fonction de la longueur d'onde pour chaque saison (de gauche à droite), chaque couche atmosphérique (couche de mélange en-haut et troposphère libre en bas) et pour chaque cluster (en couleur).

Conclusions du chapitre

Chacun des paramètres optiques essentiels à l'étude de l'impact radiatif des aérosols a été examiné en détails dans cette partie des travaux de thèse. La station particulière de Chacaltaya (5 240 m au-dessus du niveau de la mer) en Bolivie permet l'analyse d'une grande diversité de type d'aérosol et donne une rare opportunité d'approfondir les connaissances sur leur comportement à différents niveaux de l'atmosphère, et ce, à partir d'une importante base de données. Ainsi, pour chaque saison, les caractéristiques de la troposphère libre peuvent être évaluées principalement de nuit (dans laquelle la station est entre 40 et 70% du temps) et les caractéristiques de la couche de mélange de jour (80% du temps). On observe que les coefficients de diffusion et d'absorption sont plus élevés pendant la saison de feux de biomasse que pendant les deux autres saisons. Cette conclusion est vérifiée à la fois le jour et la nuit, montrant un impact de la couche de mélange sur la composition de la troposphère libre, à l'échelle de la saison.

L'étude a été poussée davantage en utilisant les rétrotrajectoires des masses d'air afin d'associer des propriétés optiques des aérosols à des sources de diverses origines.

Chapitre 4 : Transport des aérosols à haute altitude

Le bassin Amazonien présentant de forts épisodes de déforestation chaque année, de nombreuses études scientifiques se sont intéressées à leur impact sur la composition de l'atmosphère ainsi que sur le climat. Les résultats de cette étude ont permis d'observer de façon nette l'impact régional de ces feux de biomasse ainsi que leur influence jusqu'en troposphère libre. En effet, les coefficients d'extinction connaissent une augmentation de 28% à 80% entre août et septembre. La zone urbaine de La Paz présentant une population d'environ 790 000 habitants et se situant à environ 20 km de la station de mesure de Chacaltaya et à 3440 m d'altitude, influence également de façon significative les mesures de la station. Cette étude permet ainsi de caractériser l'influence régionale des activités anthropiques de La Paz. Les résultats montrent que, au sein de chaque saison, les types de masses d'air associés aux coefficients de diffusion et d'absorption les plus élevés sont les mêmes en couche de mélange et en troposphère libre. En saison humide, les plus forts coefficients d'extinction sont observés pour des masses d'air provenant majoritairement de la région urbaine de La Paz pour les deux couches. En saison sèche, les plus forts coefficients d'extinction sont observés pour des masses d'air provenant du plateau de El Alto, et en saison BB, pour les masses d'air provenant de la forêt Amazonienne. Ces observations montrent à nouveau l'influence importante des émissions d'aérosols depuis le sol sur les propriétés de la totalité de la colonne atmosphérique, incluant la troposphère libre. Cependant, les différences entre types de masses d'air s'atténuent en troposphère libre par rapport à la couche de mélange, ce qui indique un « lissage » des propriétés optiques de l'aérosol dans la troposphère libre, probablement lié au temps de résidence plus long dans cette partie de l'atmosphère.

Il est donc intéressant de déterminer la contribution de ces aérosols de troposphère libre sur la totalité des aérosols de la colonne atmosphérique ainsi que leur impact radiatif.

Chapitre 5 : Contributions et propriétés radiatives de l'aérosol en Troposphère Libre

Le chapitre précédent a permis de mettre en évidence l'interaction et les échanges de particules entre la couche de mélange et la troposphère libre. Les résultats ont également montré que la troposphère libre possède une part significative des aérosols de la colonne atmosphérique avec des propriétés optiques proches de celles des aérosols de la couche de mélange. Dans ce chapitre, les contributions optiques et radiatives des particules de troposphère libre sur la colonne atmosphérique sont étudiées plus en détails et selon différentes techniques instrumentales. Le terme de forçage radiatif est utilisé quelle que soit la source d'émission des aérosols.

Selon l'origine des particules d'aérosols (industrie, transport, chauffage des foyers, mais aussi feux de biomasse, poussières désertiques, embruns marins, ou volcaniques,...), de nombreuses études montrent une grande diversité d'interactions avec le rayonnement solaire (Satheesh and Krishna Moorthy, 2005 ; Conant et al., 2003 ; Bellouin et al., 2013 ; Mishra et al., 2014). Les forçages radiatifs (RF) relatifs à différents types d'aérosol publiés récemment dans la littérature sont rapportés **Tableau 5.1**. Mishra et al. (2014) rapportent sur le bassin Méditerranéen, à partir de mesures satellites, de télédétection et du modèle de transfert radiatif SBDART (Santa Barbara DISORT Atmospheric Radiative Transfert), les forçages radiatifs à différents niveaux de l'atmosphère (au sommet (TOA), à la surface ou la différence des deux (ATM), **section 1.3**) des poussières désertiques, de la pollution provenant du continent européen et des aérosols marins (**Tableau 5.1**) à la fois à courtes longueurs d'onde (ou shortwave, SW, en anglais) et à longues longueurs d'onde (ou longwave, LW, en anglais). Pour un calcul à la surface du globe, leurs travaux montrent que, quelle que soit la nature des particules, le forçage radiatif est beaucoup plus important dans les courtes que dans les longues longueurs d'onde (environ un ordre de grandeur de différence) et de signes opposés. (Garcia et al., 2012) établissent à partir de mesures photométriques AERONET (**section 2.2.1**) les forçages radiatifs au sommet de l'atmosphère (TOA) à plusieurs localisations et donc différentes influences de masse d'air (entre -10 et -35 W.m^{-2}). Leurs travaux montrent que, pour des mesures allant de 1 à 13 années, les régions influencées par les poussières désertiques, comme l'Afrique de l'Ouest, présentent les forçages radiatifs les plus importants (-35 W.m^{-2}), suivis par l'Asie (-27 W.m^{-2}). Des récents travaux se focalisent également sur l'impact des aérosols sur le climat du bassin Méditerranéen et de ses alentours. La campagne multi-instrumentée ChArMEx de l'été 2013 (Mallet et al.,

Chapitre 5 : Aérosols de Troposphere Libre

2016) a ainsi permis de déterminer des forçages radiatifs entre -10 et -20 W.m^{-2} à la surface et à courtes longueurs d'onde et des impacts conséquents sur la température de la surface de la mer, la couverture nuageuse et les précipitations.

	Particules	RF (W.m ⁻²)	Type	Méthode
Mishra et al., 2014	marines	1	ATM	modèle SBDART
	poussières minérales	11		
	continentales polluées	7		
	marines	-7	Surface SW	
	poussières minérales	-22		
	continentales polluées	-17		
	marines	ND	Surface LW	
	poussières minérales	2,47		
	continentales polluées	0,78		
	marines	-6	TOA	
	poussières minérales	-11		
	continentales polluées	-10		
Garcia et al., 2012	Afrique du Nord	-12	TOA	AERONET (GAME)
	Afrique de l'Ouest	-35		
	Peninsule Arabique	-20		
	Europe	-18		
	Amérique du Nord	-10		
	Asie	-27		

Tableau 5.1 : Forçage radiatif (RF) en W.m^{-2} pour différents types de particules et différentes régions du monde.

Les travaux de Mishra et al. (2014) montrent que, pour chaque type d'aérosol étudié, la différence entre les forçages radiatifs à la surface et au sommet de l'atmosphère (rapportée dans le type atmosphère (ATM) dans le tableau), est dans tous les cas positive. Ceci indique qu'une partie du rayonnement incident au sommet de l'atmosphère est absorbée par l'atmosphère et conduit alors à un réchauffement global de l'atmosphère.

Dans la littérature, il est également possible de trouver le forçage radiatif par unité d'AOD, appelle forçage radiatif efficace ($\text{RFE} = \Delta F/\text{AOD}$, en $\text{W.m}^{-2}.\text{AOD}^{-1}$) et qui est une fonction de la composition chimique des particules (Yu et al., 2006 ; Andrews et al., 2011 ; Bellouin et al., 2013). Le **Tableau 5.2** présente les valeurs modélisées du forçage radiatif établies pour différents types de particules à différentes altitudes de l'atmosphère (Bellouin et al., 2013).

Type d'aérosol	AOD	TOA		Surface		Atmosphère
		RF	RFE	RF	RFE	RF
Total	0.180 ± 0.030	-7.3 ± 1.3	-41	-10.8 ± 1.9	-60	+3.5
Anthropiques	0.073 ± 0.013	-2.9 ± 0.5	-40	-5.8 ± 1.1	-80	+3.0
Poussières minérales	0.043 ± 0.014	-1.4 ± 0.4	-33	-1.9 ± 0.6	-44	+0.5
Marins	0.055 ± 0.016	-2.8 ± 0.8	-51	-2.8 ± 0.8	-51	+0.0
Mode fin naturel	0.009 ± 0.004	-0.3 ± 0.2	-33	-0.3 ± 0.2	-33	+0.0

Tableau 5.2 : Forçage radiatif et forçage radiatif efficace global au sommet de l'atmosphère (TOA), en surface ou dans l'atmosphère pour différents types de particules d'aérosols (Bellouin et al., 2013).

Concernant les aérosols de troposphère libre, les travaux de Andrews et al. (2011) rapportent des forçages radiatifs efficaces (RFE) au sommet de l'atmosphère depuis 10 stations d'altitude (supérieures à 2300 m). Etant donné les variations journalières de la concentration des aérosols sur ces stations d'altitude, la séparation des mesures selon leur localisation en couche de mélange ou troposphère libre se fait à partir de l'heure de la journée, soit en début et fin de journée pour les mesures en troposphère libre. Bien que les stations soient réparties sur tout le globe, les résultats montrent peu de variations spatiales du RFE en troposphère libre (entre -30 et -20 $\text{W.m}^{-2}.\text{AOD}^{-1}$) et sont très peu différents du RFE de la colonne atmosphérique (inférieurs à 15%). En accord avec les résultats du chapitre précédent, ceci montre alors une signature du transport significatif des aérosols en troposphère libre et sur de longues distances. De plus, (Garcia et al., 2012) établissent les forçages radiatifs des aérosols de troposphère libre à partir de stations AERONET d'altitude. Avec des épaisseurs optiques inférieures à 0,1, leurs résultats montrent toutefois des forçages radiatifs des aérosols de troposphère libre à la surface d'environ -10 W.m^{-2} .

Du fait du faible nombre d'études sur les aérosols de troposphère libre malgré leur importante signature sur le bilan radiatif global, ce chapitre s'intéresse en premier lieu à la détermination de la contribution optique des aérosols de la troposphère libre par différentes méthodes instrumentales. Les propriétés optiques des aérosols de troposphère libre alors établies sont intégrées dans un modèle de transfert radiatif (SBDART) afin d'estimer leur impact radiatif, et les variations saisonnières et journalières sont analysées pour les aérosols de troposphère libre présents au-dessus du site du puy de Dôme.

5.1. Contribution optique des aérosols de troposphère libre

Afin de déterminer la contribution optique des aérosols de troposphère libre, plusieurs méthodes peuvent être utilisées selon les situations géographiques des stations de mesures ainsi que les disponibilités instrumentales. Le site du puy de Dôme offre un panel instrumental entre techniques de mesures in-situ et de télédétection sur des stations co-localisées et dont la maintenance continue permet d'obtenir de larges jeux de données.

Dans cette partie, la comparaison des méthodes est réalisée à partir de l'instrumentation disponible sur la station du puy de Dôme (PUY, 1465 m d'altitude) et du campus des Cézeaux (CZ, 420 m d'altitude). En particulier, pour cette étude, un deuxième photomètre a été installé en juillet 2015 au sommet du puy de Dôme afin d'obtenir davantage d'information sur la structure de l'atmosphère. La **Figure 5.1** rend compte de la disponibilité instrumentale utile à l'étude pour l'année 2015.

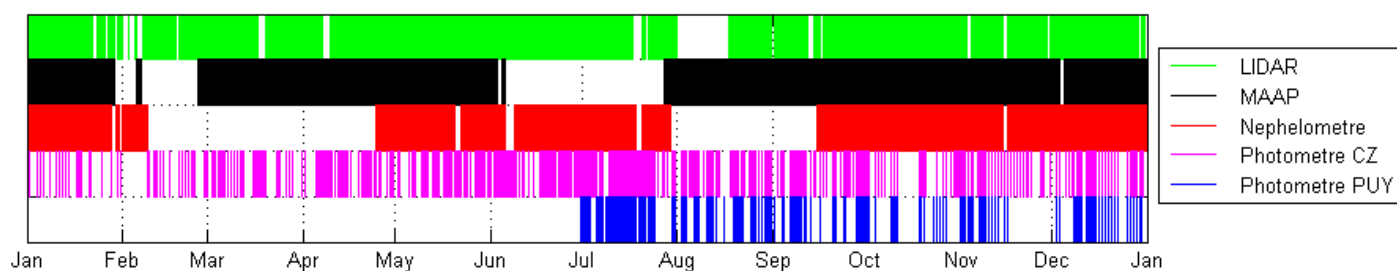


Figure 5.1 : Disponibilité instrumentale sur le site du Puy de Dôme pour l'année 2015.

5.1.1. Méthodologies

5.1.1.1. Couplage des mesures photométriques et mesures in-situ

Il est bien connu que la hauteur de la couche de mélange évolue principalement en fonction des effets de convection dus au réchauffement de la surface de la terre. Ainsi, la couche de mélange est généralement la plus épaisse en journée et la plus fine la nuit. Les stations situées à une altitude proche du sommet de la couche de mélange locale permettent alors d'analyser à la fois les conditions de couche de mélange et de troposphère libre en fonction des conditions atmosphériques locales.

L'utilisation de certains traceurs physiques ou chimiques permet d'identifier les conditions atmosphériques dans lesquelles l'instrumentation de la station mesure. Dans le chapitre précédent, la déviation standard de la direction du vent a permis de séparer les cas de couche de mélange et de troposphère libre dans le jeu de données de la station de Chacaltaya (Moreno et al., en préparation). D'autres méthodes existent dans ce même but comme le rapport des concentrations NO_x/CO (Herrmann et al., 2015), la concentration en radon (Griffiths et al., 2013 ; Griffiths et al., 2014), mais aussi les profils verticaux de l'atmosphère avec un LIDAR (méthode de la WCT, **section 2.2.3.5.2**), ou des modèles de dynamique atmosphérique (ECMWF). La combinaison de ces méthodes permet de réduire les incertitudes sur la détermination des conditions de mesures. Les travaux de Farah et al. (en préparation) au puy de Dôme utilisent différentes méthodes et leur combinaison afin de différencier de manière plus robuste les couches de la troposphère. Pour chaque traceur, des seuils ont ainsi été définis pour séparer les conditions atmosphériques de couche de mélange de celles de troposphère libre :

- Radon : troposphère libre si la concentration en radon est supérieure à $0,67 \text{ Bq.m}^{-3}$.
- NO_x/CO : troposphère libre si le rapport est supérieure à 0,005.
- WCT et ECMWF : troposphère libre si l'altitude de la couche de mélange est inférieure à $1465 \text{ m} + H_s$. H_s correspondant à la modification de la hauteur de la couche de mélange due à la topographie du site établie par les travaux de Venzac et al. (2009) au puy de Dôme (**section 1.4**).

L'attribution des couches atmosphériques selon les différentes méthodes est donnée **Figure 5.2** pour l'année 2015. L'absence de résultats aux mois de janvier et février est due au manque de données en CO, et au mois d'août, au manque de données de radon. Ces résultats montrent ainsi que pour 53% des cas, les quatre méthodes indiquent les mêmes résultats (42% du temps en condition de couche de mélange et 11% du temps en troposphère libre). Cependant, les différentes méthodes sont plus ou moins fiables selon les conditions météorologiques et instrumentales. Dans ces travaux de thèse, nous considérons que lorsque trois des quatre méthodes de détermination de la hauteur de la couche de mélange sont en accord, le résultat est fiable (soit 77% du temps en conditions de couche de mélange et 20% du temps en conditions de troposphère libre). De plus, on observe que la méthode la plus souvent en défaut est celle basée sur le radon.

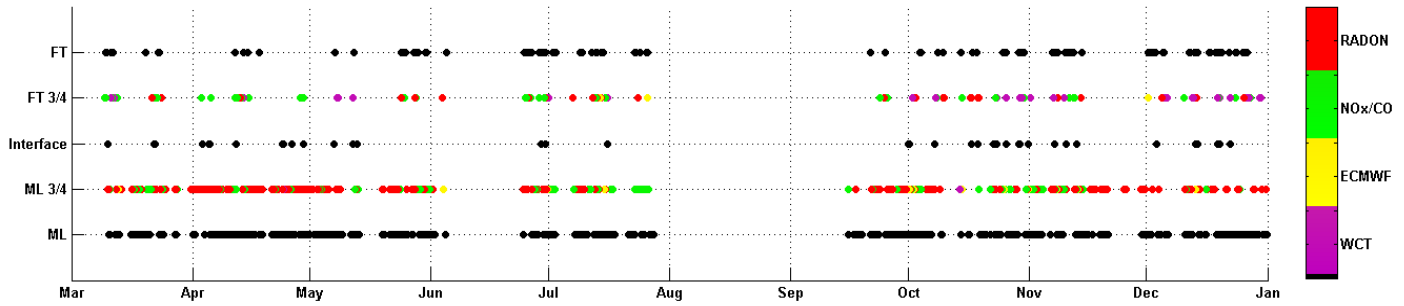


Figure 5.2 : Résultats des méthodes de détermination des conditions atmosphériques pour l'année 2015. ML : toutes les méthodes indiquent que la station de mesures se situe en condition de couche de mélange. FT : toutes les méthodes indiquent que la station mesure en condition de troposphère libre. ML 3/4 : une seule des méthodes n'indique pas que la station mesure en condition de couche de mélange. FT 3/4 : une seule des méthodes n'indique pas que la station mesure en condition de troposphère libre (la couleur indique la méthode en défaut). Interface : deux méthodes indiquent que la station mesure en condition de troposphère libre et deux autres en couche de mélange. D'après Farah et al. (en préparation).

Dans le but de déterminer la contribution des aérosols de troposphère libre au forçage radiatif des aérosols de la troposphère, il est d'abord nécessaire d'établir le rapport entre la quantité d'aérosols dans cette couche par rapport à la totalité de la colonne atmosphérique. L'utilisation des paramètres extensifs est donc nécessaire pour ce calcul. L'épaisseur optique (AOD) de la colonne atmosphérique peut être établie à partir des mesures photométriques. A partir des mesures in-situ en conditions sèches, l'AOD peut être également estimée grâce aux mesures du néphélomètre et du MAAP, et de la connaissance de la hauteur de la couche atmosphérique mesurée (**section 2.2.3.5.2**). La contribution des aérosols de troposphère libre (R_{FT}) peut donc se calculer selon:

$$R_{FT} = \frac{AOD_{FT}}{AOD_{total}} \quad (5.1)$$

Avec AOD_{FT} : l'épaisseur optique caractéristique de la troposphère libre calculée à l'aide des mesures in-situ.

Chapitre 5 : Aérosols de Troposphere Libre

AOD_{total} : l'épaisseur optique caractéristique de la totalité de la troposphère obtenue par le photomètre des Cézeaux.

Ainsi, selon les conditions atmosphériques dans lesquelles la station de mesures se situe, l' AOD_{FT} peut être établie soit à partir des mesures in-situ du coefficient d'extinction en troposphère libre :

$$AOD_{FT} = \int_{altitude\ du\ sommet\ de\ la\ couche\ de\ mélange}^{tropopause} Ext_{FT} dz \quad (5.2)$$

Avec Ext_{FT} : le coefficient d'extinction caractéristique de la troposphère libre.

Soit à partir des mesures in-situ du coefficient d'extinction en couche de mélange (Ext_{ML}) et des mesures photométriques:

$$AOD_{FT} = AOD_{photomètre} - \int_{surface}^{altitude\ du\ sommet\ de\ la\ couche\ de\ mélange} Ext_{ML} dz \quad (5.3)$$

Avantages du couplage in-situ/photomètre: Les instruments utilisés sont très largement utilisés sur la totalité du globe et apportent de fortes précisions sur les mesures.

Inconvénients de ce couplage: Des hypothèses doivent être faites sur l'homogénéité des deux couches atmosphériques, leurs épaisseurs et l'hygroscopicité des aérosols (**chapitre 3**). De plus, un minimum de 3 instruments doit être opérationnel sur la même période.

L'extinction mesurée par le lidar (Ext_{LIDAR} issue de l'inversion de Klett avec un rapport LIDAR fixe, section 2.2.3.3.) peut être intégrée de l'altitude du puy de Dôme jusqu'à une altitude où cette intégrale est égale à l'épaisseur optique mesurée par le photomètre du puy de Dôme (AOD_{PUY}) vérifiant ainsi l'équation 5.4. Cette altitude peut être considérée comme l'altitude maximale de mesures des aérosols observés par le photomètre.

$$AOD_{PUY} = \int_{Altitude\ PUY}^{Altitude\ maximale} Ext_{LIDAR} dz \quad (5.4)$$

Contrairement à l'utilisation du photomètre placé au campus des Cézeaux (420 m d'altitude), cette méthode permet de ne prendre en compte que les aérosols au-dessus de 1465 m d'altitude. Les corrections d'overlap du LIDAR ne s'appliquant qu'au maximum vers 1200 m d'altitude (**section 2.2.3.4**), cette méthode permet alors de s'abstenir de ces corrections nécessaires en basse couche pour les profils LIDAR. Néanmoins, les longueurs d'onde utilisées sont de 440 nm pour le photomètre et 355 nm pour le LIDAR, pouvant induire un biais dans le calcul.

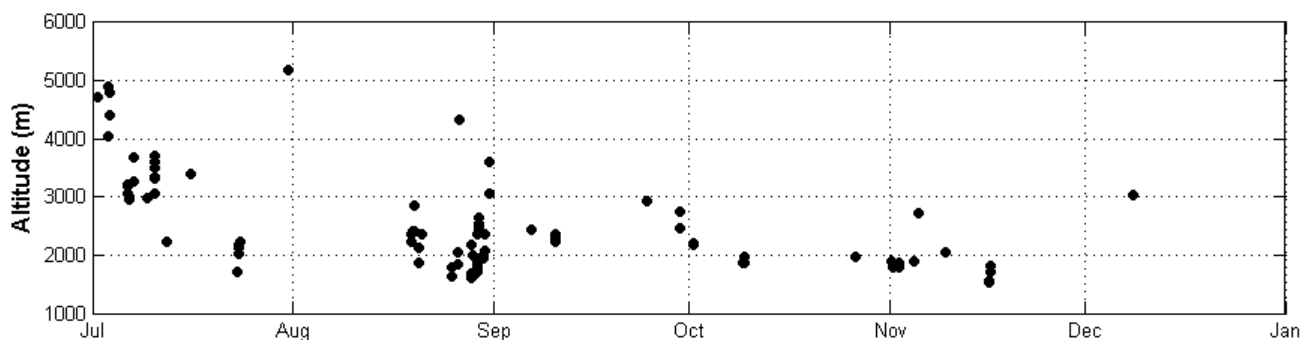


Figure 5.3 : Altitude maximale des mesures des aérosols vus par le photomètre.

Les résultats présentés à la **Figure 5.3** montrent des altitudes maximales pour les aérosols d'environ 5 km en été et de maximum 3 km en automne. En effet, en été, la convection thermique entraîne les particules d'aérosols en altitude ce qui explique cette hauteur plus élevée qu'en automne. Dans la suite de l'étude, la prise en compte de cette forte variation saisonnière de la hauteur maximale est analysée en parallèle à l'approximation d'une altitude maximale constante de 5 km (Nicolas et al., en préparation). Pour ce faire, une régression polynomiale des points de la **Figure 5.3** est réalisée pour pouvoir estimer la hauteur maximale même en absence de données simultanées du LIDAR et du photomètre du puy de Dôme.

5.1.1.2. Couplage de deux photomètres

Le photomètre n'apporte qu'une mesure intégrée sur la colonne atmosphérique sans prendre en compte sa structure verticale. Cependant, cette technique de mesures permet de prendre en compte la totalité des aérosols présents au-dessus de l'instrument. La disposition de deux instruments à des altitudes différentes permet ainsi d'établir la contribution des aérosols situés entre ces deux instruments et au dessus du plus haut des deux photomètres par rapport à la totalité de la colonne atmosphérique.

Ainsi, il est possible d'obtenir la contribution des aérosols de troposphère libre lorsque le photomètre le plus haut se situe au niveau de la hauteur de la couche de mélange. Cette méthode utilise donc également les mesures LIDAR pour obtenir la hauteur de la couche de mélange.

Chapitre 5 : Aérosols de Troposphere Libre

$$R_{FT} = \frac{AOD_{haut}}{AOD_{bas}} \quad (5.5)$$

Avec AOD_{bas} : l'épaisseur optique mesurée par le photomètre le plus bas (depuis la station CZ dans cette étude).

AOD_{haut} : l'épaisseur optique mesurée par le photomètre le plus haut (depuis la station PUY dans cette étude).

Avantages du couplage photomètre/photomètre : Permet de prendre en compte tous les aérosols présents dans l'atmosphère. Pas d'hypothèse sur l'altitude maximale de la troposphère. Pas d'inversion du signal nécessaire. Le calcul peut être réalisé à plusieurs longueurs d'onde.

Inconvénients de ce couplage : Les mesures ne sont réalisées que de jour et sans couverture nuageuse, au moment où le puy de Dôme est à l'interface ML/FT. Très peu de configurations instrumentales similaires sont recensées sur le globe.

5.1.1.3. LIDAR

Une dernière méthode utilisée dans ces travaux de thèse consiste à utiliser les profils verticaux mesurés par un LIDAR. L'inversion de Klett détaillée **section 2.2.3.3** permet d'établir les profils verticaux du coefficient de rétrodiffusion (β) des aérosols présents dans l'atmosphère. De plus, l'application d'algorithmes tels que la WCT (**section 2.2.3.5.2**) et STRAT (**section 2.2.3.5.3**) sur les profils LIDAR permettent d'établir la structure détaillée de l'atmosphère.

Cette méthode a été détaillée **section 3.1.3**. La contribution des aérosols de troposphère libre peut donc être calculée selon :

$$R_{FT} = \frac{\beta_{FT}}{\beta_{colonne}} \quad (5.6)$$

Comme indiqué dans le chapitre 4 et confirmé avec les résultats précédents, le signal aérosol devient négligeable au-delà de 5 km d'altitude (Nicolas et al., en préparation). $\beta_{colonne}$ est donc calculé à partir de l'intégrale des coefficients de rétrodiffusion LIDAR, de l'altitude du LIDAR jusqu'à 5 km, et β_{FT} est calculé de l'altitude du sommet de la couche de mélange jusqu'à 5 km d'altitude.

Avantages de la méthode LIDAR : les mesures LIDAR permettent d'obtenir des informations sur la structure de l'atmosphère. La contribution des aérosols de la troposphère libre peut être calculée pour chaque profil LIDAR (résolution temporelle de 1 min) jour et nuit. Un seul instrument est nécessaire.

Inconvénients de cette méthode : nécessité d'inverser les données LIDAR à partir d'hypothèses et d'appliquer de nombreuses corrections au signal (section 3.2.3.1).

5.1.2. Résultats

5.1.2.1. Couplage des mesures photométriques et mesures in-situ

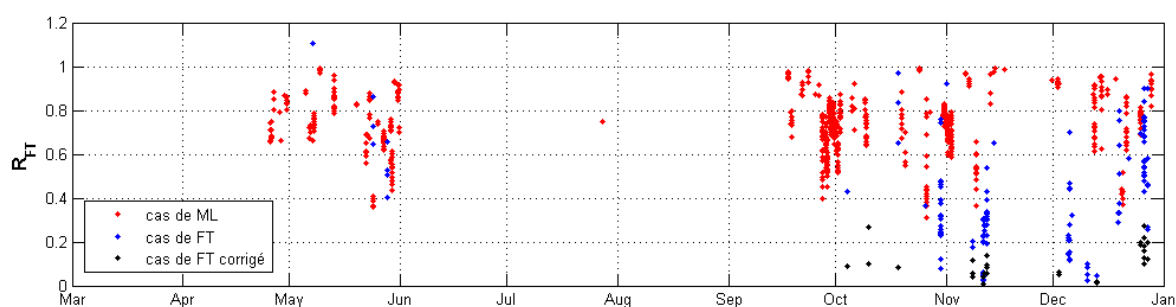


Figure 5.4 : Série temporelle de la contribution de la troposphère libre (FT ratio, R_{FT}) pour l'année 2015 selon l'équation 5.2 en bleu, 5.3 en rouge et corrigé par l'altitude maximale de présence d'aérosols en noir. Calculs réalisés à 675 nm.

La contribution des aérosols de troposphère libre à partir du couplage des mesures photométriques et des mesures in-situ depuis le site du puy de Dôme est présenté **Figure 5.4**. Les résultats de la méthode utilisant les mesures du coefficient d'extinction de troposphère libre (équation 5.2) sont représentés en bleu et ceux utilisant les cas de couche de mélange (équation 5.3) en rouge. En noir, figurent les cas de troposphère libre dont la hauteur maximale (nommée « tropopause » dans l'équation 5.2) est corrigée par celle calculée par la combinaison instrumentale photomètre/LIDAR (**Figure 5.3**), ou plus précisément sa régression polynomiale. Aucun calcul n'a pu être réalisé jusqu'au mois d'avril du fait de l'indisponibilité de la totalité de l'instrumentation nécessaire à la détermination des conditions de mesures de la station (**Figure 5.2**), et de l'absence de mesures d'au moins un instrument nécessaire au calcul du coefficient d'extinction in-situ (MAAP ou néphélomètre) (**Figure 5.4**). Néanmoins, malgré la nécessité d'un nombre important d'instruments, 796 points ont pu être analysés majoritairement au printemps et à l'automne 2015 avec cette méthode.

Ainsi, la contribution des aérosols de troposphère libre depuis la méthode de couplage des mesures in-situ avec les mesures photométriques prend des valeurs très dispersées : de 1% à 110% des mesures de la colonne atmosphérique. Les contributions les plus basses sont observées sur les mois de novembre et décembre et principalement avec la méthode FT (en bleu). Ce résultat semble logique : les phénomènes de convection étant moins importants en automne et en hiver qu'au printemps et en été, la possibilité de transport des aérosols à haute altitude est diminuée.

Du fait de l'existence d'un gradient de concentration d'aérosols sur la colonne atmosphérique, les plus basses altitudes de la troposphère libre et de la couche de mélange sont caractérisées

Chapitre 5 : Aérosols de Troposphere Libre

par des concentrations plus fortes et donc des coefficients d'extinction plus importants qu'aux plus hautes altitudes. Les mesures in-situ, à 1465 m d'altitude, sont donc sous-estimées en couche de mélange et surestimées en troposphère libre comme le montrent les résultats du **chapitre 3**. Dans les deux types de calcul utilisés (**équation 5.2** et **5.3**), la contribution des aérosols de troposphère libre est donc surévaluée. De plus, des panaches d'aérosols peuvent apparaître dans chacune des couches et ainsi influencer fortement leurs contributions.

Un cas calculé en mai 2015 par la méthode de mesures en troposphère libre (**équation 5.2**) présente une contribution des aérosols de troposphère libre supérieure à 100%. Ce résultat découle ainsi d'une trop forte surestimation du coefficient d'extinction mesuré depuis la station PUY par rapport au reste de la troposphère libre. Il est également important de remarquer que la méthode utilisant les cas de couche de mélange (en rouge) entraîne généralement des contributions des aérosols de troposphère libre plus importantes qu'avec les cas de troposphère libre (en bleu). En plus de l'hypothèse de couches d'aérosols parfaitement homogènes, la méthode utilisant les mesures in-situ en troposphère libre fait également intervenir une seconde hypothèse sur l'altitude maximale de présence d'aérosols. Ceci peut être amélioré par l'utilisation de la hauteur maximale de présence d'aérosols (en noir) calculée à partir de la combinaison photomètre/LIDAR (**section 5.1.1.1**). Cette méthode engendre des contributions optiques des aérosols de troposphère libre significativement plus faibles qu'en utilisant une hauteur maximale de 5 km (entre 1% et 27% de la totalité des aérosols de la colonne atmosphérique). Néanmoins l'écart entre les deux techniques d'attribution de la contribution des aérosols de la troposphère libre est d'autant plus important en utilisant cette correction. A ce stade de l'étude, la méthode utilisant les cas de couche de mélange (en rouge sur la **Figure 5.4**) présente les meilleures conditions (moins d'hypothèses) pour établir la contribution optique des aérosols de troposphère libre.

5.1.2.2. Couplage de deux photomètres

Contrairement aux mesures in-situ, un avantage des mesures de télédétection est la prise en compte des aérosols sur la totalité de la colonne atmosphérique. Les résultats du rapport entre le photomètre du Campus des Cézeaux (420 m) et celui de la station PUY (1465 m) sont présentés **Figure 5.5** pour les cas où le sommet de la couche de mélange se trouve au niveau de la station, c'est à dire que le photomètre de la station PUY mesure la totalité des aérosols de la troposphère libre.

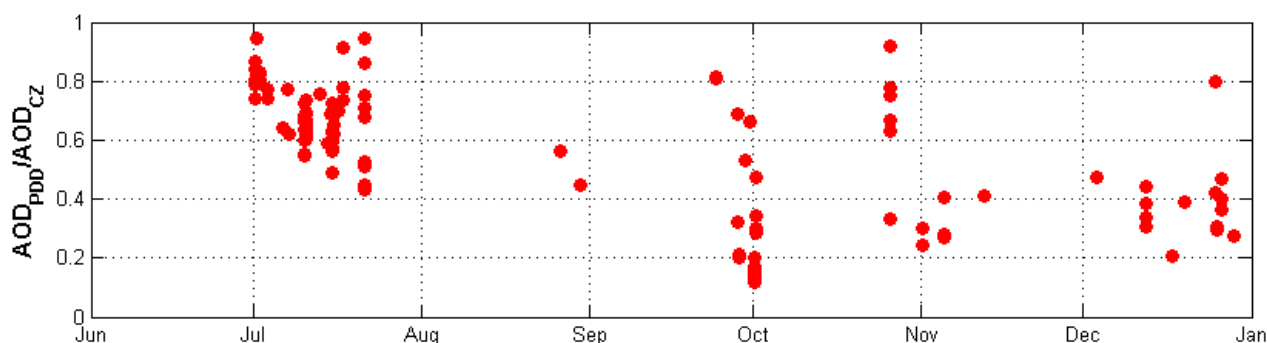


Figure 5.5 : Série temporelle de la contribution des aérosols de la troposphère libre à partir du rapport entre les mesures photométriques réalisées depuis la station PUY et celles réalisées sur le campus des Cézeaux. Calculs réalisés à 675 nm.

Comme analysé avec la méthode précédente, les contributions des aérosols de troposphère libre sont les moins importantes entre octobre et décembre (entre 17% et 40% en valeurs médianes contre environ 60% en été). Ces résultats sont plus en accord avec les cas de la méthode in-situ corrigée (en noir sur la **Figure 5.4**). De plus, sur certains cas (par exemple le 1^{er} octobre 2015), la contribution optique des aérosols de troposphère libre augmente de 12% en début de journée à 47% en milieu de journée pour les cas de mesures de la troposphère libre complète (en rouge). Cet effet peut être expliqué par l'injection de particules d'aérosols de la couche de mélange dans la troposphère libre engendrée par une forte convection thermique lors d'une journée claire et sans nuage.

Malgré le peu d'instruments nécessaires à cette méthode pour la détermination de la contribution des aérosols de troposphère libre, les conditions nécessaires à la mesure des cas de troposphère libre sont très restrictives : absence de nuage et mesures uniquement diurnes. 125 points sont alors analysés à partir de cette méthode. Récemment, des photomètres lunaires ont été développés (Barreto et al., 2013) et sont capables de mesurer l'épaisseur optique de l'atmosphère à partir de l'atténuation des rayons lumineux réfléchis par la Lune aux environs de la pleine Lune. Malgré les bons résultats de cette technique, très peu de stations en sont équipées et peu d'études ont été réalisées avec cet instrument.

Le rapport entre les deux photomètres est montré **Figure 5.6 a)** (station PUY en conditions de couche de mélange en noir, en troposphère libre en bleu et pour lesquels la station PUY est à la base de la troposphère libre en rouge). Les résultats montrent que pour les conditions de couche de mélange, les deux photomètres sont légèrement plus en accord qu'en conditions de troposphère libre : pente de 0,82 en conditions de couche de mélange contre 0,76 en conditions de troposphère libre. En effet, lorsque la couche de mélange est suffisamment développée, le photomètre de la station PUY prend en compte les particules d'aérosols de couche de mélange et les mesures de la colonne atmosphérique se rapprochent donc des mesures réalisées depuis le campus des Cézeaux. De plus, les corrélations entre les deux instruments restent très proches ($r^2=0,87$ pour les conditions ML et 0,76 en FT) ce qui confirme l'interaction entre les deux couches comme étudié **chapitre 4**. L'ordonnée à l'origine d'environ -0,02 est observée pour

Chapitre 5 : Aérosols de Troposphere Libre

chacune des conditions atmosphériques et correspond à l'incertitude sur l'AOD établie par les travaux de Dubovik et King (2000).

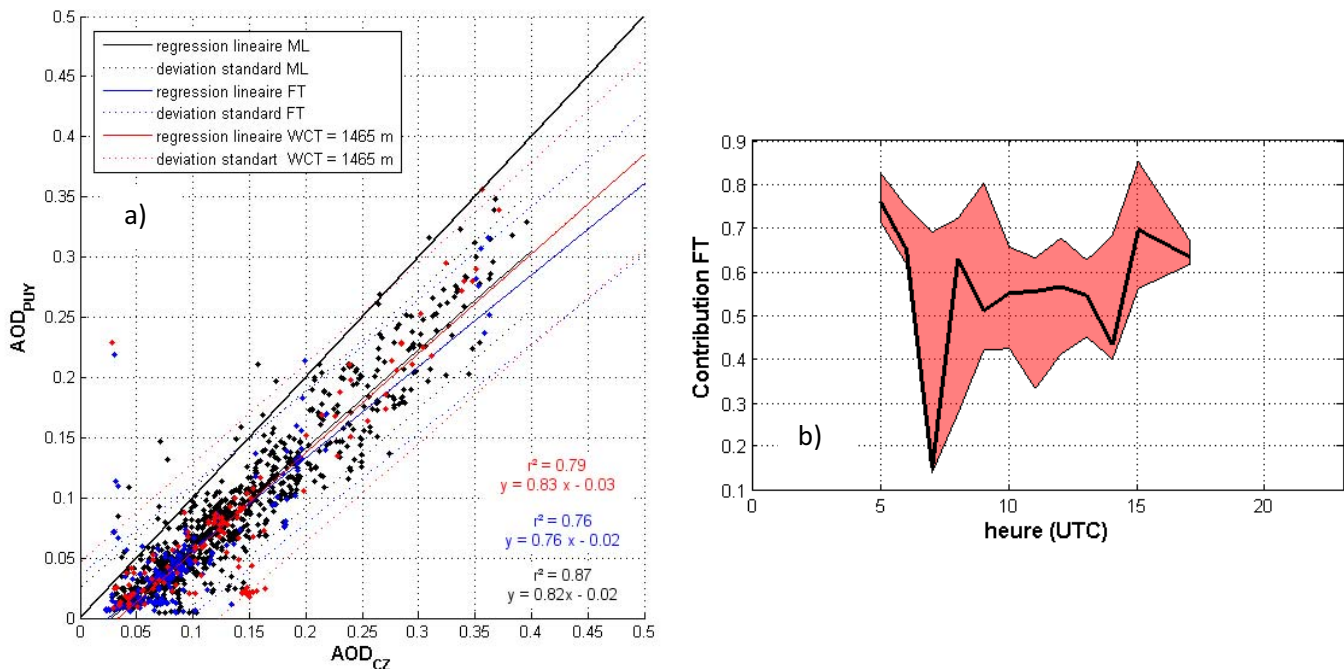


Figure 5.6 : a) Comparaison des épaisseurs optiques obtenues à partir des photomètres placés sur le campus des Cézeaux (CZ, 420 m) et sur la station du puy de Dôme, (PUY, 1465 m). Les points et régressions noirs correspondent aux conditions de couche de mélange au niveau de la station PUY, les points et régressions bleus, aux conditions de troposphère libre, et les points et régressions rouges aux cas pour lesquels la hauteur de la couche de mélange est au niveau de la station PUY (WCT = 1465m). b) Médianes horaires, 25^{ième} et 75^{ième} percentiles du rapport des épaisseurs optiques pour les cas pour lesquels WCT = 1465 m. Calculs réalisés à 675 nm.

A partir de cet important jeu de données, les variations journalières de la contribution des aérosols de troposphère libre (en rouge sur la **Figure 5.6 a)**) peuvent être observées **Figure 5.6 b)**. La contribution des aérosols de troposphère libre établie par cette méthode est en moyenne de 60% et varie entre environ 40% en milieu de journée et 80% en début et fin de journée. Une étude saisonnière permettrait également d'analyser l'effet de quantité de rayonnement sur la contribution optique des aérosols de FT. Cependant, un manque important de mesures ne permet pas d'étudier les variations saisonnières complètes de la contribution des aérosols de troposphère libre avec cette méthode.

5.1.2.3. LIDAR

Contrairement aux deux méthodes précédentes, les mesures LIDAR permettent d'obtenir une information sur la répartition des aérosols sur la colonne atmosphérique. De plus, la mesure continue du LIDAR du campus des Cézeaux depuis 2013 permet d'établir des variations journalières et saisonnières.

Une analyse saisonnière de la hauteur de la couche de mélange ainsi que de la contribution optique des aérosols de troposphère libre calculée à partir des profils LIDAR sur l'année 2015 est reportée **Figure 5.7**. Etant bien connu dans le milieu de la météorologie, la couche de mélange est généralement la plus développée en été (environ 1500 m la nuit et 2000 m la journée, en rouge) et la moins développée en hiver (environ 1400 m sur toute la journée, en bleu).

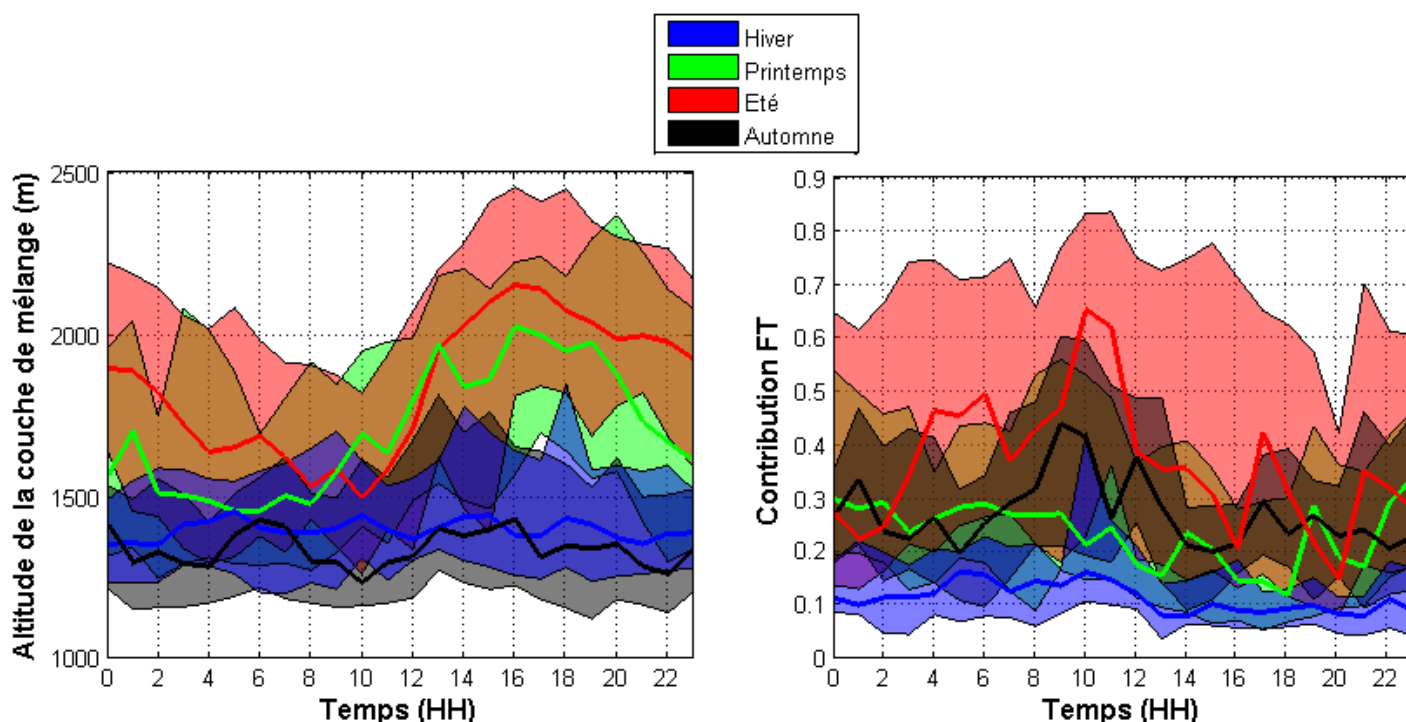


Figure 5.7 : Variations journalières et saisonnières de la hauteur de la couche de mélange (à gauche) et de la contribution optique des aérosols de la troposphère libre (à droite) à partir des mesures LIDAR réalisées depuis le campus des Cézeaux sur l'année 2015. Mesures réalisées à 355 nm.

Les variations saisonnières et journalières de la contribution des aérosols de troposphère libre par rapport à la colonne atmosphérique sont également reportées sur la **Figure 5.7**. Les résultats montrent que la contribution de la troposphère libre est la plus importante et variable en été (en moyenne d'environ 40% et jusqu'à 80%), et qu'elle est la plus faible et stable en hiver (en moyenne de 15% et variant entre 5 et 20%). Cette variabilité saisonnière est en accord avec les précédentes méthodes (environ 20% en hiver et 60% en été) ainsi que les travaux de Mattis et al. (2004). Ces derniers utilisent les données LIDAR Raman (**section 2.2.3.1**) inscrits dans le réseau européen EARLINET pour établir la contribution des aérosols de troposphère libre sur une longue période (de 2000 à 2003). Leurs résultats montrent des contributions de 2 à 88% selon les événements aérosols analysés et 17% en moyenne (à 355nm), proche des résultats obtenus dans cette étude en période hivernale.

Chapitre 5 : Aérosols de Troposphere Libre

Il est également intéressant d'observer que la contribution des aérosols de FT est plus ou moins constante tout au long de la journée pour les mois d'hiver et de printemps (entre 10 et 20% et entre 20 et 30% respectivement) alors que la variation journalière semble plus marquée pour les mois d'été et d'automne (de 20 à 40% supérieurs en journée par rapport à la nuit) malgré une forte variabilité tout au long de la journée. Ces résultats sont en contradiction avec les résultats établis par le couplage des deux photomètres pour lequel plus de variabilité est observé pendant l'hiver que pendant l'été. Ceci est principalement dû à l'important jeu de données utilisé avec la méthode LIDAR contrairement aux mesures photométriques uniquement possible de jour.

5.1.2.4. Comparaison des méthodes

La comparaison des contributions des aérosols de troposphère libre selon les trois méthodes est montrée **Figure 5.8**.

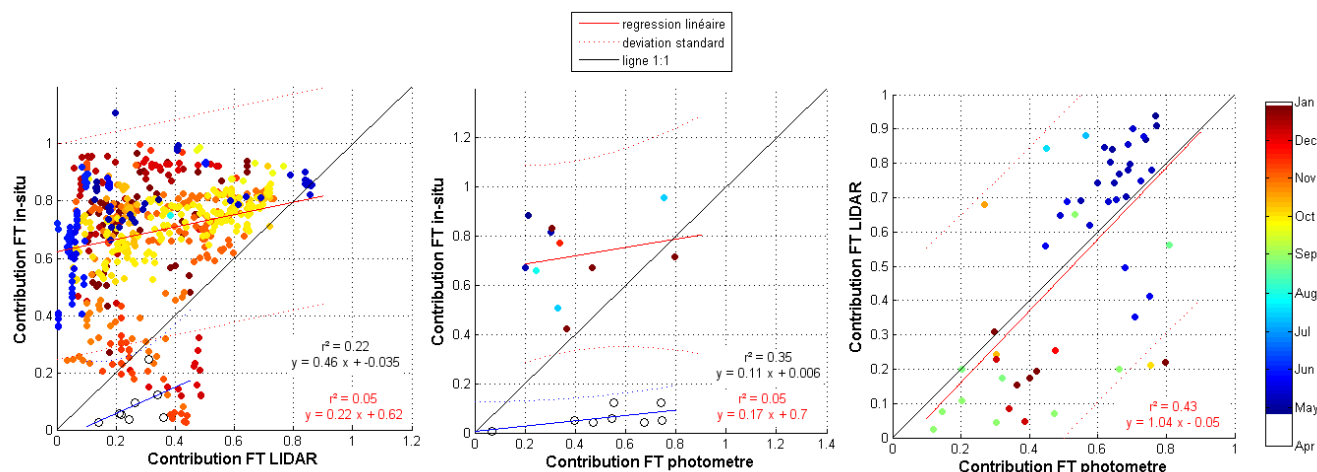


Figure 5.8 : Comparaison des contributions des aérosols de troposphère libre selon les trois méthodes de l'étude. La méthode des photomètres ne prend en compte que les cas pour lesquels la totalité de la troposphère libre est mesurée (cas en rouge sur les Figures 6.5 et 6.6). Les cercles noirs et la régression bleue présentent les résultats de la comparaison des méthodes en prenant en compte l'altitude maximale de présence d'aérosol établie section 5.1.1.1.

Pour le cas des contributions issues de la méthode in-situ et de la méthode LIDAR (figure de gauche), peu de corrélation générale est observée ($r^2=0,05$). Cependant, on observe d'avantage de corrélation entre les deux méthodes pour des périodes plus précises. En ne prenant en compte que les mesures fin septembre (en jaune sur la figure), la corrélation entre les deux méthodes est de $r^2=0,48$ mais un écart important entre les deux méthodes reste présent. En effet, pour la plupart des mesures, la méthode utilisant l'instrumentation in-situ surestime la contribution des aérosols de troposphère libre par rapport à la méthode LIDAR. Cette dernière observation est également vérifiée pour la comparaison entre la méthode in-situ et la méthode utilisant deux photomètres bien que seuls 11 points de comparaison ont pu être analysés au vu du nombre d'instruments qui doivent être opérationnels de façon concomitante. En effet, les résultats du **chapitre 3** nous ont permis de mettre en évidence le fait que la station de mesures in-situ mesure

soit dans la partie haute de la couche de mélange, soit dans la partie basse de la troposphère libre. Du fait d'un gradient vertical de la concentration des aérosols dans l'atmosphère (également démontré au **chapitre 3**), les contributions des aérosols de troposphère libre par rapport à la totalité de la colonne atmosphérique sont alors surestimées.

L'application de la hauteur maximale des mesures aérosols dont la méthode est décrite section **5.1.1.1**, permet une meilleure définition de la troposphère libre à travers les mesures in-situ. En effet, leurs corrélations avec les autres méthodes sont significativement améliorées (de 0,05 à 0,22 par rapport à la méthode LIDAR, et de 0,05 à 0,35 avec la méthode photométrique). Cependant, cette méthode semble entraîner une sous-estimation importante de la contribution des aérosols de troposphère libre par les mesures in-situ. De plus, très peu de points sont analysés suite à cette correction du fait de la nécessité d'un grand nombre d'instruments et des conditions météorologiques particulières (pas de nuage, seulement cas pour lesquels la hauteur de couche de mélange se situe au niveau du puy de Dôme,...).

Enfin, la figure de droite présente la comparaison des contributions selon les méthodes par mesures LIDAR et photométriques. Les résultats montrent une meilleure corrélation des méthodes avec un coefficient de corrélation de 0,43 et une pente proche de 1. Cependant, selon la saison, le rapport entre les deux méthodes est différent : au printemps (mai, juin) les mesures LIDAR surestiment la contribution des aérosols de troposphère libre par rapport aux mesures photométriques et inversement à l'automne (novembre, décembre). Cette tendance n'étant pas corrélée avec la hauteur de couche de mélange (sélection des cas pour lesquels le sommet de la couche de mélange se trouve au niveau de la station de mesures in-situ), ce résultat peut être lié à l'interprétation des mesures aérosols par télédétection selon la saison. En effet, différents phénomènes peuvent être notés selon les saisons et influencer les mesures comme l'alignement entre le laser et le télescope du LIDAR selon la température extérieure, la pollution lumineuse introduite par les rayons du soleil dans le télescope, l'angle solaire pour la visée du photomètre,... .

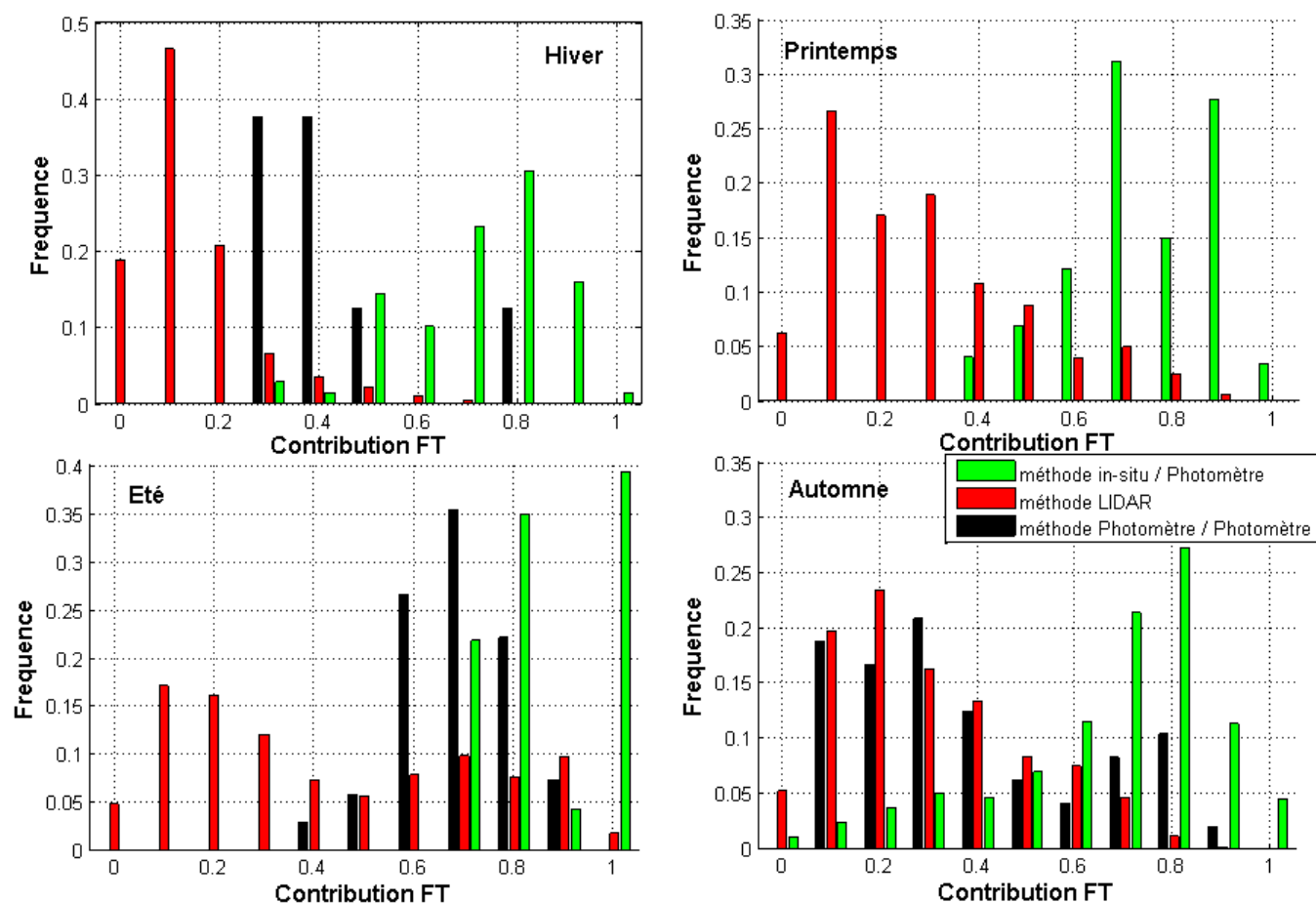


Figure 5.9 : Contribution des aérosols de troposphère libre sur toute la colonne atmosphérique pour chaque saison et à partir de chacune des méthodes. En vert, la méthode du couplage in-situ/photomètre, en noir, la méthode du couplage des deux photomètres, et en rouge, la méthode LIDAR.

La **Figure 5.9** montre plus clairement les contributions des aérosols de troposphère libre déterminées par chaque méthode en fonction de la saison. En vert, figure les résultats de la méthode du couplage in-situ et photomètre, en noir, la méthode du couplage des deux photomètres et en rouge la méthode LIDAR. Pour chaque saison, les mesures in-situ apportent la même gamme de contributions des aérosols de troposphère libre avec en moyenne 80% de la globalité des aérosols de la colonne. Les mesures LIDAR montrent également des contributions moyennes stables (environ 20%) excepté en été où des contributions autour de 80% sont nettement mesurées. La méthode des deux photomètres donne, quant à elle, des contributions clairement différentes selon la saison : environ 40% en hiver, 70% en été, et deux contributions dominantes en automne (30% et 80%). Aucune mesure n'a été réalisée au printemps à partir de cette méthode. Cette saisonnalité peut être expliquée par l'entraînement des aérosols en haute atmosphère favorisé en été par rapport à l'hiver où l'atmosphère est plus stable. Néanmoins, très peu de mesures ont été réalisées en hiver et au printemps avec cette dernière méthode.

Afin d'étudier l'impact radiatif de l'aérosol avec précision, il est nécessaire de mesurer chacune des propriétés optiques de l'aérosol (épaisseur optique, albédo de simple diffusion, coefficient d'angström et coefficient d'asymétrie). Les caractéristiques du LIDAR utilisé dans cette étude (355 nm) ne permettant pas d'obtenir toutes ces propriétés, nous comparons donc les mesures in-situ et les mesures photométriques dans la suite de ces travaux de thèse afin d'obtenir une meilleure caractérisation de l'aérosol sur la colonne atmosphérique.

5.2. Configuration du modèle SBDART

Afin d'établir le forçage radiatif (ΔF , **section 1.3**) propre à l'aérosol, il est nécessaire, avant tout, de définir au mieux les facteurs influençant les propriétés radiatives de l'atmosphère et ainsi l'atmosphère de référence (sans aérosol). Dans cette partie, le forçage radiatif (ou effet radiatif direct, **section 1.3.1**) est calculé à la surface de la Terre afin de correspondre aux mesures réalisées par le pyranomètre (**section 2.2.2**) et dans les courtes longueurs d'onde car d'après Mishra et al. (2014), ce sont les longueurs d'onde les plus impactées par les aérosols.

Différentes atmosphères standard sont définies au sein du modèle de transfert radiatif SBDART et peuvent donc être utilisées pour caractériser les profils de pression, de température, d'humidité et d'ozone. L'utilisation de modèles météorologiques comme ECMWF peut également fournir ces paramètres. Ces méthodes de définition de l'atmosphère ont donc été testées dans cette étude pour établir les paramètres de référence pour la station PUY telles que la teneur en gaz traces (CO_2 , CH_4 , N_2O et CO) et le type de surface (soit l'albédo de surface) sont définis (**Tableau 5.3**).

Paramètre	Entrée SBDART	Valeurs	Signification
Epaisseur optique	TBAER	0	Pas d'aérosol
Concentration en dioxyde de carbone	XCO2	360 ppmv	
Concentration en méthane	XCH4	1,74 ppmv	
Concentration en protoxyde d'azote	XN2O	0,320 ppmv	
Concentration en monoxyde de carbone	XCO	0,15 ppmv	
Type de surface	ISALB	6 5 1	végétation poussière minérale neige

Tableau 5.3 : Configuration de l'atmosphère de référence (sans aérosol) suivant les acronymes utilisés par le modèle de transfert radiatif SBDART pour les moyennes latitudes.

Pour le cas du 30 septembre 2015, présentant un ciel clair sans nuage, les rayonnements globaux perçus à la surface mesurés et issus de différentes modélisations SBDART (pour un domaine spectral entre 0,285 et 2,8 μm) sont représentés **Figure 5.10** :

Chapitre 5 : Aérosols de Troposphere Libre

- Rayonnement global sans aérosols et atmosphère standard SBDART (pointillés bleus)
- Rayonnement global avec aérosols et atmosphère standard SBDART (pointillés rouges)
- Rayonnement global sans aérosols et atmosphère définie par ECMWF (trait plein bleu)
- Rayonnement global avec aérosols et atmosphère définie par ECMWF (trait plein rouge)

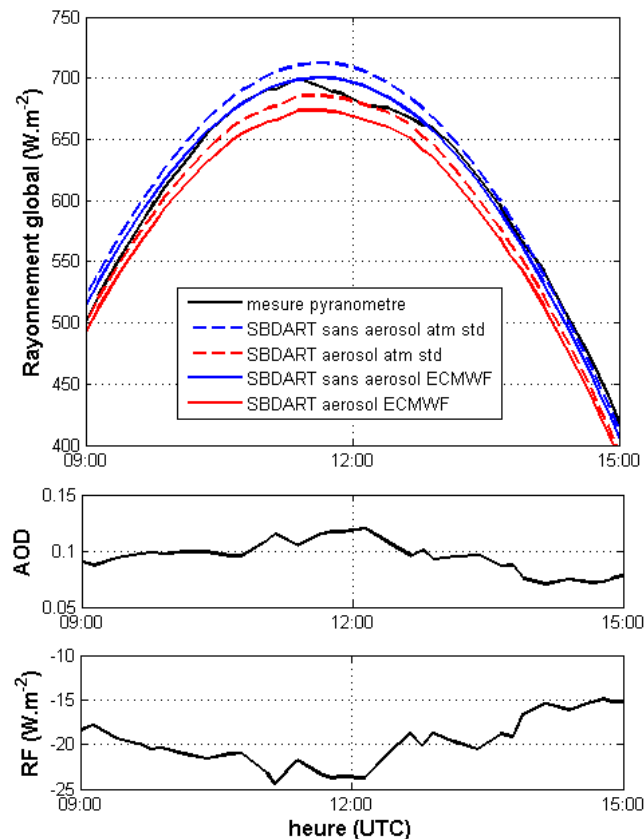


Figure 5.10: De haut en bas : Rayonnement global mesuré par un pyranomètre et modélisé avec SBDART à la surface du globe entre 0,285 et 2,8 μm , épaisseur optique mesurée par un photomètre (à 675 nm) et forçage radiatif correspondant pour la journée du 30 septembre 2015 au niveau du campus des Cézeaux (CZ, 420 m).

Afin de prendre en compte les aérosols de la colonne atmosphérique, chacune des propriétés optiques définissant les aérosols (épaisseur optique, albedo de simple diffusion, coefficient d'angström et coefficient d'asymétrie) ont été mesurées par le photomètre (level 2 AERONET) du campus des Cézeaux et intégrées dans le modèle de transfert radiatif. Dans l'exemple du 30 septembre 2015, la **Figure 5.10** présente, au centre, la série temporelle de l'épaisseur optique et en bas, le forçage radiatif ainsi calculé.

Une première analyse des résultats montre que la définition des paramètres atmosphériques de base (température, pression, humidité et profils d'ozone) modifie significativement la représentation du rayonnement global perçue au niveau de la surface. En effet, selon ces résultats, la définition de l'atmosphère (avec aérosols, en rouge) la plus proche de la mesure du

pyranomètre est celle établie dans les paramètres de base du modèle SBDART (en pointillés rouge) (en moyenne 8 W.m^{-2} de différence avec la mesure du pyranomètre contre en moyenne 16 W.m^{-2} avec les profils établis par ECMWF (trait plein rouge)). La différence restante peut néanmoins être expliquée par de faibles variations des propriétés optiques des aérosols alors étudiées par des tests de sensibilité **section 5.3**. Le modèle ECMWF ne permettant donc pas de définir avec précision la totalité des profils atmosphériques des paramètres météorologiques (altitude maximale de 35km environ), les profils standards de l'atmosphère de moyennes latitudes prédéfinis dans le modèle SBDART sont donc utilisés dans la suite de cette section prenant en compte les constituants de l'atmosphère jusqu'à 100 km d'altitude environ.

De plus, en accord avec les précédentes études utilisant le modèle de transfert radiatif SBDART pour l'étude des aérosols (Flynn et al., n.d.; Obregón et al., 2015; Ricchiazzi and Gautier, n.d.), le rayonnement global est légèrement sous-estimé par le modèle (en pointillés et ligne continue rouge) par rapport aux mesures du pyranomètre (en noir). Ceci peut être dû à la fois à l'incertitude sur les mesures du pyranomètre (environ 15 W.m^{-2} selon le constructeur) et aux incertitudes issues des paramètres aérosols utilisés dans le modèle. L'influence de ces derniers va être étudiée dans la section suivante.

5.3. Etude de sensibilité

Chaque paramètre de l'atmosphère établi dans cette étude n'influence pas de la même manière le calcul du transfert radiatif. Un test de sensibilité a donc été réalisé dans ces travaux sur les paramètres définissant l'aérosol et les gaz traces. Les valeurs de chaque paramètre d'entrée du modèle sont ainsi testées sur les intervalles de sensibilité définis **Tableau 5.4** (entre 10 et 20 valeurs par paramètres) et le résultat comparé par rapport à l'atmosphère de référence (valeurs entre parenthèses) pour chacune d'entre elles. La **Figure 5.11** de gauche présente l'influence des paramètres aérosols (épaisseur optique (AOD), albédo de simple diffusion (SSA), coefficient d'asymétrie (ASY) et coefficient d'angström (ANG)) et la **Figure 5.11** de droite, l'influence des concentrations en gaz trace (dioxyde de carbone CO_2 , méthane CH_4 , protoxyde d'azote N_2O et monoxyde de carbone CO) sur le calcul du transfert radiatif ΔF à courte longueur d'onde. Les intervalles testés sont pris à l'extrême, avec la même amplitude que celle des travaux de Myhre et al. (1998), afin de mieux quantifier l'effet du paramètre sur le forçage radiatif.

Chapitre 5 : Aérosols de Troposphere Libre

Paramètre	Intervalle
AOD (0,2)	[0 – 2]
SSA (0,9)	[0,5 – 1]
ANG (2)	[0,5 – 3]
ASY(0,6)	[0,3 – 0,8]
CO ₂ (360 ppmv)	[300 – 1000]
CH ₄ (1,74 ppmv)	[1 – 5]
N ₂ O (0,320 ppmv)	[0,2 – 0,5]
CO (0,15 ppmv)	[0,06 – 0,3]

Tableau 5.4 : Intervalle de sensibilité pour chacun des paramètres atmosphériques testé et valeurs pour l'atmosphère de référence (entre parenthèses).

Les résultats montrent d'importantes inégalités dans l'impact des différents paramètres sur le calcul du forçage radiatif selon le modèle SBDART. Le forçage radiatif de référence est de $-32,4 \text{ W.m}^{-2}$ calculé à partir des paramètres de bases entre parenthèses dans le **Tableau 5.4** et pour le 1^{er} janvier à 12h. L'épaisseur optique est le paramètre ayant le plus d'impact sur le forçage radiatif (de $+35$ à -100 W.m^{-2} pour des valeurs d'AOD de 0 à 2). L'albédo de simple diffusion impacte également de façon significative le calcul du forçage radiatif (de $+10$ à -30 W.m^{-2} pour des valeurs de 0,5 à 1). Les coefficients d'angström et d'asymétrie ont moins d'impact avec des valeurs de $+9$ à -8 W.m^{-2} .

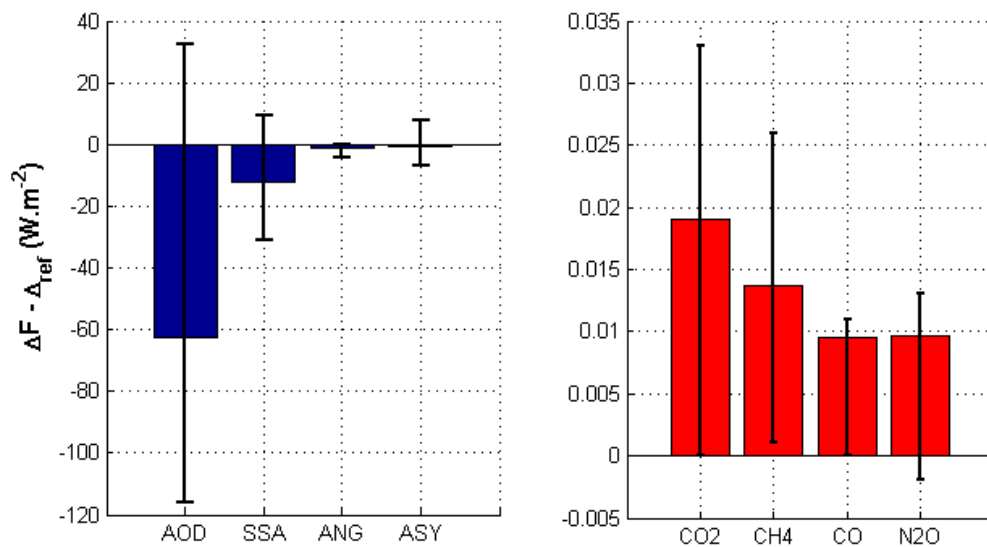


Figure 5.11 : Différences moyennes, maximales et minimales entre le forçage radiatif de référence ΔF_{ref} et le forçage radiatif dû aux aérosols en faisant varier chaque paramètre étudié **Tableau 5.4**. A gauche, figurent les effets des paramètres aérosols et à droite ceux des gaz traces. En bleu, les effets négatifs sur le forçage radiatif de référence et en rouge les effets positifs.

Contrairement aux paramètres optiques des aérosols, les modifications des concentrations en gaz traces par rapport aux concentrations de référence, augmentent les valeurs du forçage radiatif. Les résultats montrent que le dioxyde de carbone et le méthane, importants gaz à effet de serre, présentent le plus d'impact sur le calcul du forçage radiatif (jusqu'à 0,034 et 0,025 W.m^{-2} respectivement). Cependant, ces effets sont très faibles par rapport aux effets des propriétés optiques des aérosols et par rapport aux incertitudes de la mesure par pyranomètre (environ 15 W.m^{-2}). Les travaux de Myhre et al. (1998) ont établi à partir de trois modèles différents des forçages radiatifs propres aux gaz traces beaucoup plus importants (2 ordres de grandeur) et avec les mêmes amplitudes de concentrations d'aérosols. Dans leurs études, les auteurs s'intéressent à l'impact des constituants gazeux de l'atmosphère sur la globalité de la gamme spectrale du rayonnement solaire (de l'UV jusqu'à l'infrarouge). Dans cette étude, seules les courtes longueurs d'onde sont étudiées (visible et proche infrarouge, entre 0,280 et 2,8 μm) alors que les gaz traces absorbent davantage dans les longueurs d'ondes plus élevées (infrarouge thermique). Dans la suite de l'étude, les concentrations en gaz traces de référence sont gardées pour chaque calcul de forçage radiatif malgré leur faible implication dans les calculs.

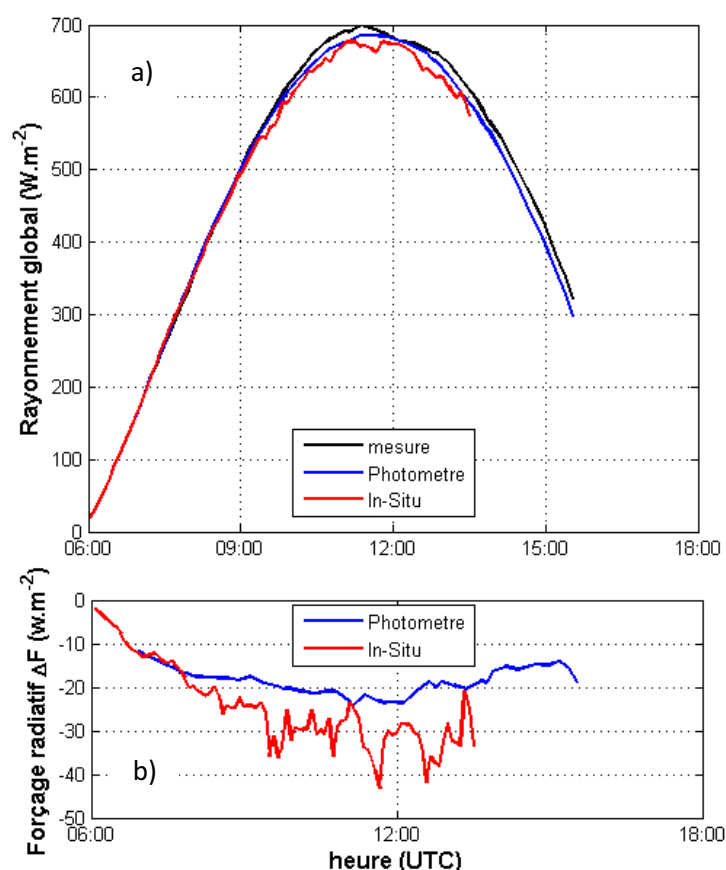


Figure 5.12 : a) Rayonnement global de surface mesuré par un pyranomètre en noir et établi à partir du modèle SBDART et des mesures photométriques (en bleu) ou des mesures in-situ (en rouge). b) forçage radiatif issu des deux méthodes pour la journée du 30 Septembre 2015.

Chapitre 5 : Aérosols de Troposphere Libre

Il est également intéressant d'analyser les calculs du forçage radiatif en fonction du jeu de données utilisé. Les caractéristiques du LIDAR utilisé dans cette étude ne permettant pas d'établir toutes les propriétés optiques de l'aérosol nécessaires au calcul du forçage radiatif, les utilisations des mesures photométriques et des mesures in-situ sont comparées. La **Figure 5.12** illustre le rayonnement global au niveau de la surface du globe ainsi que le forçage radiatif dans les courtes longueurs d'onde pour la journée du 30 septembre 2015 et selon les mesures du photomètre de la station CZ (en bleu) et des mesures in-situ de la station PUY (en rouge). D'après les résultats de l'étude sur la comparaison instrumentale (**Chapitre 3**), les mesures in-situ de la station PUY sont assez bien représentatives de la colonne atmosphérique. Ainsi, il est considéré ici que les mesures in-situ représentent une moyenne de la colonne d'aérosols. L'extinction mesurée in-situ est ainsi intégrée de 420 m à 5000m d'altitude afin d'obtenir l'épaisseur optique de la colonne atmosphérique.

Les deux techniques de mesures indiquent un rayonnement modélisé similaire soit seulement environ 2% de différence avec la mesure du pyranomètre. Cette différence est plus marquée pour le rayonnement issu du calcul à partir des mesures in-situ (11 W.m^{-2} en moyenne) que pour celui issu des mesures photométriques (8 W.m^{-2} en moyenne). Dans la suite de l'étude, les calculs du forçage radiatif propre à l'aérosol sont donc réalisés à partir des propriétés optiques de l'aérosol mesurées par le photomètre.

5.4. Variations du forçage radiatif des aérosols au puy de Dôme

5.4.1. Colonne atmosphérique totale

Les variations saisonnières de l'épaisseur optique et du forçage radiatif des aérosols depuis les mesures du photomètre installé au niveau du Campus des Cézeaux (420 m d'altitude) pour l'année 2015 sont présentées **Figure 5.13**.

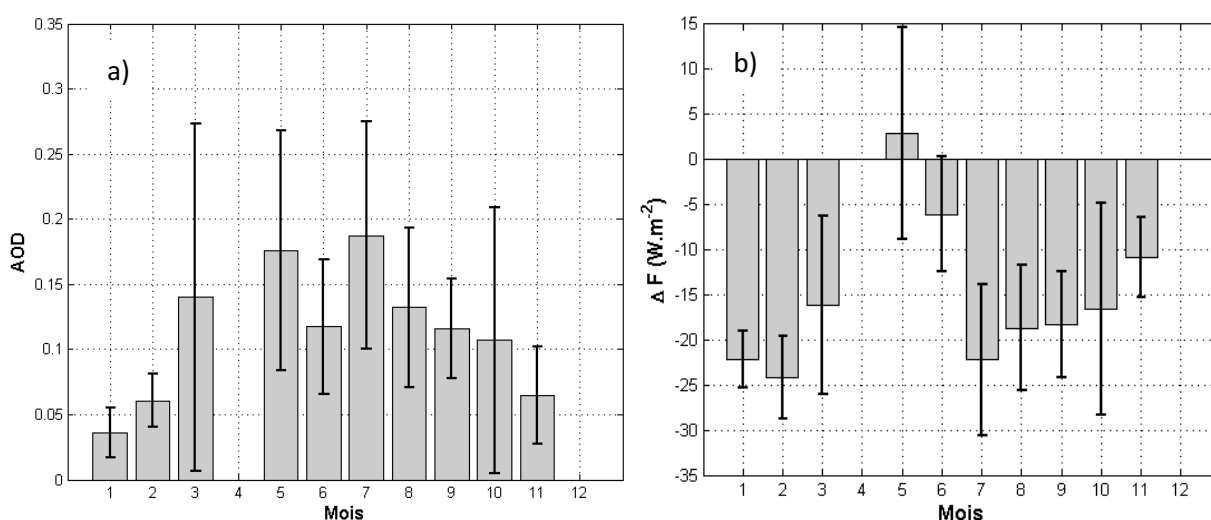


Figure 5.13 : Médiannes saisonnières, percentiles 25 et percentiles 75 de a) l'AOD et b) du forçage radiatif propre à l'aérosol de la totalité de la colonne atmosphérique sur l'année 2015.

Les résultats montrent une forte variation saisonnière du forçage radiatif des aérosols de la totalité de la colonne atmosphérique. En effet, un fort impact des aérosols est observé en été avec une valeur médiane de -22 W.m^{-2} . Ce résultat peut être relié à l'augmentation de la quantité d'aérosols dans l'atmosphère directement lié à l'augmentation de l'AOD lors de cette période ($\text{AOD} > 0,10$). L'impact radiatif des aérosols est également très important en hiver avec une médiane de -24 W.m^{-2} . Hors, cette observation n'étant pas reliée à la quantité d'aérosols dans l'atmosphère ($\text{AOD} < 0,10$), la nature des aérosols présents dans l'atmosphère peut alors expliquer principalement cet effet. En effet, les travaux de Satheesh et Moorthy (2005) mettent en évidence l'impact radiatif des aérosols naturels en fonction de leur nature. Regroupant des résultats provenant de divers études de forçage radiatif des aérosols naturels, les auteurs montrent que les sels marins présentent l'impact le plus important avec en moyenne $-3,5 \text{ W.m}^{-2}$ au sommet de l'atmosphère et que les particules de carbone suie (ou Black Carbon, BC en anglais) ont un impact radiatif positif sur le climat contrairement aux autres types d'aérosols. Ce dernier résultat peut alors expliquer le forçage radiatif médian positif au mois de mai.

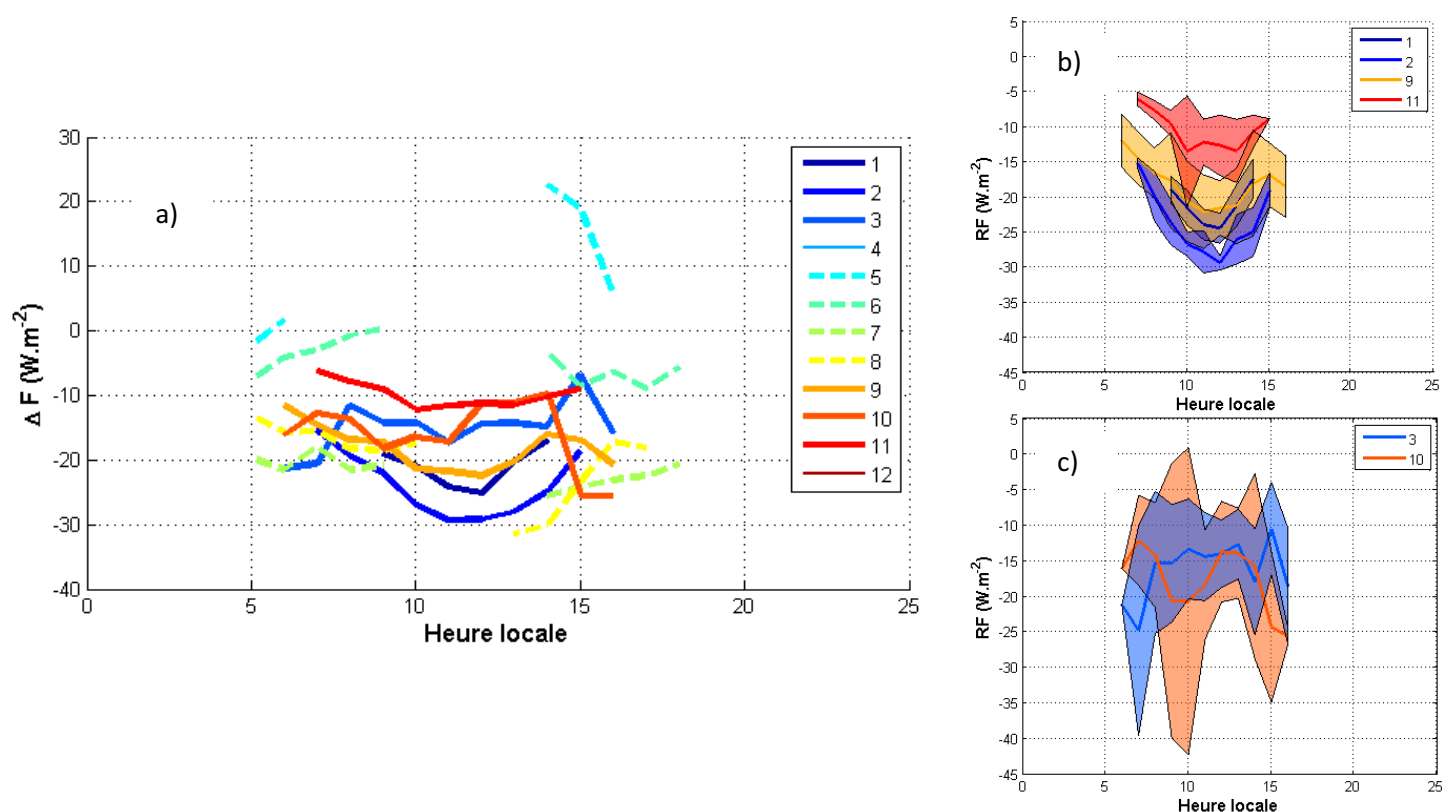


Figure 5.14 : a) Moyennes journalières du forçage radiatif des aérosols de la totalité de la colonne atmosphérique pour chaque mois de l'année 2015. Moyennes et écarts types présentant b) un forçage moins important en début et en fin de journée ou c) de fortes variabilités.

Cependant, l'analyse des variations journalières du forçage radiatif des aérosols pour chaque mois montre que de nombreuses données sont manquantes pour les mois d'été (**Figure 5.14 a**). En effet, à partir du mois de mai jusqu'au mois d'août, un manque important de données

Chapitre 5 : Aérosols de Troposphere Libre

majoritairement en milieu de journée (entre 9h et 14h) peut être observé. Ceci est principalement dû à l'absence de données inversées du photomètre (albédo de simple diffusion et coefficient d'asymétrie) causée par un été très nuageux ou à des erreurs instrumentales (blocage des câbles) pendant cette période. |

En ne prenant en compte que les mois pour lesquels la totalité des paramètres optiques nécessaires au calcul du forçage radiatif est disponible sur toute la journée, les **Figure 5.14 b)** et c) montrent deux types de variations journalières. Malgré l'impossibilité d'obtenir un forçage radiatif des aérosols de nuit en utilisant les mesures photométriques, les moyennes horaires montrent des variations journalières marquées pour les mois de janvier, février, septembre et novembre avec un effet refroidissant plus marqué en milieu de journée (de -5 à -15 W.m^{-2} le matin et le soir contre entre -10 et -30 W.m^{-2} en milieu de journée). Pour les mois de mars et d'octobre, la variation du forçage radiatif est plus importante tout au long de la journée avec des valeurs de -42 à +2 W.m^{-2} . Ces effets sont en accord avec les effets déterminés en moyenne lors de la campagne ChArMEx/ADRIMED (Aerosol Direct Radiative Impact on the regional climate in the MEDiterranean) à partir de l'utilisation des mesures photométriques d'AERONET et du modèle de transfert radiatif GAME (Dubuisson et al., 2004) au-dessus du bassin Méditerranéen en été 2013 (entre -10 et -20 W.m^{-2}) et également modélisés sur le continent européen (Mallet et al., 2016). Leurs travaux montrent également qu'à partir d'un mois de mesures, les forçages radiatifs établis à partir des différentes stations AERONET, sont très variables avec un maximum d'effet de refroidissement en milieu de journée (entre -5 W.m^{-2} et -70 W.m^{-2}).

5.4.2. Troposphère libre

Pour les aérosols de la troposphère libre, les forçages radiatifs médians pour chaque saison sont représentés **Figure 5.15** en bleu. Ces forçages sont calculés à partir des propriétés des aérosols de troposphère libre établies à partir des mesures depuis le photomètre de la station PUY et introduits dans le modèle de transfert radiatif SBDART. Très peu de points sont utilisés dans cette étude du fait des conditions de mesures particulières nécessaires (hauteur de la couche de mélange au niveau du sommet du Puy de Dôme, pas de nuage, inversion photométrique possible), soit 29 points de mesures au total. La majorité des points de mesures sont caractéristiques de l'automne.

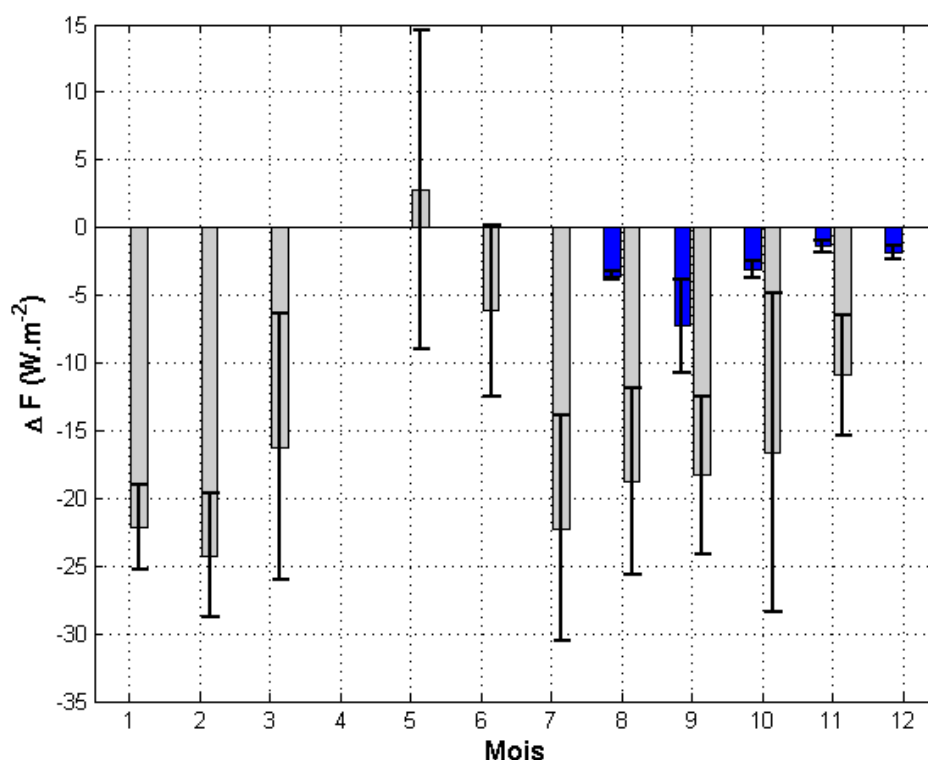


Figure 5.15 : Moyenne mensuelle du forçage radiatif des aérosols de troposphère libre en bleu et de la totalité de la colonne atmosphérique en gris.

Pour les quelques mois sur lesquels l'étude est possible (d'août à novembre), les aérosols de troposphère libre présentent une part conséquente d'un point de vu radiatif. Ainsi, ces aérosols de haute troposphère contribuent entre 13 et 40% du forçage radiatif moyen des aérosols de la globalité de la colonne atmosphérique. Le mois de novembre présente la période pour laquelle la part des aérosols en troposphère libre est la moins importante (13%) et le mois de septembre, le mois présentant la plus forte contribution (40%). Néanmoins, le mois d'août ne permettant pas de calculer le forçage radiatif des aérosols sur la totalité de la journée, les résultats de cette période ne sont donc pas pris en compte. Comme montré dans la **Figure 5.13 a)**, la colonne atmosphérique est moins chargée en aérosols en hiver qu'en été, ce qui est également observé en troposphère libre. Ceci peut alors expliquer les plus faibles valeurs du forçage radiatif de troposphère libre de cette étude par rapport à l'étude des mesures photométriques de (Garcia et al., 2012) depuis deux stations AERONET d'altitude (Izana, au large du Maroc, et Mauna Loa, au cœur de l'océan Pacifique) sur une période minimum de 2 ans ($-10 W.m^{-2}$).

Une étude plus conséquente sur une année entière permettrait alors d'étudier la variation saisonnière des propriétés radiatives des aérosols de troposphère libre ainsi que l'impact de leurs origines.

Chapitre 5 : Aérosols de Troposphere Libre

Conclusions du chapitre

Les résultats de ce chapitre mettent en évidence les contributions significatives des aérosols de troposphère libre sur les caractéristiques optiques et radiatives de l'atmosphère dans la région du Puy de Dôme.

Malgré des contributions optiques très dispersées, les différentes méthodes instrumentales utilisées dans cette étude indiquent toutes que les aérosols de troposphère libre contribuent fortement à la totalité des aérosols de la colonne atmosphérique en été (jusqu'à 80%) et nettement moins en hiver (entre 5 et 40%). L'important jeu de données, notamment des mesures LIDAR, a également permis d'étudier les variations journalières de la contribution des aérosols de troposphère libre. Une contribution moyenne de 40% est observée en milieu de journée à partir des méthodes par télédétection principalement en automne. Les mesures LIDAR permettent, de plus, de montrer que la variation journalière est d'autant plus marquée en été qu'en hiver avec des plus faibles contributions la nuit. Alors que les méthodes par télédétection (photométrie et LIDAR) donnent des résultats similaires, les mesures in-situ semblent surestimer la contribution optique des aérosols de troposphère libre. Cette surestimation pourrait être liée à la présence d'un gradient de concentrations d'aérosol au sein de la troposphère libre. L'application d'une hauteur maximale de la présence d'aérosols dans l'atmosphère calculée à partir de la combinaison LIDAR / photomètre (plutôt que fixée à 5 km d'altitude) permet de réduire la surestimation de la contribution de la troposphère libre par la méthode in-situ, mais reste une source d'incertitude majeure quant à l'utilisation de cette méthode.

L'étude de sensibilité du modèle de transfert radiatif SBDART a permis d'établir la meilleure méthode pouvant caractériser l'état de la colonne atmosphérique pour cette configuration géographique. Malgré une sous-estimation globale du rayonnement modélisé par rapport aux mesures, il a ainsi été montré que la définition complète de la colonne atmosphérique (de 0 à 100 km d'altitude) d'un point de vue composition chimique et paramètres météorologiques, est nécessaire pour reproduire au mieux la quantité de rayonnement perçu à la surface de la Terre. Les tests de sensibilités montrent également que l'épaisseur optique et l'albédo de simple diffusion sont les paramètres des aérosols présentant les plus conséquentes influences sur le calcul du forçage radiatif. Les mesures photométriques ont été utilisées pour déterminer le forçage radiatif des aérosols de la colonne atmosphérique et des aérosols de la troposphère libre pour chaque saison.

Les forçages radiatifs des aérosols de la colonne atmosphérique montrent de fortes variations saisonnières avec des forçages médians jusqu'à -24 W.m^{-2} à la fin de l'hiver et en plein été, et pouvant être positifs au printemps. Ces observations sont à la fois liées aux fortes épaisseurs optiques des aérosols de troposphère libre en été mais également à la nature des particules. Les variations journalières indiquent, de plus, des effets de refroidissement plus marqués en milieu de journée dus au transport des aérosols par convection. Les résultats montrent que le forçage

radiatif des aérosols de troposphère libre est entre -1 et -10 W.m^{-2} sur la courte période de l'étude, soit une contribution radiative non négligeable (13 à 40%) qui mérite d'être considérée.

La méthode utilisant une combinaison de deux photomètres présente les meilleurs atouts pour étudier le forçage radiatif des aérosols de la colonne atmosphérique (intégration de la globalité des propriétés optiques nécessaires au calcul du forçage radiatif sur toute la colonne). Néanmoins, le manque de données dû aux problèmes instrumentaux et aux conditions météorologiques exigeantes pour l'inversion des données, ne permet pas d'étudier pleinement les variations journalières et saisonnières de la contribution radiative des aérosols de troposphère libre. D'autre part, un plus large jeu de données des mesures photométriques, in-situ et mesures LIDAR, serait nécessaire à une étude selon l'origine des masses d'air. Concernant les mesures in-situ, la prise en compte de la structure de l'atmosphère ou de l'hygroscopicité pour leur utilisation dans ce type d'étude est à améliorer (répartition des aérosols avec l'altitude (y compris dans les basses couches), utilisation de la paramétrisation de l'hygroscopicité des aérosols selon le type de masse d'air, utilisation d'un néphélomètre humide). L'utilisation d'un LIDAR à plusieurs longueurs d'onde permettrait également la restitution des paramètres optiques nécessaires au calcul du forçage radiatif dû aux aérosols à partir d'inversion (Muller et al., 1999) et de code de Mie.

Synthèse et perspectives

Synthèse

Les aérosols de troposphère libre présentent une signature importante d'un point de vue optique et radiatif. Ceci a pu être vérifié depuis plusieurs stations d'exception dans ces travaux de thèse à partir d'un large panel instrumental et l'utilisation d'un modèle de transfert radiatif.

La première partie des résultats a permis d'identifier les contraintes instrumentales rencontrées dans ce type d'étude. La colocalisation des mesures in-situ et de télédétection des sites du Puy de Dôme a été un atout majeur pour étudier les paramètres atmosphériques influençant les mesures des deux techniques de mesures ainsi que les biais relatifs à chaque méthode de mesures. La bonne corrélation entre les propriétés optiques issues des deux techniques de mesures a montré que les mesures in-situ de la station d'altitude du Puy de Dôme sont finalement représentatives de la totalité de la colonne atmosphérique. Les biais instrumentaux rapportés dans la littérature (Schmid et al., 2003; Boyouk et al., 2010; Molero et al., 2012; Skupin et al., 2013) et présentant des mesures de coefficient d'extinction in-situ environ 20% en dessous des mesures photométriques, ont pu être également observés à partir de ces mesures long terme. Ce biais systématique est observé pour chaque saison et quelle que soit l'heure de la journée.

Différentes définitions de la troposphère (une ou deux couches) ainsi que différents paramètres atmosphériques (homogénéité, humidité) ont alors pu être incorporés dans cette analyse afin d'améliorer la restitution des propriétés de l'aérosol. La prise en compte de la structure de l'atmosphère est notamment un paramètre clé dans l'analyse des mesures in-situ et de télédétection (biais de 86% corrigé à 55%). A partir de cette analyse, différentes hypothèses simplificatrices de la structure de l'atmosphère ont montré qu'une décroissance linéaire de la l'extinction aérosols avec l'altitude est une bonne approximation (biais d'environ 10%). Un second facteur influençant significativement la restitution des propriétés des aérosols est leur hygroscopicité. De nombreuses études se sont intéressées à ce paramètre (Hervo et al., 2014; Holmgren et al., 2014), cependant, très peu d'études long terme ont permis d'évaluer son impact sur les propriétés optiques et microphysiques des aérosols. Les résultats de ces travaux de thèse montrent alors que la prise en compte du caractère hygroscopique des aérosols peut entraîner d'importantes variations de l'indice de réfraction des particules d'aérosols et ainsi de leurs propriétés optiques (diminution du coefficient d'extinction d'environ 45% pour l'utilisation

Synthèse et perspectives

d'un indice de réfraction humide d'une masse d'air océanique et avec un HGF de 1,4580). La prise en compte du facteur hygroscopique des aérosols influence également de façon significative les paramètres de la distribution en taille principalement du mode submicronique. Les particules du mode submicronique représentant environ 95% de la contribution optique des aérosols, il est donc important de prendre en compte le caractère hygroscopique de chaque particule.

La deuxième partie de cette étude a porté sur l'analyse des propriétés optiques de l'aérosol de divers origines et à différents niveaux de l'atmosphère. Ainsi les aérosols mesurés à la station in-situ de Chacaltaya (5240 m d'altitude) en Bolivie ont été analysés à l'aide des méthodes instrumentales précédemment étudiées. La localisation de la station de mesures au carrefour de masses d'air provenant du bassin Amazonien, des zones arides d'Amérique du Sud et du Sahara, de la Cordillères des Andes et d'importantes zones urbaines, a permis une caractérisation de chacun des paramètres optiques de ces sources d'aérosols. On montre ainsi que les coefficients d'extinction mesurés à la station de Chacaltaya sont en moyenne d'environ 10 Mm^{-1} mais peuvent atteindre 35 Mm^{-1} à cause des activités urbaines ou de la combustion de biomasse selon la saison. L'étude de l'albédo de simple diffusion a permis de plus, d'analyser le type de particules mesuré à la station. Ainsi, des particules absorbantes et fraîchement émises sont mesurées en saison humide en provenance de la région urbaine de La Paz, et des particules minérales majoritairement diffusantes en saison sèche en provenance du plateau bolivien. Les particules issues des feux de biomasse présentent quant à elles un impact conséquent sur les mesures de la station à la fin de la période sèche (entre août et septembre) mais avec des albédos de simple diffusion élevés témoins de l'importante distance par rapport aux sources.

Les particularités topographiques de la région de La Paz présentent également une rare opportunité d'étudier le transport des aérosols dans les différentes couches de l'atmosphère. Les résultats ont alors permis de mettre en évidence l'influence de façon régulière de la troposphère libre sur les mesures in-situ de la station de Chacaltaya (environ 30% du temps en journée et 60% la nuit). Les résultats ont également montré que les émissions basées au sol influencent nettement la composition de la couche de mélange et de la troposphère libre et ainsi leurs propriétés optiques et radiatives. En effet, dans la continuité des études réalisées dans le bassin amazonien et proches des sources (Husar et al., 2000; Reid et al., 2005; Chand et al., 2006; Singh et al., 2016), ces travaux de thèse ont montré que les importants épisodes de feux de biomasse amazoniens influencent de façon significative les propriétés de la totalité de la troposphère et ce, jusqu'à la région de La Paz bien que séparée par l'imposante barrière de la Cordillère des Andes. En effet, on observe à partir des mesures in-situ de Chacaltaya, que les coefficients d'extinction de troposphère libre augmentent de 28 à 80% entre août et septembre lors de la période des feux de biomasse en Amazonie. Les propriétés optiques de la troposphère libre sont alors clairement influencées par les sources naturelles et anthropiques basées au sol et restent significatives par rapport aux propriétés optiques des aérosols de plus basse couche atmosphérique.

La dernière partie de ces travaux de thèse a finalement permis d'établir la part des aérosols en troposphère libre par rapport à la totalité de la colonne atmosphérique ainsi que leurs propriétés radiatives. Trois méthodes utilisant les mesures photométriques, les mesures in-situ et les mesures LIDAR ont pu être comparées afin d'établir la meilleure restitution de la contribution optique des aérosols de troposphère libre. Malgré la possibilité d'accéder à un grand nombre de paramètres caractérisant l'aérosol à partir des mesures in-situ et d'accéder à la structure verticale des aérosols dans l'atmosphère à partir des mesures LIDAR, les mesures photométriques réalisées simultanément depuis le campus des Cézeaux (420 m) et depuis la station du puy de Dôme (1465 m) se sont révélées plus pertinentes pour l'estimation du forçage radiatif des aérosols de troposphère libre. En effet, cette configuration des mesures photométriques apporte l'avantage d'obtenir une mesure intégrée sur la totalité de la colonne atmosphérique et d'accéder à la globalité des paramètres optiques de l'aérosol nécessaires au calcul du forçage radiatif. On montre à l'aide de cette méthode que les aérosols de troposphère libre contribuent en moyenne à hauteur de 30% de l'épaisseur optique totale des aérosols sur la colonne et que cette contribution varie en fonction de la saison et de l'heure de la journée (20% en hiver et 80% en été).

A partir du modèle de transfert radiatif SBDART (Santa Barbara DISORT Atmospheric Radiative Transfert) ainsi que des mesures des propriétés optiques caractérisant l'aérosol dans sa globalité (épaisseur optique, albédo de simple diffusion, coefficient d'angström et coefficient d'asymétrie), les forçages radiatifs des aérosols ont été déterminés pour la première fois depuis les mesures long terme du site du puy de Dôme. Les variations mensuelles et journalières ont donc été établies pour cette station à la croisée de masses d'air continentales, océaniques et désertiques. Les résultats ont ainsi permis de montrer l'importante contribution radiative des aérosols de troposphère libre (entre 13 et 40%, soit entre -1 et -10 W.m⁻²) sur la période de l'étude (automne 2015).

Perspectives

Les différents résultats établis lors de ces travaux de thèse contribuent à l'amélioration des connaissances des propriétés optiques et radiatives des aérosols au sein des différentes couches atmosphériques analysées à travers différentes techniques instrumentales. Ainsi, plusieurs perspectives découlent de ces travaux de thèse et certains points restent à approfondir.

A court terme, il semblerait également intéressant d'étudier l'impact radiatif des aérosols mesurés depuis la station du puy de Dôme en fonction des différentes masses d'air. Cependant, les mesures in situ permettant uniquement de donner une indication sur la nature des aérosols, elles ne permettent pas de distinguer clairement les aérosols provenant des pollutions des zones urbaines des aérosols des feux de biomasse. Il serait alors intéressant de coupler les mesures optiques à des mesures chimiques, comme la quantité de carbone élémentaire d'une part pour

Synthèse et perspectives

mieux identifier l'origine de l'aérosol et d'autre part pour améliorer sa prise en compte dans les modèles. Des paramètres plus élaborés peuvent être calculés tels que le MAC (Mass Absorption Cross-Section, Petzold et al., 1997) à partir des mesures d'absorption et de la concentration en élément carbone. Cette méthode est déjà appliquée sur plusieurs sites européens (Zanatta et al., 2016) et nécessite d'être utilisée en complément des résultats de ces travaux de thèse sur les deux stations d'altitude étudiées. De même, l'application du modèle de transfert radiatif sur les données de la station de Chacaltaya permettrait d'étudier les propriétés radiatives propres aux aérosols mesurés dans la région de La Paz en Bolivie pour chaque type de source. L'influence de la région urbaine de La Paz et des feux de biomasse amazoniens sur le climat de cette région ainsi que sur les différentes couches de l'atmosphère reste à étudier. Dans cette optique, un second photomètre va être déployé à Chacaltaya en 2017.

A plus long terme, la méthode appliquée sur les stations du puy de Dôme et de Chacaltaya pour étudier les propriétés et les impacts radiatifs des aérosols de troposphère libre peut être appliquée sur d'autres stations d'altitude, comme le Maïdo (2 205 m, sur l'Ile de La Réunion), le Jungfraujoch (3 471 m, en Suisse) et la station Pyramid de l'Everest (5 079m, au Népal), permettant alors d'analyser l'impact de diverses sources d'un point de vue régional et sur les différentes couches de la troposphère. Une étude intéressante serait ainsi d'étudier l'impact d'aérosols provenant d'une même source à différentes localisations et dans les différentes couches de l'atmosphère pour voir l'impact du vieillissement de l'aérosol.

Les résultats de cette thèse seraient également utiles à l'exploitation des mesures satellitales. En effet, bien que les mesures satellitales offrent une couverture globale, elles ne permettent pas de restituer toutes les propriétés définissant l'aérosol. Une combinaison des mesures in-situ et des mesures de télédétection depuis le sol permettrait ainsi d'évaluer les produits satellites (notamment ceux issus de l'instrument CALIOP à bord du satellite CALIPSO lancé en 2006 et toujours en activité, ou de l'instrument ATLID à bord du satellite EarthCare en préparation : rapport de couleur, rapport LIDAR, épaisseur optique,...) et également d'établir des paramétrisations de certaines propriétés (albédo de simple diffusion, coefficient d'angström, forçage radiatif efficace,...) en fonction du type de masses d'air, des saisons et de la couche atmosphérique. L'étude des noyaux de condensation soulève également un intérêt majeur pour la compréhension des effets indirects des aérosols sur le climat et nécessite une parfaite connaissance des produits restitués par chaque technique instrumentale.

Références

Ackerman, A. S., Toon, O. B., Stevens, D. E., Heymsfield, A. J., Ramanathan, V. and Welton, E. J.: Reduction of Tropical Cloudiness by Soot, *Science*, 288(5468), 1042–1047, doi:10.1126/science.288.5468.1042, 2000.

Albrecht, B. A.: Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness, *Sci. N. Y. NY*, 245(4923), 1227, 1989.

Anderson, T. L., Covert, D. S., Marshall, S. F., Laucks, M. L., Charlson, R. J., Waggoner, A. P., Ogren, J. A., Caldow, R., Holm, R. L., Quant, F. R., Sem, G. J., Wiedensohler, A., Ahlquist, N. A. and Bates, T. S.: Performance Characteristics of a High-Sensitivity, Three-Wavelength, Total Scatter/Backscatter Nephelometer, *J. Atmospheric Ocean. Technol.*, 13(5), 967–986, doi:10.1175/1520-0426(1996)013<0967:PCOAHS>2.0.CO;2, 1996.

Anderson, T. and Ogren, J.: Determining Aerosol Radiative Properties Using the TSI 3563 Integrating Nephelometer, *Aerosol Sci. Technol.*, 29, 57–69, doi:citeulike-article-id:7802397, 1998.

Andrade, M., Mamani, R., Velarde, F., Biggeman, D., Zaratti, F. and Forno, R.: Aerosol transport to the Andean region: A new GAW station, *Rev. Boliv. Física*, 20(20), 42–44, 2012.

Andreae, M. O: Biomass burning: its history, use, and distribution and its impact on environmental quality and global climate, *Glob. Biomass Burn. Atmospheric Clim. Biospheric Implic.*, 3–21, 1991.

Andrews, E., Ogren, J. A., Bonasoni, P., Marinoni, A., Cuevas, E., Rodríguez, S., Sun, J. Y., Jaffe, D. A., Fischer, E. V., Baltensperger, U., Weingartner, E., Coen, M. C., Sharma, S., Macdonald, A. M., Leaitch, W. R., Lin, N.-H., Laj, P., Arsov, T., Kalapov, I., Jefferson, A. and Sheridan, P.: Climatology of aerosol radiative properties in the free troposphere, *Atmospheric Res.*, 102(4), 365–393, doi:10.1016/j.atmosres.2011.08.017, 2011.

Ansmann, A., Tesche, M., Seifert, P., Groß, S., Freudenthaler, V., Apituley, A., Wilson, K. M., Serikov, I., Linné, H., Heinold, B., Hiebsch, A., Schnell, F., Schmidt, J., Mattis, I., Wandinger, U. and Wiegner, M.: Ash and fine-mode particle mass profiles from EARLINET-AERONET observations over central Europe after the eruptions of the Eyjafjallajökull volcano in 2010, *J Geophys Res*, 116, D00U02, doi:10.1029/2010jd015567, 2011.

Asmi, A., Wiedensohler, A., Laj, P., Fjaeraa, A. M., Sellegri, K., Birmili, W., Weingartner, E., Baltensperger, U., Zdimal, V., Zikova, N., Putaud, J. P., Marinoni, A., Tunved, P., Hansson, H. C., Fiebig, M., Kivekäs, N., Lihavainen, H., Asmi, E., Ulevicius, V., Aalto, P. P., Swietlicki, E., Kristensson, A., Mihalopoulos, N., Kalivitis, N., Kalapov, I., Kiss, G., de Leeuw, G., Henzing, B., Harrison, R. M., Beddows, D., O'Dowd, C., Jennings, S. G., Flentje, H., Weinhold, K., Meinhardt, F., Ries, L. and Kulmala, M.: Number size distributions and seasonality of submicron particles in Europe 2008–2009, *Atmos Chem Phys Discuss*, 11, 8893–8976, doi:10.5194/acpd-11-8893-2011, 2011.

Baars, H., Ansmann, A., Engelmann, R. and Althausen, D.: Continuous monitoring of the boundary-layer top with lidar, *Atmospheric Chem. Phys.*, 8, 7281–7296, doi:Article, 2008.

Balis, D. S., Amiridis, V., Zerefos, C., Gerasopoulos, E., Andreae, M., Zanis, P., Kazantzidis, A., Kazadzis, S. and Papayannis, A.: Raman lidar and sunphotometric measurements of aerosol optical properties over Thessaloniki, Greece during a biomass burning episode, *Atmos. Environ.*, 37(32), 4529–4538, 2003.

Barreto, A., Cuevas, E., Damiri, B., Guirado, C., Berkoff, T., Berjón, A. J., Hernández, Y., Almansa, F. and Gil, M.: A new method for nocturnal aerosol measurements with a lunar photometer prototype, *Atmospheric Meas. Tech.*, 6(3), 585–598, 2013.

Bellouin, N., Quaas, J., Morcrette, J.-J. and Boucher, O.: Estimates of aerosol radiative forcing from the MACC re-analysis, *Atmospheric Chem. Phys.*, 13(4), 2045–2062, 2013.

Bond, T. C. and Bergstrom, R. W.: Light absorption by carbonaceous particles: An investigative review, *Aerosol Sci. Technol.*, 40(1), 27–67, 2006.

Bourcier, L., Masson, O., Laj, P., Pichon, J. M., Paulat, P., Freney, E. and Sellegri, K.: Comparative trends and seasonal variation of ⁷Be, ²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs at two altitude sites in the central part of France, *J. Environ. Radioact.*, 102(3), 294–301, 2011.

Bourcier, L., Sellegri, K., Chausse, P., Pichon, J. and Laj, P.: Seasonal variation of water-soluble inorganic components in aerosol size-segregated at the puy de Dôme station (1,465 m a.s.l.), France, *J. Atmospheric Chem.*, 69(1), 47–66, doi:10.1007/s10874-012-9229-2, 2012.

Boyouk, N., Léon, J.-F., Delbarre, H., Podvin, T. and Deroo, C.: Impact of the mixing boundary layer on the relationship between PM_{2.5} and aerosol optical thickness, *Atmos. Environ.*, 44, 271–277, doi:DOI: 10.1016/j.atmosenv.2009.06.053, 2010.

Brock, C. A., Wagner, N. L., Anderson, B. E., Beyersdorf, A., Campuzano-Jost, P., Day, D. A., Diskin, G. S., Gordon, T. D., Jimenez, J. L., Lack, D. A., Liao, J., Markovic, M. Z., Middlebrook, A. M., Perring, A. E., Richardson, M. S., Schwarz, J. P., Welti, A., Ziemba, L. D. and Murphy, D. M.: Aerosol optical properties in the southeastern United States in summer – Part 2: Sensitivity of aerosol optical depth to relative humidity and aerosol parameters, *Atmos Chem Phys*, 16(8), 5009–5019, doi:10.5194/acp-16-5009-2016, 2016.

Brooks, I. M.: Finding boundary layer top: Application of a wavelet covariance transform to lidar backscatter profiles, *J. Atmospheric Ocean. Technol.*, 20, 1092–1105, doi:Article, 2003.

Bucholtz, A.: Rayleigh-scattering calculations for the terrestrial atmosphere, *Appl. Opt.*, 34(15), 2765–2773, 1995.

Burkart, J., Steiner, G., Reischl, G., Moshhammer, H., Neuberger, M. and Hittenberger, R.: Characterizing the performance of two optical particle counters (Grimm OPC1.108 and OPC1.109) under urban aerosol conditions, *J. Aerosol Sci.*, 41, 953–962, doi:DOI: 10.1016/j.jaerosci.2010.07.007, 2010.

Carrico, C. M., Kus, P., Rood, M. J., Quinn, P. K. and Bates, T. S.: Mixtures of pollution, dust, sea salt, and volcanic aerosol during ACE-Asia: Radiative properties as a function of relative humidity, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 108(D23), 8650, doi:10.1029/2003JD003405, 2003.

Chand, D., Guyon, P., Artaxo, P., Schmid, O., Frank, G. P., Rizzo, L. V., Mayol-Bracero, O. L., Gatti, L. V. and Andreae, M. O.: Optical and physical properties of aerosols in the boundary layer and free troposphere over the Amazon Basin during the biomass burning season, *Atmospheric Chem. Phys.*, 6(10), 2911–2925, 2006.

Charlson, R. J., Schwartz, S. E., Hales, J. M., Cess, R. D., Coakley, J. A., Jr, Hansen, J. E. and Hofmann, D. J.: Climate forcing by anthropogenic aerosols, *Science*, 255(5043), 423–430, doi:10.1126/science.255.5043.423, 1992.

Chauvigné, A., Sellegri, K., Hervo, M., Montoux, N., Freville, P. and Goloub, P.: Comparison of the aerosol optical properties and size distribution retrieved by Sun photometer with in-situ measurements at mid-latitude, *Atmospheric Meas. Tech. Discuss.*, 1–26, doi:10.5194/amt-2016-97, 2016.

Coakley, J. A., Cess, R. D. and Yurevich, F. B.: The Effect of Tropospheric Aerosols on the Earth's Radiation Budget: A Parameterization for Climate Models, *J. Atmospheric Sci.*, 40(1), 116–138, doi:10.1175/1520-0469(1983)040<0116:TEOTAO>2.0.CO;2, 1983.

Collaud Coen, M., Weingartner, E., Apituley, A., Ceburnis, D., Fierz-Schmidhauser, R., Flentje, H., Henzing, J. S., Jennings, S. G., Moerman, M., Petzold, A., Schmid, O. and Baltensperger, U.: Minimizing light absorption measurement artifacts of the Aethalometer: evaluation of five correction algorithms, *Atmospheric Meas. Tech.*, 3(2), 457–474, doi:10.5194/amt-3-457-2010, 2010.

Conant, W. C., Seinfeld, J. H., Wang, J., Carmichael, G. R., Tang, Y., Uno, I., Flatau, P. J., Markowicz, K. M. and Quinn, P. K.: A model for the radiative forcing during ACE-Asia derived from CIRPAS Twin Otter and R/V Ronald H. Brown data and comparison with observations, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 108(D23), 8661, doi:10.1029/2002JD003260, 2003.

Derimian, Y., Dubovik, O., Huang, X., Lapyonok, T., Litvinov, P., Kostinski, A. B., Dubuisson, P. and Ducos, F.: Comprehensive tool for calculation of radiative fluxes: illustration of shortwave aerosol radiative effect sensitivities to the details in aerosol and underlying surface characteristics, *Atmos Chem Phys*, 16(9), 5763–5780, doi:10.5194/acp-16-5763-2016, 2016.

Draxler, R. R. and Rolph, G. D.: HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY Website (<http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>), NOAA Air Resour. Lab. Silver Spring MD, 2003.

Dubovik, O. and King, M. D.: A flexible inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from Sun and sky radiance measurements, *J. Geophys. Res.-Atmospheres*, 105, 20673–20696, 2000.

Dubovik, O., Smirnov, A., Holben, B. N., King, M. D., Kaufman, Y. J., Eck, T. F. and Slutsker, I.: Accuracy assessments of aerosol optical properties retrieved from Aerosol Robotic Network (AERONET) Sun and sky radiance measurements, *J. Geophys. Res.*, 105(D8), 9791–9806, doi:10.1029/2000JD900040, 2000.

Dubovik, O., Holben, B., Eck, T. F., Smirnov, A., Kaufman, Y. J., King, M. D., Tanre, D. and Slutsker, I.: Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations, *J. Atmospheric Sci.*, 59, 590–608, doi:Review, 2002.

Dubuisson, P., Dessailly, D., Vesperini, M. and Frouin, R.: Water vapor retrieval over ocean using near-infrared radiometry, *J. Geophys. Res.*, 109(D19), D19106, doi:10.1029/2004JD004516, 2004.

Farah, A., Sellegri, K. and Freney, E.: Comparison of Mixing Layer and Free Tropospheric condition restitutions at PUY station. En preparation.

Favez, O., Haddad, I. E., Piot, C., Boréave, A., Abidi, E., Marchand, N., Jaffrezo, J.-L., Besombes, J.-L., Personnaz, M.-B., Sciare, J. and others: Inter-comparison of source apportionment models for the estimation of wood burning aerosols during wintertime in an Alpine city (Grenoble, France), *Atmospheric Chem. Phys.*, 10(12), 5295–5314, 2010.

Fierz-Schmidhauser, R., Zieger, P., Vaishya, A., Monahan, C., Bialek, J., O'Dowd, C. D., Jennings, S. G., Baltensperger, U. and Weingartner, E.: Light scattering enhancement factors in the marine boundary layer (Mace Head, Ireland), *J Geophys Res*, 115, D20204, doi:10.1029/2009jd013755, 2010.

Flamant, C., Pelon, J., Flamant, P. H. and Durand, P.: LIDAR DETERMINATION OF THE ENTRAINMENT ZONE THICKNESS AT THE TOP OF THE UNSTABLE MARINE ATMOSPHERIC BOUNDARY LAYER, *Bound.-Layer Meteorol.*, 83, 247–284, doi:10.1023/A:1000258318944, 1997.

Flynn, C. J., Barnard, J. C., Koontz, A., Halter, T. D., Michalsky, J. J. and Schlemmer, J.: The ARM Aerosol Optical Thickness VAP, 2002.

Freney, E. J., Sellegri, K., Canonaco, F., Boulon, J., Hervo, M., Weigel, R., Pichon, J. M., Colomb, A., Prévôt, A. S. H. and Laj, P.: Seasonal variations in aerosol particle composition at the puy-de-Dôme research station, *Atmos Chem Phys Discuss*, 11, 27139–27170, doi:10.5194/acpd-11-27139-2011, 2011.

Freville, P., Montoux, N., Baray, J.-L., Chauvigné, A., Réveret, F., Hervo, M., Dionisi, D., Payen, G. and Sellegri, K.: LIDAR Developments at Clermont-Ferrand—France for Atmospheric Observation, *Sensors*, 15(2), 3041–3069, 2015.

Garcia, O. E., Diaz, J. P., Expósito, F. J., Diaz, A. M., Dubovik, O., Derimian, Y., Dubuisson, P. and Roger, J. C.: Shortwave radiative forcing and efficiency of key aerosol types using AERONET data, *Atmos Chem Phys*, 12, 5129–5145, 2012.

Ginoux, P., Chin, M., Tegen, I., Prospero, J. M., Holben, B., Dubovik, O. and Lin, S.-J.: Sources and distributions of dust aerosols simulated with the GOCART model, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 106(D17), 20255–20273, 2001.

Gkikas, A., Basart, S., Hatzianastassiou, N., Marinou, E., Amiridis, V., Kazadzis, S., Pey, J., Querol, X., Jorba, O., Gassó, S. and Baldasano, J. M.: Mediterranean intense desert dust outbreaks and their vertical structure based on remote sensing data, *Atmos Chem Phys*, 16(13), 8609–8642, doi:10.5194/acp-16-8609-2016, 2016.

Goloub, P., Li, Z., Dubovik, O., Blarel, L., Podvin, T., Jankowiak, I., Lecoq, R., Deroo, C., Chatenet, B., Morel, J. P. and others: PHOTONS/AERONET sunphotometer network overview: description, activities, results, in Fourteenth International Symposium on

Atmospheric and Ocean Optics/Atmospheric Physics, p. 69360V–69360V, International Society for Optics and Photonics, 2007.

Griffiths, A. D., Parkes, S. D., Chambers, S. D., McCabe, M. F. and Williams, A. G.: Improved mixing height monitoring through a combination of lidar and radon measurements, *Atmospheric Meas. Tech.*, 6(2), 207–218, 2013.

Griffiths, A. D., Conen, F., Weingartner, E., Zimmermann, L., Chambers, S. D., Williams, A. G. and Steinbacher, M.: Surface-to-mountaintop transport characterised by radon observations at the Jungfraujoch, *Atmospheric Chem. Phys.*, 14(23), 12763–12779, 2014.

Hansen, J., Sato, M., Ruedy, R.: Radiative forcing and climate response, *J. Geophys. Res.- Ser.*, 102, 6831–6864, 1997.

Hasan, H. and Dzubay, T. G.: Apportioning light extinction coefficients to chemical species in atmospheric aerosol, *Atmospheric Environ.* 1967, 17(8), 1573–1581, doi:10.1016/0004-6981(83)90310-4, 1983.

Henne, S., Brunner, D., Folini, D., Solberg, S., Klausen, J. and Buchmann, B.: Assessment of parameters describing representativeness of air quality in-situ measurement sites, *Atmos Chem Phys*, 10(8), 3561–3581, doi:10.5194/acp-10-3561-2010, 2010.

Herrmann, E., Weingartner, E., Henne, S., Vuilleumier, L., Bukowiecki, N., Steinbacher, M., Conen, F., Collaud Coen, M., Hammer, E., Jurányi, Z., Baltensperger, U. and Gysel, M.: Analysis of long-term aerosol size distribution data from Jungfraujoch with emphasis on free tropospheric conditions, cloud influence, and air mass transport, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 2015JD023660, doi:10.1002/2015JD023660, 2015.

Hervo, M. : Interpretation des mesures LIDAR : Estimation de la hauteur de couche de limite atmosphérique, Rapport de Master, Université Blaise Pascal. 2009.

Hervo, M.: Etude de propriétés optiques et radiatives des aérosols atmosphériques en atmosphère réelle : Impact de l'hygroscopicité. Thèse, Université Blaise Pascal. 2012.

Hervo, M., Sellegri, K., Pichon, J. M., Roger, J. C. and Laj, P.: Long term measurements of optical properties and their hygroscopic enhancement, *Atmos Chem Phys Discuss*, 14(20), 27731–27767, doi:10.5194/acpd-14-27731-2014, 2014.

Holben, B. N., Setzer, A., Eck, T. F., Pereira, A. and Slutsker, I.: Effect of dry-season biomass burning on Amazon basin aerosol concentrations and optical properties, 1992–1994, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 101(D14), 19465–19481, doi:10.1029/96JD01114, 1996.

Holben, B. N., Eck, T. F., Slutsker, I., Tanré, D., Buis, J. P., Setzer, A., Vermote, E., Reagan, J. A., Kaufman, Y. J., Nakajima, T., Lavenu, F., Jankowiak, I. and Smirnov, A.: AERONET—A Federated Instrument Network and Data Archive for Aerosol Characterization, *Remote Sens. Environ.*, 66(1), 1–16, doi:10.1016/S0034-4257(98)00031-5, 1998.

Holmgren, H., Sellegri, K., Hervo, M., Rose, C., Freney, E., Villani, P. and Laj, P.: Hygroscopic properties and mixing state of aerosol measured at the high-altitude site Puy de Dôme (1465 m asl), France, *Atmospheric Chem. Phys.*, 14(18), 9537–9554, 2014.

Husar, R. B., Husar, J. D. and Martin, L.: Distribution of continental surface aerosol extinction based on visual range data, *Atmos. Environ.*, 34(29–30), 5067–5078, doi:10.1016/S1352-2310(00)00324-1, 2000.

IPCC: IPCC (AR5): Climate Change 2013: The Physical Science Basis, Summary for policymakers, Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment report, 2013.

Jacobson, M. Z.: Analysis of aerosol interactions with numerical techniques for solving coagulation, nucleation, condensation, dissolution, and reversible chemistry among multiple size distributions, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 107(D19), 4366, doi:10.1029/2001JD002044, 2002.

Kanitz, T., Ansmann, A., Engelmann, R. and Althausen, D.: North-south cross sections of the vertical aerosol distribution over the Atlantic Ocean from multiwavelength Raman/polarization lidar during Polarstern cruises, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 118(6), 2643–2655, doi:10.1002/jgrd.50273, 2013.

Kaufman, Y. J. and Holben, B. N.: Hemispherical backscattering by biomass burning and sulfate particles derived from sky measurements, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 101(D14), 19433–19445, doi:10.1029/95JD02532, 1996.

Kaufman, Y. J., Tanré, D., Gordon, H. R., Nakajima, T., Lenoble, J., Frouin, R., Grassl, H., Herman, B. M., King, M. D. and Teillet, P. M.: Passive remote sensing of tropospheric aerosol and atmospheric correction for the aerosol effect, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 102(D14), 16815–16830, 1997.

Klett, J. D.: Stable analytical inversion solution for processing lidar returns, *Appl. Opt.*, 20(2), 211, doi:10.1364/AO.20.000211, 1981.

Korras-Carraca, M. B., Hatzianastassiou, N., Matsoukas, C., Gkikas, A. and Papadimas, C. D.: The regime of aerosol asymmetry parameter over Europe, the Mediterranean and the Middle East based on MODIS satellite data: evaluation against surface AERONET measurements, *Atmospheric Chem. Phys.*, 15(22), 13113–13132, 2015.

Kuze, H., Kinjo, H., Sakurada, Y. and Takeuchi, N.: Field-of-View Dependence of Lidar Signals by Use of Newtonian and Cassegrainian Telescopes, *Appl. Opt.*, 37(15), 3128–3132, doi:10.1364/AO.37.003128, 1998.

Lagzi, I., Meszaros, R., Gelybo, G. and Leelossy, A.: Atmospheric chemistry, 2014.

Laj, P., Klausen, J., Bilde, M., Plaß-Duelmer, C., Pappalardo, G., Clerbaux, C., Baltensperger, U., Hjorth, J., Simpson, D., Reimann, S., Coheur, P. F., Richter, A., De Mazière, M., Rudich, Y., McFiggans, G., Tørseth, K., Wiedensohler, A., Morin, S., Schulz, M., Allan, J. D., Attié, J. L., Barnes, I., Birmili, W., Cammas, J. P., Dommen, J., Dorn, H. P., Fowler, D., Fuzzi, S., Glasius, M., Granier, C., Hermann, M., Isaksen, I. S. A., Kinne, S., Koren, I., Madonna, F., Maione, M., Massling, A., Moehler, O., Mona, L., Monks, P. S., Müller, D., Müller, T., Orphal, J., Peuch, V. H., Stratmann, F., Tanré, D., Tyndall, G., Abo Riziq, A., Van Roozendael, M., Villani, P., Wehner, B., Wex, H. and Zardini, A. A.: Measuring atmospheric composition change, *Atmos. Environ.*, 43, 5351–5414, doi:DOI: 10.1016/j.atmosenv.2009.08.020, 2009.

Liu, J., Scheuer, E., Dibb, J., Diskin, G. S., Ziemba, L. D., Thornhill, K. L., Anderson, B. E., Wisthaler, A., Mikoviny, T., Devi, J. J., Bergin, M., Perring, A. E., Markovic, M. Z., Schwarz, J. P., Campuzano-Jost, P., Day, D. A., Jimenez, J. L. and Weber, R. J.: Brown carbon aerosol in the North American continental troposphere: sources, abundance, and radiative forcing, *Atmos Chem Phys*, 15(14), 7841–7858, doi:10.5194/acp-15-7841-2015, 2015.

Luo, C., Mahowald, N. M. and Del Corral, J.: Sensitivity study of meteorological parameters on mineral aerosol mobilization, transport, and distribution, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 108(D15), 2003.

Mallat, S. and Hwang, W. L.: Singularity detection and processing with wavelets, *Inf. Theory IEEE Trans. On*, 38(2), 617–643, 1992.

Mallet, M., Dulac, F., Formenti, P., Nabat, P., Sciare, J., Roberts, G., Pelon, J., Ancellet, G., Tanré, D., Parol, F. and others: Overview of the Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment/Aerosol Direct Radiative Forcing on the Mediterranean Climate (ChArMEx/ADRIMED) summer 2013 campaign, *Atmospheric Chem. Phys.*, 16(2), 455–504, 2016.

Maring, H., Savoie, D. L., Izaguirre, M. A., McCormick, C., Arimoto, R., Prospero, J. M. and Pilinis, C.: Aerosol physical and optical properties and their relationship to aerosol composition in the free troposphere at Izaña, Tenerife, Canary Islands, during July 1995, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 105(D11), 14677–14700, doi:10.1029/2000JD900106, 2000.

Mattis, I., Ansmann, A., Müller, D., Wandinger, U. and Althausen, D.: Multiyear aerosol observations with dual-wavelength Raman lidar in the framework of EARLINET, *J. Geophys. Res.*, 109, 15 PP., doi:200410.1029/2004JD004600, 2004.

Menut, L., Flamant, C., Pelon, J. and Flamant, P. H.: Urban boundary-layer height determination from lidar measurements over the Paris area, *Appl. Opt.*, 38(6), 945–954, 1999.

Mishra, A. K., Klingmueller, K., Fredj, E., Lelieveld, J., Rudich, Y. and Koren, I.: Radiative signature of absorbing aerosol over the Eastern Mediterranean Basin, *Atmos Chem Phys Discuss*, 14(2), 2403–2447, doi:10.5194/acpd-14-2403-2014, 2014.

Molero, F., Sicard, M., Guzman, F. N., Preißler, J., Amodeo, A., Freudenthaler, V., Fernandez, A. J., Tomas, S., Granados, M. J., Wagner, F. and others: Study on aerosol properties over Madrid (Spain) by multiple instrumentation during SPALI10 lidar campaign, *Opt. Pura Apl.*, 45(4), 405–413, 2012.

Moreno, I., Roca, M., Sanchez, M.F, Forno, R., Andrade, M., Velarde, F., Blacutt, L., Gutierrez, R., Whiteman, D., Krejci, R., Sellegri, K., Laj, P., Giinot, P., Ramonte, M., Vimeux, F., Wiedensohler, A., Bonasoni, P. and Cristofanelli, P. : Assessment of the diurnal cycle of the PBL evolution at the CHC GAW station using the Pasquill-Gifford method. En préparation.

Morille, Y., Haeffelin, M., Drobinski, P. and Pelon, J.: STRAT: An Automated Algorithm to Retrieve the Vertical Structure of the Atmosphere from Single-Channel Lidar Data, *J. Atmospheric Ocean. Technol.*, 24(5), 761–775, doi:10.1175/JTECH2008.1, 2007.

Müller, D., Ansmann, A., Mattis, I., Tesche, M., Wandinger, U., Althausen, D. and Pisani, G.: Aerosol-type-dependent lidar ratios observed with Raman lidar, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 112(D16), D16202, doi:10.1029/2006JD008292, 2007.

Müller, T., Henzing, J. S., de Leeuw, G., Wiedensohler, A., Alastuey, A., Angelov, H., Bizjak, M., Collaud Coen, M., Engström, J. E., Gruening, C., Hillamo, R., Hoffer, A., Imre, K., Ivanow, P., Jennings, G., Sun, J. Y., Kalivitis, N., Karlsson, H., Komppula, M., Laj, P., Li, S. M., Lunder, C., Marinoni, A., Martins dos Santos, S., Moerman, M., Nowak, A., Ogren, J. A., Petzold, A., Pichon, J. M., Rodriguez, S., Sharma, S., Sheridan, P. J., Teinilä, K., Tuch, T., Viana, M., Virkkula, A., Weingartner, E., Wilhelm, R. and Wang, Y. Q.: Characterization and intercomparison of aerosol absorption photometers: result of two intercomparison workshops, *Atmos Meas Tech Discuss*, 3, 1511–1582, doi:10.5194/amtd-3-1511-2010, 2010.

Müller, T., Laborde, M., Kassell, G. and Wiedensohler, A.: Design and performance of a three-wavelength LED-based total scatter and backscatter integrating nephelometer, *Atmospheric Meas. Tech.*, 4(6), 1291–1303, doi:10.5194/amt-4-1291-2011, 2011.

Müller, D., Lee, K.-H., Gasteiger, J., Tesche, M., Weinzierl, B., Kandler, K., Müller, T., Toledano, C., Otto, S., Althausen, D. and Ansmann, A.: Comparison of optical and microphysical properties of pure Saharan mineral dust observed with AERONET Sun photometer, Raman lidar, and in situ instruments during SAMUM 2006, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 117(D7), D07211, doi:10.1029/2011JD016825, 2012.

Myhre, G., Highwood, E. J., Shine, K. P. and Stordal, F.: New estimates of radiative forcing due to well mixed greenhouse gases, *Geophys. Res. Lett.*, 25(14), 2715–2718, doi:10.1029/98GL01908, 1998.

Obregón, M. A., Serrano, A., Costa, M. J. and Silva, A. M.: Validation of libRadtran and SBDART models under different aerosol conditions, in *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*, vol. 28, p. 012010, IOP Publishing, 2015.

Omar, A. H., Winker, D. M., Vaughan, M. A., Hu, Y., Trepte, C. R., Ferrare, R. A., Lee, K.-P., Hostetler, C. A., Kittaka, C., Rogers, R. R. and others: The CALIPSO automated aerosol classification and lidar ratio selection algorithm, *J. Atmospheric Ocean. Technol.*, 26(10), 1994–2014, 2009.

Pandithurai, G., Dipu, S., Dani, K. K., Tiwari, S., Bisht, D. S., Devara, P. C. S. and Pinker, R. T.: Aerosol radiative forcing during dust events over New Delhi, India, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 113(D13), D13209, doi:10.1029/2008JD009804, 2008.

Penner, J. E., Dickinson, R. E. and O'Neill, C. A.: Effects of Aerosol from Biomass Burning on the Global Radiation Budget, *Science*, 256(5062), 1432–1434, doi:10.1126/science.256.5062.1432, 1992.

Petters, M. D. and Kreidenweis, S. M.: A single parameter representation of hygroscopic growth and cloud condensation nucleus activity, *Atmos Chem Phys*, 7(8), 1961–1971, doi:10.5194/acp-7-1961-2007, 2007.

Petzold, A., Kopp, C. and Niessner, R.: The dependence of the specific attenuation cross-section on black carbon mass fraction and particle size, *Atmos. Environ.*, 31(5), 661–672, doi:10.1016/S1352-2310(96)00245-2, 1997.

Petzold, A. and Schönlinner, M.: Multi-angle absorption photometry--a new method for the measurement of aerosol light absorption and atmospheric black carbon, *J. Aerosol Sci.*, 35, 421–441, doi:DOI: 10.1016/j.jaerosci.2003.09.005, 2004.

Piironen, A. K. and Eloranta, E. W.: Convective boundary layer mean depths and cloud geometrical properties obtained from volume imaging lidar data, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 100(D12), 25569–25576, 1995.

Pilinis, C., Pandis, S. N. and Seinfeld, J. H.: Sensitivity of direct climate forcing by atmospheric aerosols to aerosol size and composition, *J. Geophys. Res.*, 100(D9), 18739–18,754, doi:10.1029/95JD02119, 1995.

Pilinis, C., Charalampidis, P. E., Mihalopoulos, N. and Pandis, S. N.: Contribution of particulate water to the measured aerosol optical properties of aged aerosol, *Atmos. Environ.*, 82, 144–153, 2014.

Raju, M. P., Safai, P. D., Vijayakumar, K., Devara, P. C. S., Naidu, C. V., Rao, P. S. P. and Pandithurai, G.: Atmospheric abundances of black carbon aerosols and their radiative impact over an urban and a rural site in SW India, *Atmos. Environ.*, 125, 429–436, 2016.

Ramanathan, V., Crutzen, P. J., Lelieveld, J., Mitra, A. P., Althausen, D., Anderson, J., Andreae, M. O., Cantrell, W., Cass, G. R., Chung, C. E. and others: Indian Ocean Experiment: An integrated analysis of the climate forcing and effects of the great Indo-Asian haze, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 106(D22), 28371–28398, 2001.

Reichardt, J., Reichardt, S., Hess, M. and McGee, T. J.: Correlations among the optical properties of cirrus-cloud particles: Microphysical interpretation, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 107(D21), 4562, doi:10.1029/2002JD002589, 2002.

Reid, J. S., Hobbs, P. V., Ferek, R. J., Blake, D. R., Martins, J. V., Dunlap, M. R. and Liousse, C.: Physical, chemical, and optical properties of regional hazes dominated by smoke in Brazil, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 103(D24), 32059–32080, doi:10.1029/98JD00458, 1998.

Reid, J. S., Eck, T. F., Christopher, S. A., Koppmann, R., Dubovik, O., Eleuterio, D. P., Holben, B. N., Reid, E. A. and Zhang, J.: A review of biomass burning emissions part III: intensive optical properties of biomass burning particles, *Atmospheric Chem. Phys.*, 5(3), 827–849, 2005.

Remer, L. A., Kaufman, Y. J., Tanré, D., Mattoo, S., Chu, D. A., Martins, J. V., Li, R.-R., Ichoku, C., Levy, R. C., Kleidman, R. G., Eck, T. F., Vermote, E. and Holben, B. N.: The MODIS Aerosol Algorithm, Products, and Validation, *J. Atmospheric Sci.*, 62(4), 947–973, doi:10.1175/JAS3385.1, 2005.

Ricchiazzi, P., Yang, S., Gautier, C. and Sowle, D.: SBDART: A Research and Teaching Software Tool for Plane-Parallel Radiative Transfer in the Earth's Atmosphere, *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 79(10), 2101–2114, doi:10.1175/1520-0477(1998)079<2101:SARATS>2.0.CO;2, 1998.

Ricchiazzi, P. and Gautier, C.: Column Integrated Aerosol Properties During the May 2003 Aerosol IOP, 2004.

Rose, C., Boulon, J., Hervo, M., Holmgren, H., Asmi, E., Ramonet, M., Laj, P. and Sellegri, K.: Long-term observations of positive cluster ion concentration, sources and sinks at the high altitude site of the Puy de Dôme, *Atmos Chem Phys Discuss*, 13(6), 2013.

Russell, P. B., Hobbs, P. V. and Stowe, L. L.: Aerosol properties and radiative effects in the United States east coast haze plume: An overview of the Tropospheric Aerosol Radiative Forcing Observational Experiment (TARFOX), *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 104(D2), 2213–2222, 1999.

Satheesh, S. K. and Krishna Moorthy, K.: Radiative effects of natural aerosols: A review, *Atmos. Environ.*, 39(11), 2089–2110, doi:10.1016/j.atmosenv.2004.12.029, 2005.

Sayer, A. M., Hsu, N. C., Bettenhausen, C. and Jeong, M.-J.: Validation and uncertainty estimates for MODIS Collection 6 “Deep Blue” aerosol data, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 118(14), 7864–7872, doi:10.1002/jgrd.50600, 2013.

Schmid, B., Hegg, D. A., Wang, J., Bates, D., Redemann, J., Russell, P. B., Livingston, J. M., Jonsson, H. H., Welton, E. J., Seinfeld, J. H., Flagan, R. C., Covert, D. S., Dubovik, O. and Jefferson, A.: Column closure studies of lower tropospheric aerosol and water vapor during ACE-Asia using airborne Sun photometer and airborne in situ and ship-based lidar measurements, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 108(D23), 8656, doi:10.1029/2002JD003361, 2003.

Schröder, F., Kärcher, B., Fiebig, M. and Petzold, A.: Aerosol states in the free troposphere at northern midlatitudes, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 107(D21), 8126, doi:10.1029/2000JD000194, 2002.

Sciare, J., d’Argouges, O., Sarda-Estève, R., Gaimoz, C., Dolgorouky, C., Bonnaire, N., Favez, O., Bonsang, B. and Gros, V.: Large contribution of water-insoluble secondary organic aerosols in the region of Paris (France) during wintertime, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 116(D22), D22203, doi:10.1029/2011JD015756, 2011.

Seidel, D. J., Ao, C. O. and Li, K.: Estimating climatological planetary boundary layer heights from radiosonde observations: Comparison of methods and uncertainty analysis, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 115(D16), D16113, doi:10.1029/2009JD013680, 2010.

Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N.: *Atmospheric chemistry and physics*. Hoboken, NJ: Wiley., 2006.

Sheridan, P. J., Andrews, E., Ogren, J. A., Tackett, J. L. and Winker, D. M.: Vertical profiles of aerosol optical properties over central Illinois and comparison with surface and satellite measurements, *Atmos Chem Phys*, 12(23), 11695–11721, doi:10.5194/acp-12-11695-2012, 2012.

Singh, A., Srivastava, R., Rastogi, N. and Singh, D.: Absorbing and scattering aerosols over the source region of biomass burning emissions: Implications in the assessment of optical and radiative properties, *Atmos. Environ.*, 127, 61–68, doi:10.1016/j.atmosenv.2015.12.029, 2016.

Sinha, P. R., Manchanda, R. K., Kaskaoutis, D. G., Kumar, Y. B. and Sreenivasan, S.: Seasonal variation of surface and vertical profile of aerosol properties over a tropical urban station Hyderabad, India, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 118(2), 749–768, doi:10.1029/2012JD018039, 2013.

Skupin, A., Ansmann, A., Engelmann, R. and Baars, H.: Spectral Aerosol Extinction Monitoring System (SÆMS): setup, observational products, and comparisons. *Atmospheric Meas. Tech. Discuss*, 2013.

Stock, M., Cheng, Y. F., Birmili, W., Massling, A., Wehner, B., Müller, T., Leinert, S., Kalivitis, N., Mihalopoulos, N. and Wiedensohler, A.: Hygroscopic properties of atmospheric aerosol particles over the Eastern Mediterranean: implications for regional direct radiative forcing under clean and polluted conditions, *Atmos Chem Phys*, 11(9), 4251–4271, doi:10.5194/acp-11-4251-2011, 2011.

Stull, R. B., Ed.: *An Introduction to Boundary Layer Meteorology*, Springer Netherlands, Dordrecht, 1988.

Twomey, S.: Pollution and the planetary albedo, *Atmospheric Environ.* 1967, 8(12), 1251–1256, 1974.

Venzac, H., Sellegri, K., Villani, P., Picard, D. and Laj, P.: Seasonal variation of aerosol size distributions in the free troposphere and residual layer at the puy de Dôme station, France, *Atmos Chem Phys*, 9, 1465–1478, doi:10.5194/acp-9-1465-2009, 2009.

Wagner, N. L., Brock, C. A., Angevine, W. M., Beyersdorf, A., Campuzano-Jost, P., Day, D., de Gouw, J. A., Diskin, G. S., Gordon, T. D., Graus, M. G. and others: In situ vertical profiles of aerosol extinction, mass, and composition over the southeast United States during SENEX and SEAC 4 RS: observations of a modest aerosol enhancement aloft, *Atmospheric Chem. Phys.*, 15(12), 7085–7102, 2015.

Wang, S. C. and Flagan, R. C.: Scanning electrical mobility spectrometer, *Aerosol Sci. Technol.*, 13(2), 230–240, 1990.

Waterman, Peter C. Symmetry, unitarity, and geometry in electromagnetic scattering. *Physical review D* 3, no 4 (1971): 825, 1971.

Weingartner, E., Saathoff, H., Schnaiter, M., Streit, N., Bitnar, B. and Baltensperger, U.: Absorption of light by soot particles: determination of the absorption coefficient by means of aethalometers, *J. Aerosol Sci.*, 34(10), 1445–1463, doi:10.1016/S0021-8502(03)00359-8, 2003.

Weitkamp, C.: *Lidar: Range-resolved Optical Remote Sensing Of The Atmosphere*, Springer., 2005.

Wiedensohler, A.: An approximation of the bipolar charge distribution for particles in the submicron size range, *J. Aerosol Sci.*, 19, 387–389, doi:10.1016/0021-8502(88)90278-9, 1988.

Winker, D. M., Tackett, J. L., Getzewich, B. J., Liu, Z., Vaughan, M. A. and Rogers, R. R.: The global 3-D distribution of tropospheric aerosols as characterized by CALIOP, *Atmos Chem Phys*, 13(6), 3345–3361, doi:10.5194/acp-13-3345-2013, 2013.

Yu, H., Kaufman, Y. J., Chin, M., Feingold, G., Remer, L. A., Anderson, T. L., Balkanski, Y., Bellouin, N., Boucher, O., Christopher, S., DeCola, P., Kahn, R., Koch, D., Loeb, N., Reddy, M. S., Schulz, M., Takemura, T. and Zhou, M.: A review of measurement-based assessments of the aerosol direct radiative effect and forcing, *Atmos Chem Phys*, 6(3), 613–666, doi:10.5194/acp-6-613-2006, 2006.

Zanatta, M., Gysel, M., Bukowiecki, N., Müller, T., Weingartner, E., Areskoug, H., Fiebig, M., Yttri, K. E., Mihalopoulos, N., Kouvarakis, G., Beddows, D., Harrison, R. M., Cavalli, F., Putaud, J. P., Spindler, G., Wiedensohler, A., Alastuey, A., Pandolfi, M., Sellegri, K., Swietlicki, E., Jaffrezo, J. L., Baltensperger, U. and Laj, P.: A European aerosol phenomenology-5: Climatology of black carbon optical properties at 9 regional background sites across Europe, *Atmos. Environ.*, doi:10.1016/j.atmosenv.2016.09.035, n.d.

Zieger, P., Fierz-Schmidhauser, R., Weingartner, E. and Baltensperger, U.: Effects of relative humidity on aerosol light scattering: results from different European sites, *Atmospheric Chem. Phys.*, 13(21), 10609–10631, 2013.

Zieger, P., Fierz-Schmidhauser, R., Poulain, L., Müller, T., Birmili, W., Spindler, G., Wiedensohler, A., Baltensperger, U. and Weingartner, E.: Influence of water uptake on the aerosol particle light scattering coefficients of the Central European aerosol, *Tellus B*, 66(0), doi:10.3402/tellusb.v66.22716, 2014.

Acronymes

ACE : Aerosol Characterization Experiment

ACTRIS : Aerosol, Cloud and Trace gases Research Infrastructure Network

ADRIMED : Aerosol Direct Radiative Impact on the regional climate in the MEDiterranean

AE : Aethalomètre

AERONET : AErosol RObotic NETwork

AOD : Aerosol Optical Depth

ARL : Air Resource Laboratory

ATM : Atmosphère

CCN : Cloud Condensation Nuclei

CDNC : Cloud Droplet Number Concentration

ChArMEx : Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment

CFR : Code of Federal Regulations

CPC : Condensation Particule Counter

CWT : Continuous Wavelet Transform

CZ : Cézeaux

DM : Dark Measurement

DMA : Differential Mobility Analyser

EARLINET : European *Aerosol* Research Lidar Network

EBC : Equivalent Black Carbon

ECMWF : European Centre for Medium-Range Weather Forecasts

FT : Free Troposphere

GAW : Global Atmospheric Watch

GES : Gaz à Effet de Serre

HGF : Hygroscopic Growth Factor

HTDMA : Hygroscopic Tandem Differential Mobility Analyser

Hysplit : Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory Model

ISAC : Institute of Atmospheric Sciences and Climate

NASA : National Aeronautics and Space Administration

LaMP : Laboratoire de Météorologie Physique

LFA : Laboratorio de Fisica de la Atmosfera

LGGE : Laboratoire de Glaciologie et Géophysique de l'Environnement

LIDAR : Light detection and Ranging

LSCE : Laboratoire de Sciences du Climat et de l'Environnement

LWC : Liquid Water Content

MAAP : Multi Angles Absorption Photometer

MAC : Mass Absorption Cross-Section

ML : Mixing Layer

Nd :YAG : grenat d'yttrium-aluminium dopé au néodyme

NOAA : National Oceanic and Atmospheric Administration

OMS (WHO) : Organisation Mondiale de la Santé (World Health Organisation)

OPC : Optical Particle Counter

OPGC : Observatoire de Physique du Globe de Clermont-Ferrand

PBS : Polarization Beam Splitter

PHOTONS : Photométrie pour le Traitement Opérationnel de Normalisation Satellitaire

PSD : Particle Size Distribution

PSI : Paul Scherrer Institut

RF : Radiative Forcing

SBDART : Santa Barbara DISORT Atmospheric Radiative Transfer

SIRTA : Site Instrumental de recherche par Télédétection Atmosphérique

SMPS : Scanning Mobility Particle Sizer

SPALI10 : SpAin Lidar Intercomparison 2010

SSA : Single Scattering Albedo

STRAT : Structure of the Atmosphere

SU : Stockholm University

TOA : Top of the Atmosphere

TROPOS : Leibniz Institute for Tropospheric Research

TSI : Trust Science Inovation

UMSA : Universidad Mayor de San Andrés

UV : Ultra-Violet

WAI : Whole Air Inlet

WCT : Wavelet Covariance Technique

WRF : Weather Research and Forecasting

Sommaire des Figures et Tableaux

Figures :

Figure 1.1 : Distribution en taille multi modale schématique avec les processus de formation et de puits de particules et des exemples de particules pour chaque mode (référence : www.dwd.de).	9
Figure 1.2 : Diffusion d'un rayonnement à 650 nm par une particule minérale ($m = 1,55 + 0,005i$) en fonction de l'angle pour des diamètres de 0,1 μm (en rouge), 1 μm (en noir) et 10 μm (en bleu) (logiciel MiePlot).	11
Figure 1.3 : Variations spectrales de l'albedo de simple diffusion pour différents types d'aérosols : en noir, les aérosols issus des activités urbaines, en vert, les aérosols issus des feux de biomasse, en rouge, les aérosols minéraux, et en orange, une combinaison d'origines de masses d'air (Dubovik et al., 2002 ; Mishra et al., 2014 ; Derimian et al., 2016). Les pentes entre parenthèses sont exprimées en nm^{-1}	15
Figure 1.4 : A) Forçage radiatif global en W.m^{-2} , échelle temporelle et spatiale de l'impact des émissions et incertitudes selon différents types de constituants atmosphériques. B) Distribution de probabilité des effets anthropiques sur le climat (IPCC, 2014).	16
Figure 1.5 : Représentation schématique des effets directs (A), indirects (B.1 et B.2) et semi-directs (C) des aérosols sur le climat (IPCC, 2014). CDNC signifie Cloud Droplet Number Concentration (ou concentration en nombre des gouttelettes de nuage en français) et LWC signifie Liquid Water Content (ou contenu en eau liquide en français).	17
Figure 1.6 : Schématisation de la couche de mélange atmosphérique tout au long de la journée (Stull, 1988).	19
Figure 1.7 : Impact sur la durée de vie des aérosols dans les différentes couches de l'atmosphère selon les processus de déposition sèche et humide et selon leur taille (Lagzi et al., 2014).	21
Figure 2.1: Carte topographique du centre de la France et de la situation de la Chaîne des Puys (encadrée en noir) en 2 et 3 dimensions (www.geoportail.gouv.fr).	25
Figure 2.2: Coefficient de diffusion en fonction de la taille des particules à partir d'un code de Mie.	28
Figure 2.3: Comparaison du coefficients d'absorption de l'aéthalomètre à 660 nm en fonction de ceux du MAAP à 670 nm t de l'aéthalomètre à 660 nm a) non compensé données non corrigées(b_{atm}) et b) données compensées par la correction proposée par Weingartner et al. (2003).	32

Figure 2.4: Carte des emplacements des photomètres inscrits dans le réseau AERONET dans le monde.	35
Figure 2.5: Principe de fonctionnement schématique de la mesure LIDAR. Exemple de signal pour une couche d'aérosols en altitude.	37
Figure 2.6: Partie optique du LIDAR de Clermont Ferrand situé sur le toit du Laboratoire du campus universitaire des Cézeaux. Dans le boîtier du système optique, NS signifie neutral density filter, BS beam splitter, PBS polarization beam splitter et IF interference filter.	38
Figure 2.7: Effets des corrections apportées à un profil LIDAR brut (pointillés noirs) analogique du 27 Septembre 2014 à 5h20: conversion en mV (ligne pleine noire), correction du Dark Measurement (en rouge), du décalage de bin (en vert), correction du bruit de fond de ciel (en magenta) et correction par l'altitude (en bleu).	39
Figure 2.8: Profils Pr^2 (à gauche) de la journée du 27 septembre 2014 à 5h20 (en bleu), 5h30 (en rouge) et 19h (en noir) ainsi que le rapport LIDAR (L_{aer} , au milieu) utilisé dans l'inversion en fonction de l'altitude, et le signal rétrodiffusé (à droite) calculé à partir de l'inversion de Klett.	41
Figure 2.9: a) Schéma représentatif du LIDAR et du recouvrement entre le champ de vision du télescope (en violet) et la dispersion du laser (en vert), b) fonction de recouvrement théorique, et c) son application sur le profil vertical du 27 septembre 2014 à 5h20 à partir du maximum du signal Pr^2_{max} (trait plein noir similaire au r_B) jusqu'au seuil de 20% du recouvrement (pointillés noirs).	43
Figure 2.10: Résultat de la comparaison entre la mesure du maximum de signal Pr^2 et l'altitude de recouvrement total r_B	45
Figure 2.11: Détails de la méthode de masque nuage appliquée au 1 ^{er} mars 2016 à partir du signal LIDAR Pr^2 normalisé (a) du 1 ^{er} mars 2016, du calcul de la déviation standard pour chaque profil en 2 et 3 dimensions (b et c). Le masque nuage est alors déterminé avec un seuil de la déviation standard de 0,8 et est représenté en d.	46
Figure 2.12: Séries temporelles (à gauche) de la dépolarisation LIDAR et (à droite) des flags déterminés par l'algorithme STRAT sur la journée du 15 mars 2016. En rouge est représenté la présence d'aérosols dans la couche de mélange, en orange la présence d'aérosols en troposphère libre, en bleu clair la présence de nuages, en bleu foncé les zones moléculaires et en bleu marine les zones de bruit du signal.	48
Figure 2.13: Schématisation du principe de mesure de l'instrument MODIS depuis les satellites Terra et Aqua. Les rayonnements solaires sont représentés en traits pleins jaunes, et sa réflexion par la surface de la Terre en traits pointillés jaunes. Le rayonnement thermique émis par la Terre est représenté en traits pointillés rouge.	49

- Figure 3.1: Distribution en taille volumique provenant des mesures in-situ (croix noires) et du photomètre (ligne noire en gras) du 7 Février 2011 à 11h03 UTC. Les régressions log-normales in-situ du SMPS (en rouge) et de l'OPC (en bleue) sont regroupées et la ligne en pointillés noirs représente la somme des deux régressions. 55
- Figure 3.2 : Séries temporelles de la dépolarisation LIDAR (en haut) et de la classification des couches atmosphériques par STRAT (en bas) pour le 21 et 22 Février 2016. La zone verte représente un cas d'atmosphère homogène et la zone rouge un cas d'atmosphère hétérogène sans nuage. 57
- Figure 3.3: Haut: Série temporelle (UTC) du coefficient de rétrodiffusion LIDAR du 29 Septembre 2011 à 5 min de résolution temporelle et 15 m de résolution verticale. Les points verts en haut de la figure indiquent la possibilité d'utiliser l'inversion Klett sur les profils LIDAR et les points noirs l'absence de mesure. La ligne noire en pointillé représente l'altitude de la station PUY. Bas : Hauteur de couche de mélange (ligne verte) et contribution de la couche de mélange (R_{ML} , ligne bleue). 58
- Figure 3.4 : Série temporelle des disponibilités instrumentales et application du filtre STRAT (cyan) sur les profils LIDAR (bleu) sur l'année 2011. Chaque couleur représente un instrument ou un ensemble d'instruments et les zones noires (synchronisation des instruments) représentent les points sélectionnés pour cette étude. 59
- Figure 3.5 : Coefficient d'extinction in-situ à 675 nm calculé à partir des mesures du néphélomètre et du MAAP en fonction de a) l'AOD du photomètre et c) un zoom sur les faibles extinctions, b) le coefficient d'extinction établie par le photomètre pour chaque saison et d) un zoom sur les faibles extinctions. Les lignes rouges pleines et en pointillées représentent respectivement les régressions linéaires de la comparaison et les zones de prédiction établies par l'écart type et la ligne noire représente la ligne 1:1. 60
- Figure 3.6: Coefficient d'extinction in-situ en fonction du coefficient d'extinction photométrique à 675 nm pour les cas d'atmosphère homogène colorés par la hauteur de la couche de mélange (ML: couche de mélange, FT: troposphère libre). 62
- Figure 3.7: Coefficient d'extinction in-situ en fonction du coefficient d'extinction photométrique en prenant en compte la contribution de chaque couche sur la colonne atmosphérique. Les points sont colorés en fonction de l'humidité relative moyenne entre les deux sites. La régression linéaire rouge ainsi que les ronds pleins correspondent aux cas de couche de mélange (ML) et la régression bleue ainsi que les croix correspondent aux cas de troposphère libre (FT). 64
- Figure 3.8 : Coefficient d'extinction in-situ sec en fonction du coefficient d'extinction photométrique en prenant en compte une décroissance linéaire du coefficient d'extinction avec l'altitude. 66

Figure 3.9: Paramètres de la distribution en taille d'aérosols in-situ en fonction des paramètres de la distribution en taille d'aérosols photométrique pour le mode fin (en haut) et le mode grossier (en bas) en fonction des saisons. Les figures de gauche correspondent à l'analyse des diamètres des particules et les figures de droite, à l'analyse des concentrations volumiques. 67

Figure 3.10: Paramètres de la distribution en taille d'aérosol in-situ en fonction des paramètres de la distribution en taille d'aérosol photométrique pour le mode fin (en haut) et le mode grossier (en bas) pour les cas homogènes, avec l'application des contributions de chaque couche d'aérosol, et en fonction de la couche d'aérosol (ML en rouge ou FT en bleu). 68

Figure 3.11: Paramètres de la distribution en taille d'aérosol in-situ en fonction des paramètres de la distribution en taille d'aérosol photométrique pour le mode fin (en haut) et le mode grossier (en bas) en fonction l'humidité relative et après avoir appliqué les facteurs hygroscopiques (HGF) aux distributions en tailles in-situ. 71

Figure 3.12 : Distribution en taille surfacique moyenne pour le cas des masses d'air océaniques. Cas sec en noir, cas humide avec $HGF = 1,4580$ en bleu et cas humide avec $HGF = 1,4580$ pour les particules submicroniques et $HGF = 1,7330$ pour les particules supermicroniques en rouge. 73

Figure 3.13 : Comparaison des coefficients d'extinction établie à partir du photomètre et du calcul de Mie selon a) des distributions en taille sèches, et b) des distributions en taille humides. 75

Figure 4.1: Carte des lieux d'études des feux de biomasse en Amérique du Sud. Les zones vertes représentent la couverture forestière et les zones roses la surface forestière perdue entre 2000 et 2014 (www.earthenginepartners.appspot.com). 81

Figure 4.2: Moyennes mensuelles des précipitations (histogramme), et des températures minimales (ligne bleue) et maximales (ligne jaune) à La Paz, Bolivie (www.andes-amazonia.com, données météorologiques de l'aéroport de El Alto). 82

Figure 4.3: Exemple de variation standard de la direction du vent mesurée à la station d'altitude de Chacaltaya (5240 m) entre le 31 Mai 2015 et le 2 Juin 2015 avec 15 min de résolution.... 83

Figure 4.4: Variations journalières de la fraction des cas de couche de mélange (ML, en rouge), de troposphère libre (FT, en bleu) et des cas de troposphère libre modifiée (gFT, en noir) pour chacune des trois saisons (humide en haut, sèche au centre et influencée par les feux de biomasse en bas). Les marqueurs sont définis selon la déviation standard de la direction du vent mesurée depuis la station d'altitude de Chacaltaya (5240 m). 84

Figure 4.5: Carte de la région de La Paz centrée sur la station de Chacaltaya et définition des clusters (numérotés de 1 à 5) pour la classification des rétrotrajectoires. Exemple des rétrotrajectoires du 3 Août 2012 (24 rétrotrajectoires sur 12h). Le repère blanc représente 100 km. 86

Figure 4.6: Médianes mensuelles du coefficient d'absorption à 500 nm (a), du coefficient de diffusion à 500 nm (b), du coefficient d'extinction (c) et de l'albédo de simple diffusion (d) mesurées à la station de CHC sur les 3 ans de 2012 à 2014. Les lignes correspondent à la médiane et les barres au domaine délimité par les 25 ^{ième} et 75 ^{ième} percentiles.....	87
Figure 4.7: Variations journalières des médianes du coefficient de diffusion, du coefficient d'absorption, du coefficient d'extinction et de l'albédo de simple diffusion (de haut en bas) pour la saison humide (WET), sèche (DRY) et influencée par les feux de biomasse (BB) à 500 nm. Les barres représentent les 25 ^{ième} et 75 ^{ième} percentiles.....	88
Figure 4.8 : Epaisseur optique mesurée le 21 septembre 2015 par l'instrument MODIS installé sur le satellite Terra.....	89
Figure 4.9 : Comparaison des épaisseurs optiques établies par les mesures photométriques et satellites en fonction de la distance entre les deux points de mesures (à gauche) et en fonction de la saison (à droite).	90
Figure 4.10 : Rose des vents des rétrotrajectoires sur 12h pour chaque saison et histogrammes des propriétés optiques médianes et percentiles (25 ^{ième} et 75 ^{ième}) à 500 nm pour chaque cluster. Cluster 1 en noir, cluster 2 en orange, cluster 3 en bleu, cluster 4 en vert et cluster 5 en rouge.	92
Figure 4.11 : Résultats du test U de Wilcoxon-Mann-Whitney entre les coefficients d'extinction de chaque cluster et pour les trois saisons. Un test positif est représenté en vert.	93
Figure 4.12: Rétrotrajectoires sur 12h des masses d'air arrivant à la station de Chacaltaya calculées entre 2012 et 2014 en fonction de leurs altitudes.	95
Figure 4.13: a) Application de la classification des rétrotrajectoires sur 96h selon la couche de mélange (en rouge) et la troposphère libre (en bleu) pour chaque saison. b) Propriétés optiques médianes et percentiles (25 ^{ième} et 75 ^{ième}) des aérosols mesurées depuis la station de mesures in-situ de Chacaltaya entre 2012 et 2014 à 500 nm pour les cas de couche de mélange (première barre), les cas intermédiaires (barre centrale) et les cas de troposphère libre (troisième barre) pour chacun des clusters.....	96
Figure 4.14: Résultats du test U de Wilcoxon-Mann-Whitney entre les coefficients d'extinction de chaque cluster et pour les trois saisons. Un test positif en couche de mélange est représenté en rouge, et en troposphère libre en bleu. Les résultats positifs du test sur la comparaison des mesures en couche de mélange et en troposphère libre pour un même cluster sont représentés en vert.	97
Figure 4.15 : Résultats du test U de Wilcoxon-Mann-Whitney entre les albédos de simple diffusion de chaque cluster et pour les trois saisons. Un test positif en couche de mélange est représenté en rouge, et en troposphère libre en bleu. Les résultats positifs du test sur la	

comparaison des mesures en couche de mélange et en troposphère libre pour un même cluster sont représentés en vert. 99

Figure 4.16: Albédo de simple diffusion mesurée depuis la station de Chacaltaya en fonction de la longueur d'onde a) pour chaque saison et b) pour chaque cluster, et pour tout le jeu de données. La pente pour chaque cluster est indiquée entre parenthèses et en nm^{-1} 100

Figure 4.17: Albédo de simple diffusion mesuré depuis la station de Chacaltaya en fonction de la longueur d'onde pour chaque saison (de gauche à droite), chaque couche atmosphérique (couche de mélange en-haut et troposphère libre en bas) et pour chaque cluster (en couleur). 101

Figure 5.1 : Disponibilité instrumentale sur le site du Puy de Dôme pour l'année 2015. 106

Figure 5.2 : Résultats des méthodes de détermination des conditions atmosphériques pour l'année 2015. ML : toutes les méthodes indiquent que la station de mesures se situe en condition de couche de mélange. FT : toutes les méthodes indiquent que la station mesure en condition de troposphère libre. ML 3/4 : une seule des méthodes n'indique pas que la station mesure en condition de couche de mélange. FT 3/4 : une seule des méthodes n'indique pas que la station mesure en condition de troposphère libre (la couleur indique la méthode en défaut). Interface : deux méthodes indiquent que la station mesure en condition de troposphère libre et deux autres en couche de mélange. D'après Farah et al. (en préparation). 107

Figure 5.3 : Altitude maximale des mesures des aérosols vus par le photomètre. 109

Figure 5.4 : Série temporelle de la contribution de la troposphère libre (FT ratio, R_{FT}) pour l'année 2015 selon l'équation 5.2 en bleu, 5.3 en rouge et corrigé par l'altitude maximale de présence d'aérosols en noir. Calculs réalisés à 675 nm. 111

Figure 5.5 : Série temporelle de la contribution des aérosols de la troposphère libre à partir du rapport entre les mesures photométriques réalisées depuis la station PUY et celles réalisées sur le campus des Cézeaux. Calculs réalisés à 675 nm. 113

Figure 5.6 : a) Comparaison des épaisseurs optiques obtenues à partir des photomètres placés sur le campus des Cézeaux (CZ, 420 m) et sur la station du puy de Dôme, (PUY, 1465 m). Les points et régressions noirs correspondent aux conditions de couche de mélange au niveau de la station PUY, les points et régressions bleus, aux conditions de troposphère libre, et les points et régressions rouges aux cas pour lesquels la hauteur de la couche de mélange est au niveau de la station PUY (WCT = 1465m). b) Médianes horaires, 25^{ième} et 75^{ième} percentiles du rapport des épaisseurs optiques pour les cas pour lesquels WCT = 1465 m. Calculs réalisés à 675 nm 114

Figure 5.7 : Variations journalières et saisonnières de la hauteur de la couche de mélange (à gauche) et de la contribution optique des aérosols de la troposphère libre (à droite) à partir des

mesures LIDAR réalisées depuis le campus des Cézeaux sur l'année 2015. Mesures réalisées à 355 nm..... 115

Figure 5.8 : Comparaison des contributions des aérosols de troposphère libre selon les trois méthodes de l'étude. La méthode des photomètres ne prend en compte que les cas pour lesquels la totalité de la troposphère libre est mesurée (cas en rouge sur les Figures 6.5 et 6.6). Les cercles noirs et la régression bleue présentent les résultats de la comparaison des méthodes en prenant en compte l'altitude maximale de présence d'aérosol établie section 5.1.1.1. 116

Figure 5.9 : Contribution des aérosols de troposphère libre sur toute la colonne atmosphérique pour chaque saison et à partir de chacune des méthodes. En vert, la méthode du couplage in-situ/photomètre, en noir, la méthode du couplage des deux photomètres, et en rouge, la méthode LIDAR..... 118

Figure 5.10 : De haut en bas : Rayonnement global mesuré par un pyranomètre et modélisé avec SBDART à la surface du globe, épaisseur optique mesurée par un photomètre et forçage radiatif pour la journée du 30 septembre 2015 au niveau du campus des Cézeaux (CZ, 420 m)..... 120

Figure 5.11 : Différences moyennes, maximales et minimales entre le forçage radiatif de référence ΔF_{ref} et le forçage radiatif dû aux aérosols en faisant varier chaque paramètre étudié Tableau 5.4. A gauche, figurent les effets des paramètres aérosols et à droite ceux des gaz traces. En bleu, les effets négatifs sur le forçage radiatif de référence et en rouge les effets positifs. 122

Figure 5.12 : a) Rayonnement global de surface mesuré par un pyranomètre en noir et établi à partir du modèle SBDART et des mesures photométriques (rn bleu) ou des mesures in-situ (en rouge). b) forçage radiatif issu des deux méthodes pour la journée du 30 Septembre 2015.. 123

Figure 5.13 : Médianes saisonnières, percentiles 25 et percentiles 75 de a) l'AOD et b) du forçage radiatif propre à l'aérosol de la totalité de la colonne atmosphérique sur l'année 2015. 124

Figure 5.14 : a) Moyennes journalières du forçage radiatif des aérosols de la totalité de la colonne atmosphérique pour chaque mois de l'année 2015. Moyennes et écarts types présentant b) un forçage moins important en début et en fin de journée ou c) de fortes variabilités. 125

Figure 5.15 : Moyenne mensuelle du forçage radiatif des aérosols de troposphère libre en bleu et de la totalité de la colonne atmosphérique en gris..... 127

Tableaux :

Tableau 2.1: Caractéristiques techniques des néphélomètres TSI 3563 basé au puy de Dôme et Ecotech Aurora 3000 basé à Chacaltaya.	29
Tableau 2.2: Paramétrisation du facteur hygroscopique HGF en fonction de l'humidité relative (RH) à partir des mesures HTDMA installé au Puy de Dôme (Holmgren et al., 2014) et exemple de HGF à 90 % d'humidité pour des particules de 25 nm, 50 nm et 165 nm de diamètre.	33
Tableau 2.3: Facteur hygroscopique (HGF) et calculé à partir des κ calculés au puy de Dôme à partir de mesures par impacteur en cascade de la composition chimique de l'aérosol sur filtre (Bourcier et al., 2012).	34
Tableau 3.1 : Propriétés optiques (coefficient d'extinction) et microphysiques (concentration volumique et diamètre de particules) pour chacune des 3 conditions analysées mettant en jeu différents coefficients hygroscopiques et pour chacun des modes de la distribution en taille.	72
Tableau 4.1: Pentés caractéristiques de la dépendance spectrale de l'albédo de simple diffusion issues de la littérature pour différents type de masse d'air (désertiques en orange, urbaine en noir, et de feux de biomasse en vert).....	80
Tableau 5.1 : Forçage radiatif (RF) en $W.m^{-2}$ pour différents types de particules et différentes régions du monde.	104
Tableau 5.2 : Forçage radiatif et forçage radiatif efficace global au sommet de l'atmosphère (TOA), en surface ou dans l'atmosphère pour différents types de particules d'aérosols (Bellouin et al., 2013).....	104
Tableau 5.3 : Configuration de l'atmosphère de référence (sans aérosol) suivant les acronymes utilisés par le modèle de transfert radiatif SBDART pour les moyennes latitudes.....	119
Tableau 5.4 : Intervalle de sensibilité pour chacun des paramètres atmosphériques testé et valeurs pour l'atmosphère de référence (entre parenthèses).	122

Bilan des activités

Participation à des conférences internationales:

- 22th European Aerosol Conference, Tours, France. 5 – 9 September 2016.
- 4^{ème} workshop du CNFGG, WP2 WP20, Orléans, France. 5 – 7 Novembre 2014.
- 4th ACTRIS Workshop WP2 WP20, Lille, France. 28 – 31 Octobre 2014.
- 4th ACTRIS General Meeting, Clermont-Ferrand, France. 10 – 13 June 2014.
- 10th EARLINET General Assembly, Limassol, Cyprus, 26 – 29 Novembre 2013.

Participation à des écoles scientifiques:

- Latin American and Caribbean Aerosol Measurements School: from measurements technologies to applications, La Paz, Bolivia. 22 – 27 June 2015.
- ACTRIS Winter School: “Advanced analysis of atmospheric processes and feedbacks and atmospheric-biosphere interactions”. Hyytiälä, Finland. 10 – 22 March 2014

Liste des publications :

Freney, E., Sellegri, K., Asmi, E., Rose, C., **Chauvigné, A.**, Baray, J.L., Colomb, A., Hervo, M., Montoux, N., Bouvier, L., and Picard, D. Experimental Evidence of the Feeding of the Free Troposphere with Aerosol Particles from the Mixing Layer. *AAQR* (2015).

Freville, P., Montoux, N., Baray, J.L., **Chauvigné, A.**, Réveret, F., Hervo, M., Dionisi, D., Payen, G., and Sellegri K. “LIDAR Developments at Clermont-Ferrand—France for Atmospheric Observation.” *Sensors* 15, no. 2 (2015): 3041–69.

Chauvigné, A., Sellegri, K., Hervo, M., Montoux, N., Freville, P. and Goloub, P. “Comparison of the Aerosol Optical Properties and Size Distribution Retrieved by Sun Photometer with in Situ Measurements at Midlatitude.” *Atmospheric Measurement Techniques* 9, no. 9 (2016): 4569.

Activités de vulgarisation scientifiques, enseignement et maintenance de l'instrumentation:

- Visite de la station de mesure du puy de Dôme dans le cadre de la Fête de la Science pour un large public.
- Monitorat (cours magistraux, travaux dirigés et travaux pratiques en optiques, mécanique et électromagnétisme).
- Participations aux séances de routines pour la maintenance des mesures du site instrumenté du Puy de Dôme, mise en place d'instruments nécessaire à ces travaux de thèse et tests réalisés à partir du LIDAR pour l'amélioration de la restitution des mesures.

Résumé

La présence des particules d'aérosols dans l'atmosphère influencent le bilan radiatif de notre planète et ainsi son équilibre climatique. Selon les différents mécanismes d'émission et processus de transports atmosphériques, les aérosols peuvent être entraînés dans la troposphère libre et ainsi y résider pendant plusieurs semaines. Les contributions optiques et radiatives des aérosols de troposphère libre par rapport à celles de la colonne atmosphérique sont encore mal évaluées du fait de la difficulté d'accès et du manque de mesures sur de longues périodes. Ces travaux de thèse se sont donc appuyés sur deux sites d'altitude présentant des topographies adéquates pour l'analyse des aérosols de troposphère libre : le site ACTRIS/GAW du puy de Dôme (PUY, 1 465 m, France) et le site ACTRIS/GAW de Chacaltaya (CHC, 5 240 m, Bolivie). Ces deux sites disposent d'un large jeu de données in-situ et de télédétection. Les résultats montrent ainsi l'importance de la prise en compte de la structure verticale de l'atmosphère et de l'effet de l'humidité sur les propriétés des aérosols dans l'analyse des mesures. Pour la première fois à notre connaissance, l'utilisation de ces techniques instrumentales depuis la station de mesures météorologiques la plus haute du monde (Chacaltaya) a permis d'établir les propriétés optiques des aérosols dans cette région largement influencée par la ville de La Paz et par les émissions de la forêt amazonienne. Les résultats montrent que l'influence des feux de forêt amazoniens à la fin de la saison sèche peut accroître les propriétés optiques de l'aérosol à cette altitude d'un facteur de 3,5 en moyenne et celles de la troposphère libre de 28 à 80%. La station est d'ailleurs régulièrement influencée par les conditions de la troposphère libre (30% du temps en journée et 60% la nuit). Ce manuscrit présente également des méthodes originales pour la détermination des contributions optiques et radiatives des aérosols de troposphère libre avec l'utilisation conjointe des mesures in-situ, photométriques et LIDAR. Les résultats établissent ainsi des contributions optiques de la troposphère libre au-dessus du puy de Dôme variant de 20% en hiver à 80% en été en moyenne. L'utilisation du modèle de transfert radiatif SBDART permet d'évaluer les contributions radiatives correspondantes qui oscillent entre 13 et 40% pour les courtes longueurs d'onde, soit des forçages radiatifs de -1 W.m^{-2} à -10 W.m^{-2} . Les différentes sources d'aérosols en surface influencent donc fortement la composition de la troposphère libre, qu'il est alors nécessaire de prendre en compte dans le bilan radiatif global de notre planète.

Mots clés : aérosols, troposphère libre, mesures in-situ, télédétection, propriétés optiques, effet radiatif.

Abstract

Atmospheric aerosols impact the earth radiative budget and its climate. Depending on their emission mechanisms and atmospheric transport processes, aerosols can be injected into the free troposphere where their lifetime is increased to up to several weeks. Optical and radiative properties of free tropospheric aerosols are still poorly known because of the difficulties to access high altitudes over long periods of time. The present work is based on two high altitude sites measurements: the ACTRIS/GAW station of puy de Dôme (PUY, 1 465 m, France) and the ACTRIS/GAW station of Chacaltaya (CHC, 5 240 m, Bolivia). These two sites are equipped with a unique set of both in-situ and remote sensing measurements. Results first show the importance of taking into account the vertical atmospheric structure and the hygroscopic properties of aerosols when combining in situ and remote sensing measurements. Measurements from the highest atmospheric station in the world (Chacaltaya), provide for the first time to our knowledge, the aerosol optical properties from this region of the world, segregated into mixing layer aerosols and free tropospheric aerosols. The site is both influenced by anthropogenic emissions from the nearby city, La Paz and pristine emissions from the Amazonian forest. From these measurements, we observe that biomass burning emissions can increase column aerosol optical properties by an average factor of 3,5 and the free tropospheric aerosol optical properties between 28 and 80%. The station is regularly influenced by free tropospheric conditions (30% of the time during daytime and 60% during nighttime). This manuscript is also presenting original methods for retrieving the optical and radiative aerosol contributions from the free tropospheric layer to the total atmospheric column using a combination of in-situ, photometric and LIDAR measurements. Results show that free tropospheric contributions above puy de Dôme station vary from 20% during winter to 80% during summer. The use of the radiative transfer model SBDART allows to evaluate the corresponding shortwave radiative contributions of free tropospheric aerosols between 13 and 40% (between -1 and -10 W.m^{-2}). Thus, the different surface aerosol emissions influence significantly the free tropospheric composition which is essential for radiative budget determination.

Keywords : aerosols, free troposphere, in-situ measurements, remote sensing, optical properties, radiative effect.