

N° d'ordre : DU 2337

Université Blaise Pascal – Clermont Ferrand

Ecole Doctorale des Sciences Fondamentales N°740

THESE

Pour obtenir le titre de Docteur ès Sciences de l'Université Blaise Pascal

Mention Physique de l'atmosphère

Présentée et soutenue par

Maxime HERVO

Etude des propriétés optiques et radiatives des
aérosols en atmosphère réelle:
Impact de l'hygroscopicité.

Thèse dirigée par:

Karine SELLEGRI

et

Jean-Claude ROGER

Soutenue publiquement le 13/02/2013 devant la commission d'examen:

Rapporteurs

Pr Philippe GOLOUB
Dr Giovanni MARTUCCI

LOA
C-CAPS, NUIG

Examineurs

Dr Marc MALLET

LA

V5.2 -- 03/06/2013

Remerciements:

Plus de 100 mois après avoir étudié pour la première fois la physique sur le campus des Cézeaux, il est temps de faire un petit bilan avant de partir quelques années sur une île.

Comme il se doit, je remercie Wolfram pour m'avoir accueilli au sein du Laboratoire de Météorologie Physique. Je te remercie, pas seulement pour la thèse passée au sein du laboratoire, mais aussi pour avoir continué d'enseigner dans un master avec un seul étudiant et pour les cours de mécanique de fluide en tête à tête.

Ensuite, bien sûr, je pense à Karine qui m'a encadré dans cette thèse. Toujours des bons conseils, même si j'ai trop souvent attendu avant d'oser franchir la porte de ton bureau avant d'aller oser en parler. Non seulement tu m'as permis de donner du sens à une montagne de données, mais aussi de réaliser de nombreuses missions, qui même si elles ne sont pas directement dans ma thèse, m'ont beaucoup appris. Je pense aux missions en Irlande, au Népal, en Suisse, en Allemagne, en Italie, à Lyon ou même aux longues semaines de combat avec la CCN pour lui bichonner un charmant programme d'acquisition.

Jean Claude, c'est grâce à toi que je me suis lancé dans cette aventure. Malheureusement les circonstances ont fait que l'on n'a pas pu continuer cette aventure ensemble. J'espère que l'occasion se présentera pour finaliser ce dont on a souvent parlé.

Viennent ensuite ceux qui ont partagé le bureau 8220 pendant ces quelques années : Julien, Boris, Guillaume et plus récemment Clémence Manu et Gwenno. Matlab n'a plus de secret pour nous, la bière non plus, même si une intruse préfère la servir pendant les matchs de rugby plutôt que de la boire. Je n'oublie pas tous les exilés du bâtiment 5, (Laurent Fred&Cécé, Christelle, Elise, Jimmy...) qui ont partagé nos festins du RU et plus si affinité. Bon courage à ceux qui n'ont pas encore fini et à bientôt pour les autres.

Jean-Marc, Mickael et David: que serait le Puy de Dôme sans vous ? Merci pour tous ces moments au chevet des instruments dans la neige, le vent et les mouches ! Aurélie c'est grâce à ta motivation et ta bonne humeur que j'ai eu le courage de me lancer dans l'écriture de mon premier papier, merci ! Patrick, on a appris ensemble comment contrôler cet étrange laser sur le toit. Merci à toi et bon courage pour la suite. Merci, Cécile pour ton aide précieuse pour apprivoiser les dieux Grecs de l'administration: Symbad, Ulysse et leurs labyrinthes... Enfin merci à tous ceux que j'ai croisés au labo pendant ces quelques années Laetitia, Christophe, Laurent D., Mickael V., Murielle, Nadège, Olivier, Fred, Régis et tant d'autres.

Heureusement il n'y a pas que le labo dans la vie ! Merci à toi Adeline de m'avoir supporté pendant plus de 3 ans et de toujours vouloir de moi même si je suis loin sur une île. Bien sûr un grand merci à la famille Hervo qui m'a permis d'arriver jusque ici ! Je pars quand tu reviens ptite sœur, mais ce n'est que partie remise. Salutations aux nombreux habitants du 13 rue des ptits gras : Camille, Orianne, Gaspard, Pieter, Herminie, Severine, Mariane et les

autres... Ces moments passés sur un toit, entre la cathédrale et les volcans, me manquent déjà. Merci aussi aux P5C2, avec qui j'ai découvert les joies des sciences. Les « cancrenards qui ne feront jamais de physique » se retrouvent maintenant à enseigner aux quatre coins de la France, à traquer les galaxies lointaines ou les vortex d'électron-polaritons ! Bravo à vous !

Cette thèse est dédiée à Vincent avec qui j'ai commencé cette aventure mais qui n'a pas pu voir la fin.

Table des matières

Remerciements:	2
Table des matières	4
Chapitre 1 : Introduction générale	1
1.1 Contexte scientifique	1
1.2 Objectifs de la thèse	4
1.3 Structure de la thèse	4
Chapitre 2 : Propriétés microphysiques et optiques des aérosols	7
2.1 Les Aérosols	8
2.1.1 Définition	8
2.1.2 Sources	8
2.1.3 Distribution en taille	9
2.1.4 Etat de mélange	10
2.1.5 Hygroscopicité	11
2.1.6 Distribution verticale des aérosols, notion de Couche Limite	12
2.2 Impact Radiatif des aérosols	13
2.2.1 Effet Direct	13
2.2.2 Effet semi direct	14
2.2.3 Effet indirect	14
2.3 Optique des aérosols : Paramètres clés	15
2.3.1 Extinction de la lumière	15
2.3.2 Coefficient d'Ångström	16
2.3.3 Albédo de simple diffusion	17
2.3.4 Fonction de phase	17
2.3.5 Facteur d'asymétrie et rapport de rétrodiffusion	17
2.3.6 Indice de réfraction	18
2.4 Forçage radiatif et Efficacité radiative directe	19
Chapitre 3 : Instrumentation et Méthodologie	21
3.1 La station instrumentée du Puy de Dôme	22
3.1.1 La station	22

3.1.2	Mesures Physico-chimiques des aérosols :	22
3.1.3	Propriétés Optiques des aérosols	27
3.2	Télédétection	29
3.2.1	Photomètre	29
3.2.2	Lidar	31
3.3	Méthodologie, algorithmes	37
3.3.1	Rapport Masse-extinction	37
3.3.2	Calcul de l'indice de réfraction	38
3.3.3	Facteur d'accroissement optique	40
3.3.4	Rapport LIDAR	41
3.3.5	Extinction et Rapport Lidar avec le signal Lidar Raman	43
3.4	Incertitudes et précision	46
3.4.1	Distribution en taille	46
3.4.2	Propriétés optiques	47
3.4.3	Hygroscopicité	48
3.4.4	Rapport Lidar	48
3.4.5	Rapport masse extinction	48
3.5	Classification des masses d'air, Rétrotrajectoires	49
3.5.1	Hysplit	49
3.5.2	Flexpart	50
3.6	Evolution temporelle, Test saisonnier de Mann Kendall.	50
3.7	Synthèse du chapitre	51
Chapitre 4 :	Etude long terme : 5 ans de mesures au Puy de Dôme	53
4.1	Situation météorologique au Puy de Dôme.	54
4.1.1	Conditions météorologiques	54
4.1.2	Types de masses d'air	55
4.1.3	Hauteur de la Couche Limite	56
4.2	Variations long terme des propriétés optiques de l'aérosol mesurées in situ.	58
4.2.1	L'absorption σ_{abs}	58
4.2.2	La diffusion σ_{sca}	61
4.2.3	L'albedo de simple diffusion ω_0	64
4.2.4	Le coefficient d'Ångström $\text{\AA}$	66

4.2.5	Le facteur d'asymétrie g	68
4.2.6	Relation entre g et α	70
4.2.7	Carte des propriétés optiques.....	73
4.2.8	Tableau récapitulatif	75
4.3	Efficacité Radiative ΔE	77
4.4	Forçage radiatif ΔF	79
4.5	Rapport Masse extinction η	80
4.6	Rapport Lidar L	81
4.7	Comparaison des mesures in situ et de télédétection	83
4.7.1	Comparaison satellite.....	83
4.7.2	Distributions en taille de l'aérosol par mesures photométriques et in situ	84
4.8	Synthèse du chapitre	88
Chapitre 5 : Etude de cas : Les cendres de l'éruption de l'Eyjafjallajökull.....		91
5.1	Abstract.....	92
5.2	Introduction	93
5.3	Instrumentation and modelling.....	95
5.3.1	The Puy de Dôme research station	95
5.3.2	Lidar	97
5.3.3	Aircraft measurements.	97
5.3.4	FLEXPART simulations	98
5.3.5	Uncertainties discussion.....	98
5.4	Results.....	99
5.4.1	Case 1: 18 and 19 May 2010	99
5.4.2	Case 2: 18, 19 and 22 April 2010.....	107
5.5	Conclusions.....	114
Chapitre 6 : Impact de l'hygroscopicité sur les propriétés optiques et radiatives de l'aérosol. 117		
6.1	Facteur de croissance hygroscopique (GF).....	118
6.2	Facteur d'accroissement diffusion, $f\sigma_{sca}$	120
6.2.1	Fermeture sur le calcul de $f\sigma_{sca}$	120
6.2.2	Climatologie.....	121
6.2.3	$f\sigma_{sca}$ en fonction de l'origine des masses d'air	122

6.3	Facteur d'accroissement de l'absorption, de l'extinction et de ω_0	125
6.4	Facteur d'accroissement du facteur d'asymétrie et du coefficient d'Ångström.....	126
6.5	Efficacité radiative de l'hygroscopicité $d\Delta E$	126
6.6	Forçage radiatif de l'hygroscopicité.	128
6.7	Extinction Lidar	131
6.8	Rapport Lidar	133
6.9	Synthèse du chapitre	135
Chapitre 7 : Conclusions générales et perspectives		137
7.1	Conclusions générales	137
7.2	Perspectives.....	139
Bibliographie		141
Liste des figures		156
Liste des symboles et des abréviations:		161
Liste des publications.....		162
Résumé	163	
Abstract	163	

Chapitre 1 : Introduction générale

1.1 Contexte scientifique

L'environnement est aujourd'hui une thématique au cœur de nos préoccupations sociétales. Les premières prises de conscience collective de l'effet des activités humaines sur l'atmosphère ont eu lieu avec la découverte d'événements facilement identifiables qui apparaissent à l'échelle d'un continent ou du monde. Les pluies acides, le trou dans la couche d'ozone ou encore le transport de particules radioactives après la catastrophe de Tchernobyl sont certains de ces événements.

Le consensus scientifique prônant l'impact de l'Homme sur l'atmosphère, aussi bien à l'échelle locale que planétaire, de manière temporaire ou plus durable, a été rendu public dans les premiers rapports du Groupe d'Experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat (GIEC ou IPCC) en 1990 et 1995. Ces rapports mettent en évidence les observations de la montée du niveau de la mer, et de la fonte des glaces à l'échelle mondiale. Ils font le lien entre ces événements, l'augmentation de la température (+0.74°C entre 1906 et 2005, IPCC, 2007) et l'augmentation des gaz à effet de serre anthropiques. Ces changements sont accompagnés de conséquences importantes pour l'ensemble des êtres vivants. En plus des gaz à effet de serre, le rôle des activités humaines sur l'albedo terrestre et l'impact des particules d'aérosols sont d'autres facteurs du changement climatique.

C'est l'étude des particules d'aérosols qui fera l'objet de cette thèse. L'augmentation des concentrations en aérosols dans l'atmosphère est l'un des effets de l'activité humaine la plus visible. Il suffit de s'approcher d'une agglomération pour voir leur impact sur la visibilité. Ils ont également un fort impact sur la santé. On estime que près de 12 millions de Français ont vécu en 2011 dans des zones n'ayant pas respecté les valeurs limites annuelles relatives aux particules d'un diamètre inférieur à 10µm, les PM₁₀ (Ministère de l'écologie, 2012). L'enjeu sanitaire est de taille. A titre d'exemple, le programme CAFE (Clean Air For Europe) de la commission européenne a estimé qu'en France en 2000, 42 000 décès par an étaient en relation avec l'exposition chronique aux PM_{2.5} d'origine anthropique (à l'origine de maladies cardiovasculaires, respiratoires, voire de cancers).

De plus, les aérosols agissent fortement sur le bilan radiatif terrestre (e.g. Andreae, 1996; Bergstrom and Russell, 1999). Leur impact radiatif peut être divisé en 3 effets distincts: direct, semi direct et indirect. Dans cette thèse on s'intéresse au premier de ces effets: **l'effet direct**. Même si cet effet est bien documenté (e.g. Andreae et al., 2005; Haywood and Boucher, 2000; Kaufman et al., 2002), de nombreuses incertitudes subsistent (e.g. Lohmann et al., 2010). En effet, les aérosols sont le facteur climatique sur lequel l'incertitude du forçage radiatif est la plus élevée ($\pm 0.4 \text{ W.m}^{-2}$ pour l'effet direct et entre -1.1 W.m^{-2} et $+0.4 \text{ W.m}^{-2}$ pour l'effet indirect, IPCC, 2007). C'est une valeur moyenne à l'échelle planétaire mais elle peut varier de façon considérable en fonction de la région et du type d'aérosol

rencontré. A cette diversité s'ajoute le court temps de vie des aérosols qui favorisent leur variabilité spatiale et temporelle. C'est pourquoi, il est crucial de bien caractériser l'aérosol et sa présence dans l'atmosphère.

Des analyses pluriannuelles de différentes propriétés des aérosols existent dans la littérature. Notamment, des tendances à long terme ont été étudiées pour la visibilité (Mahowald et al., 2007; Putaud et al., 2004; Stjern et al., 2011), l'épaisseur optique (e.g. Augustine et al., 2008; Dubovik et al., 2002; Zhang et al., 2012), la chimie des aérosols (e.g. Tørseth et al., 2012; Weller et al., 2011), et le nombre de particule (e.g. Asmi et al., 2012; Murphy et al., 2011; Yu et al., 2012b). Des comparaisons entre les tendances modélisées et les observations ont également été publiées (e.g. Leibensperger et al., 2012; Streets et al., 2009).

Pour connaître l'impact radiatif direct des aérosols, étudier une seule de ces propriétés ne suffit pas. Selon leur composition chimique, leur taille ou leur forme, l'impact sur le climat sera très variable. Il est donc nécessaire d'étudier ce qui gouverne directement l'impact radiatif des particules: leurs **propriétés optiques**. La première étude sur plus d'une décennie et sur plusieurs sites de mesures in situ, des tendances des principales propriétés optiques, a été publiée récemment (Collaud Coen et al., 2012). 5 sites en Europe, 16 aux Etats Unis et 2 en Antarctique possèdent une série homogène de mesures directes sur plus d'une décennie. D'après cette étude, aucune réelle tendance n'est observée à l'échelle mondiale depuis le début des années 2000. Des facteurs externes, tels que la météorologie, peuvent expliquer les sensibles hausses ou baisses constatées d'une année sur l'autre. Bien que d'autres types de mesures existent, comme par exemple les mesures satellites ou des mesures intégrées sur toute l'atmosphère (réseau AERONET), les mesures in situ sont primordiales car elles permettent de d'avoir des mesures continues et de s'affranchir des conditions météorologiques (humidité, nuages).

Les mesures en **haute altitude** sont particulièrement importantes car leur représentativité est plus grande que celles faites à basse altitude, en particulier pour les validations satellites (Laj et al., 2009). En effet, les vents forts, prédominant dans la troposphère libre, permettent aux aérosols injectés dans cette partie de l'atmosphère d'être transportés sur de très longues distances (Mattis et al., 2008; McKendry et al., 2007). Leur temps de résidence peut être de plusieurs semaines (Kent et al., 1998) ce qui augment encore leur impact sur le climat. Cependant, il existe peu de mesures des propriétés optiques en troposphère libre (Collaud Coen et al., 2007; Marcq et al., 2010). Andrews et al., (2011) présentent pour la première fois une climatologie de la majorité des sites d'altitudes mesurant les propriétés optiques dans le monde. L'altitude de ces sites permet d'obtenir des mesures représentatives de la troposphère libre à certains moments de la journée. Seul deux sites présentés dans cette étude sont en Europe de l'Ouest: le Monte Cimone en Italie et le Jungfraujoch en Suisse. Les mesures optiques réalisées au Puy de Dôme depuis 2002, font donc partie d'une rare série de données en altitude, disponibles pour mieux caractériser

l'impact radiatif direct des aérosols en Europe. En associant les mesures effectuées sur ce site avec les rétrotrajectoires calculées par le modèle HYSPLIT (*HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory*), il est possible de générer une cartographie des propriétés optiques des aérosols.

En absorbant l'eau, la taille et les propriétés optiques des particules changent (Tang, 1996; Zhang et al., 2008). En effet, en fonction de leur composition chimique, les particules peuvent absorber de l'eau bien avant de se transformer en hydrométéore. Selon des études récentes (Zhang et al., 2012) l'eau contenue à l'intérieur des aérosols est même responsable d'environ 70% de l'épaisseur optique des aérosols. Nous nous attacherons donc à étudier l'impact de l'eau sur les aérosols, appelée **hygroscopicité**. L'hygroscopicité est l'un des paramètres les plus importants pour la détermination des propriétés optiques et donc les effets radiatifs des aérosols (Piliński et al., 1995; Yu et al., 2012a). Cependant, elle reste mal quantifiée dans les modèles, en particulier à cause de la proportion de particules organiques dont les propriétés hygroscopiques sont mal connues (Ward and Cotton, 2011). Mieux connaître l'impact de l'hygroscopicité sur les propriétés optiques revient donc à une meilleure caractérisation de l'effet radiatif des aérosols.

Cependant, très peu d'études mesurent **l'impact de l'hygroscopicité sur les propriétés optiques**. A notre connaissance, la première étude en laboratoire de l'impact de l'hygroscopicité sur la diffusion remonte à 1972 par Covert et al. La première étude portant sur des aérosols naturels et consacrée à l'accroissement hygroscopique de la diffusion en milieu ambiant est rapportée par Li-Jones et al. (1998). D'autres mesures ont été reportées aux Etats-Unis (Gassó et al., 2000; Kotchenruther et al., 1999) au Brésil (Kotchenruther and Hobbs, 1998) ou au sud de l'Europe (Carrico et al., 2000). Ce type d'étude est de plus en plus utilisée afin de faciliter la comparaison entre les mesures in situ sèches et les mesures de télédétection à humidité ambiante (Raut and Chazette, 2007; Zieger et al., 2011, 2012). Plus récemment, grâce à l'amélioration des moyens de mesures et l'utilisation d'un code de Mie, l'impact de l'hygroscopicité a été étudié non plus seulement sur la diffusion, mais aussi sur d'autres paramètres optiques comme l'albédo de diffusion, le rapport de rétrodiffusion ou le facteur d'asymétrie (Adam et al., 2012; Fierz-Schmidhauser et al., 2010a, 2010b; Schladitz et al., 2011; Zieger et al., 2010). Quelques études s'intéressent également à l'effet radiatif provoqué par l'hygroscopicité (Fierz-Schmidhauser et al., 2010a; Stock et al., 2011). Cependant, ces études ont été réalisées sur de courtes périodes, et à notre connaissance, sans que la variabilité temporelle à moyen terme (à l'échelle de la saison) jusqu'à long terme (à l'échelle pluriannuelle) n'ait encore été évaluée. D'autre part, les études de l'effet de l'hygroscopicité sur les propriétés optiques de l'aérosol en haute altitude sont très rares dans la littérature (Fierz-Schmidhauser et al., 2010a). La longue série de données au Puy de Dôme est donc une occasion unique de mieux caractériser l'impact de l'hygroscopicité sur les propriétés optiques et sa conséquence sur l'effet radiatif direct des aérosols.

1.2 Objectifs de la thèse

L'objectif de cette thèse est de quantifier d'une manière statistiquement fiable l'influence de l'hygroscopicité de l'aérosol sur son impact radiatif direct en atmosphère réelle de fond. Pour atteindre cet objectif, **un premier sous-objectif** est de caractériser les propriétés optiques de l'aérosol en altitude, (sur le site du puy de Dôme) ainsi que leurs variabilité temporelle (journalière, saisonnière, long terme), et spatiale (en fonction des types de masse d'air). **Le deuxième sous-objectif** est de quantifier l'impact de l'eau sur les propriétés optiques des aérosols par croissance hygroscopique, et sa variabilité spatiale et temporelle. Cette étape est indispensable pour ensuite propager cet impact sur l'effet radiatif des aérosols. L'impact radiatif étant fonction de la structure de l'atmosphère, **un troisième sous-objectif** est de fournir des profils verticaux de masse d'aérosols, dont les propriétés optiques sont connues. La co-localisation de mesures in situ en altitude et de mesures de télédétection passive et active sur de longues périodes de temps est l'occasion de générer des paramétrisations de variables nécessaires à la restitution de ces profils (rapport lidar, rapport masse-extinction) en fonction des conditions physico-chimiques (types de masse d'air) et météorologiques (humidité relative) de l'atmosphère. Ces trois sous-objectifs permettent de quantifier l'impact radiatif direct de l'aérosol en prenant en compte sa croissance hygroscopique en atmosphère naturelle à l'aide d'un code de transfert radiatif, ou comme utilisé dans cette thèse, à l'aide d'un modèle simplifié de transfert radiatif.

1.3 Structure de la thèse

Nous venons d'évoquer la grande diversité spatiale et temporelle des aérosols et la nécessité de mieux la connaître. Avant de rentrer au cœur des objectifs de la thèse, il est important de rappeler comment les aérosols agissent sur le climat et quelles sont les principales propriétés physico-chimiques et optiques qui contrôlent ces interactions entre. C'est ce que nous ferons dans le chapitre 2. Le chapitre 3 sera consacré à l'étude des instruments avec lesquels nous avons mesuré les aérosols et aux méthodes mises en place pour quantifier leurs impacts.

Le chapitre 4 est consacré à **l'étude des propriétés optiques des aérosols au puy de Dôme et leurs variations temporelles et spatiales**. Cet objectif est original parce qu'il est mené sur un site d'observation de l'atmosphère de fond et permet d'avoir une caractérisation des propriétés pertinentes pour l'impact radiatif de l'aérosol de plusieurs types de masses d'air non contaminées par la pollution locale, et cela à la fois dans la couche limite et dans la basse troposphère libre.

Le chapitre 5 décrit, sous forme d'article scientifique publié (Hervo et al. 2012, ACP), comment, sur un cas d'étude, il est possible d'utiliser la **synergie entre l'instrumentation in situ et de télédétection pour restituer un profil vertical d'aérosol**. Cette étude a été réalisée pour la première fois au cours d'un événement marquant de cette thèse, l'éruption du volcan islandais Eyjafjallajökull en 2010. En effet, lors de cet événement, le calcul du profil

vertical des aérosols était critique pour connaître l'impact climatique des aérosols volcaniques mais aussi pour la sécurité aérienne. Nous avons utilisé le large spectre d'instrumentation (télédétection, in situ au sol et aéroporté) et de modélisation pour répondre à cet objectif.

Enfin, dans le chapitre 6, nous nous attachons à déterminer **quel est l'impact de l'hygroscopicité sur les propriétés optiques des aérosols et l'efficacité radiative qui en résulte**. Dans ce chapitre, nous présentons l'étude qui, pour la première fois à notre connaissance, a permis de mettre en évidence les variations saisonnière et spatiale de l'impact de l'hygroscopicité sur les principales propriétés optiques grâce à une base de données pluriannuelle.

Chapitre 2 : Propriétés microphysiques et optiques des aérosols

Ce chapitre a pour but, après avoir défini et rappelé les notions fondamentales permettant de caractériser les particules d'aérosols, de présenter les propriétés hygroscopiques et optiques essentielles qui seront utilisées au cours de cette étude. Nous nous attacherons en particulier à décrire les propriétés optiques extensives des aérosols (coefficients d'absorption et de diffusion) et intrinsèques des aérosols (coefficient d'Ångström α , l'albedo de simple diffusion ω_0 , la fonction de phase P_{11} , le facteur d'asymétrie g ou encore l'indice de réfraction m).

2.1 Les Aérosols

2.1.1 Définition

Les particules d'aérosols sont, par définition, l'ensemble des particules liquides et/ou solides, en suspension dans l'atmosphère, à l'exception des hydrométéores (gouttelettes et cristaux de glaces constituant les nuages). Dans la suite du manuscrit, les termes *particule* ou *aérosol* pourront être utilisés à la place de *particule d'aérosol*.

2.1.2 Sources

La variabilité des sources et des processus de formation et d'émission des aérosols dans l'atmosphère, entraîne une très grande variété de compositions et de types de particules dans le temps et l'espace. Les aérosols peuvent être séparés selon leur origine qui peut être soit anthropique soit naturelle (Bauer and Menon, 2012). Les principales sources naturelles sont les embruns marins, les poussières désertiques et les aérosols volcaniques. Les aérosols naturels représentent 89% des émissions mais seulement 52% de l'épaisseur optique totale. (Satheesh and Krishna Moorthy, 2005). Les sources anthropiques sont issues principalement des rejets industriels (fumées, poussières), du trafic routier et aérien, des feux de biomasses ou encore de l'agriculture.

On peut aussi différencier les aérosols primaires des aérosols secondaires. Les aérosols sont dits primaires dans le cas de particules émises directement dans l'atmosphère comme les embruns marins, les aérosols volcaniques ou les fumées de combustion. A l'inverse, les aérosols secondaires sont issus de réactions chimiques en phase gazeuse ou aqueuse. Ces réactions mènent à la conversion de composés gazeux en particules par nucléation ou condensation. Ces réactions peuvent aussi mener à la conversion de composés gazeux volatiles en composés de faibles volatilités après leur dissolution dans des gouttelettes de nuage. Les gaz précurseurs sont principalement émis par les processus de combustion, ou des émissions naturelles.

La Figure 2-1 (Adachi et al., 2010) représente un aérosol observé par microscope électronique et sa reconstitution 3D. Sur cette figure la complexité des aérosols est mise en évidence. D'après les auteurs, elle est constituée de suie primaire sur laquelle de la matière organique s'est condensée et qui s'est coagulée avec des particules de sulfate. Adachi et al. (2010) mettent également en évidence l'importance de la disposition des particules de suie dans l'aérosol et de l'état de mélange sur l'absorption des aérosols. Nous reviendrons dans le paragraphe 2.1.4 sur l'impact de l'état de mélange sur les propriétés optiques.

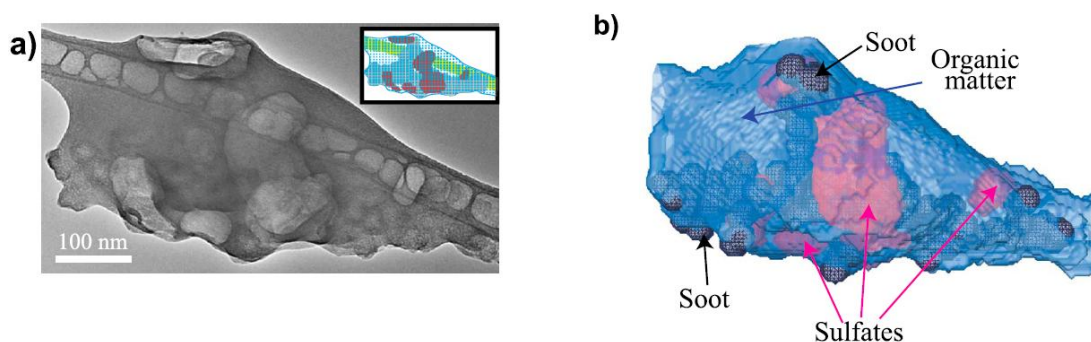


Figure 2-1: Représentation de suie incorporée dans une particule (Adachi et al., 2010). a) particule mesurée par microscope à transmission électronique. b) Reconstitution 3D de la particule et de ses composants. (Noir: suie, bleu: matière organique, rouge sulfate)

2.1.3 Distribution en taille

La diversité des sources et des mécanismes physiques et chimiques de formation des aérosols entraîne une grande diversité de tailles et de morphologies des aérosols. Le diamètre d'un aérosol ne sera donc pas unique mais réparti sur plusieurs ordres de grandeurs. Sa répartition en nombre, en surface, en masse ou en volume est appelé distribution. Il est important de connaître la distribution en taille des particules car cela impacte fortement les processus physiques et radiatifs. Une grande part des incertitudes sur le forçage radiatif des aérosols et son impact sur le climat provient d'un manque de connaissance des processus de modification des aérosols (variations en tailles ou chimiques) au cours de son vieillissement (Quennehen et al., 2012).

On répartit les aérosols en quatre modes principaux: les particules d'un diamètre inférieur à 20nm dans un mode *nucléation*, le mode *Aitken* pour les diamètres inférieurs à 100nm, le mode *accumulation* pour les particules entre 100nm et 2.5µm et le mode *grossier* pour les aérosols supérieurs à 2.5µm (Seinfeld and Pandis, 1998). Optiquement peu active, les particules du mode *nucléation* sont souvent négligées dans les calculs d'impacts radiatifs. Ce sont des particules très petites notamment par rapport aux longueurs d'ondes solaires et thermiques. Toutefois elles peuvent avoir un impact sur le climat, notamment, si leur taille s'accroît par processus de condensation et coagulation jusqu'à appartenir au mode *Aitken*, puis au mode *accumulation*. Dans le mode *accumulation*, l'impact radiatif des particules devient plus important et elles peuvent servir de noyaux de condensation. Les particules du mode *grossier* sont la plupart du temps des aérosols primaires de formes très variées qui ont été produits mécaniquement: par l'intermédiaire de l'érosion des surfaces par le vent (*dusts*), des sels de mer, ou des émissions volcaniques...

Si certaines sources présentent une distribution monomodale, il est courant que plusieurs modes cohabitent. Pour représenter la complexité de la distribution en taille, la loi lognormale est classiquement utilisée. La variation du nombre de particules N en fonction du logarithme du diamètre s'écrit (d'après Seinfeld and Pandis, 1998):

$$\frac{dN}{d \log d} = \sum_{i=1}^N \frac{N_i}{\log \sigma \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(\log d - \log d_i)^2}{2 \log^2 \sigma}} \quad (1.1)$$

Cette distribution $\frac{dN}{d \log d}$ est définie par trois paramètres d_i , σ et N_i qui représentent respectivement le diamètre géométrique moyen, la variance (ou écart type géométrique) et la concentration en particules appartenant à ce mode.

Il n'est pas toujours adéquat de s'intéresser à la distribution en nombre des aérosols. On peut s'intéresser à la distribution en surface, en volume ou en masse. La distribution en masse est par exemple utilisée pour estimer la qualité de l'air bien que cela soit controversé car ce n'est pas le meilleur indicateur pour connaître l'impact des aérosols sur la santé.

2.1.4 Etat de mélange

Comme il existe de nombreuses sources et processus conduisant à la formation des aérosols, les particules coexistent dans l'atmosphère à différents degrés de mélange. L'état de mélange peut être défini selon la manière avec laquelle les composés chimiques composant l'aérosol sont associés. Ceux-ci décrivent la manière selon laquelle les aérosols issus de différentes sources se mêlent. On distingue deux états extrêmes:

- Le mélange externe qui correspond à deux populations d'aérosols qui contiennent chacune un composé chimique.
- Le mélange interne qui correspond à une population homogène d'aérosol de composition chimique complexe (comprenant plusieurs composés chimiques). Ce type de mélange correspond généralement à un aérosol issu d'une seule source dont les propriétés physico-chimiques ont évoluées au cours du temps.

Le type de mélange modifie les propriétés optiques des particules (Lesins et al., 2002; Seinfeld and Pandis, 1998), notamment l'albedo de simple diffusion qui peut être 15% plus faible en cas de mélange interne comparé à un mélange externe (Mallet et al., 2003). Jacobson (2001), a également montré que l'état de mélange influence fortement l'impact radiatif des aérosols. Il indique que plus le carbone suie est mélangé de façon interne, plus il contribue positivement au forçage radiatif.

Comme le montre la Figure 2-1 les particules rencontrées en atmosphère réelle sont complexes et le modèle interne/externe ne suffit pas à représenter la complexité des particules. En effet, la structure de l'aérosol en mélange interne peut être importante. Par exemple, un aérosol avec une structure en couche ne se comporte pas comme un aérosol de structure fractale. Il existe un type de mélange fréquemment utilisé pour décrire ce phénomène: le mélange interne avec recouvrement. Par exemple, Bond et al. (2006) étudient l'absorption des aérosols pour différentes tailles de noyaux et d'enveloppes. Ils suggèrent que l'absorption des aérosols âgés, recouvert par une substance faiblement absorbante, est 1.5 fois supérieur que des aérosols fraîchement émis.

Le HTDMA (voir paragraphe 3.1.2.3) permet de quantifier l'état de mélange. Il permet de séparer, pour une taille donnée les aérosols de composition chimique différente. Un mode mesuré par le HTDMA peut être un mélange interne de plusieurs espèces chimiques.

2.1.5 Hygroscopicité

L'humidité relative est un des paramètres clés qui détermine les propriétés optiques des aérosols en particulier au dessus de 60%. Pour des raisons techniques et d'intercomparabilité la majorité des mesures in situ sont effectuées sèches ($RH < 40\%$).

Lorsque l'humidité augmente la vapeur d'eau se condense sur les aérosols. En conséquence, la taille des particules augmente d'un diamètre sec (D_{dry}) à un diamètre humide (D_{wet}). On appelle ce phénomène la croissance hygroscopique. Le facteur de croissance hygroscopique (*Growth Factor*) GF permet de quantifier cette croissance. Il est défini par l'équation suivante:

$$GF(RH) = \frac{D_{wet}(RH)}{D_{dry}} \quad (1.2)$$

La croissance hygroscopique, donc GF , est dépendante de l'humidité relative (RH), de la composition chimique et de la taille de l'aérosol. On l'exprime de manière générale à 90%. Comme nous le verrons au chapitre suivant, GF peut être calculé en mesurant le diamètre sec puis humide d'un aérosol. Pour calculer GF à une autre humidité relative, on utilise κ , le paramètre hygroscopique, qui permet également d'exprimer les propriétés hygroscopiques des aérosols indépendamment de leur taille. κ est défini de la manière suivante (Petters and Kreidenweis, 2007) :

$$\kappa = \frac{(GF^3 - 1)e^{\frac{A}{D \cdot GF}}}{RH} - GF^3 + 1 \quad (1.3)$$

Avec A une constante et D le diamètre des particules. Une fois κ calculé à partir de GF (90%) on peut recalculer $GF(RH_{amb})$ à l'humidité ambiante pour connaître les propriétés optiques réelles des aérosols. Comme l'équation (1.3) n'a pas de solution analytique directe, on utilise une méthode numérique pour retrouver $GF(RH_{amb})$.

Dans le cas d'une population aérosol complexe, il est courant de distinguer plusieurs modes de croissance hygroscopiques. Chaque mode étant associé à une population ayant une composition chimique homogène.

Comme nous l'avons vu en introduction, l'hygroscopicité est un des paramètres les plus importants pour la détermination des propriétés optiques des aérosols, l'eau contenue dans les aérosols pouvant représenter plus de 70% de l'épaisseur optique (Zhang et al., 2012).

L'hygroscopicité des principaux composés chimiques des aérosols est connue, et il est possible d'approximer l'hygroscopicité d'un aérosol en utilisant la loi ZSR (Zdanovskii-Stokes-

Robinson, Stokes and Robinson, 1966) ou avec en les calculant avec la théorie de Köhler (Penner et al., 1998). Cependant, la fraction organique des aérosols atmosphériques contient une multitude de composés et seulement une petite fraction de ces composés peut être identifiés et mesurés (Svenningsson et al., 2006; Ward and Cotton, 2011). Même des modèles plus complexes, tenant compte des interactions entre les composés, ne parviennent pas à reproduire correctement l'hygroscopicité de certains composés (e.g. Raatikainen and Laaksonen, 2005; Tong et al., 2008). Il est donc essentiel de mesurer directement l'hygroscopicité à l'aide d'un instrument adapté comme le HTMDA décrit au paragraphe 3.1.2.3.

2.1.6 Distribution verticale des aérosols, notion de Couche Limite

Il est crucial de connaître la distribution verticale des aérosols, car en fonction de leur altitude, l'impact radiatif ne sera pas le même, en particulier sur le temps de vie des nuages (Charlson et al., 1992)

La troposphère est la première partie de l'atmosphère. Elle s'étend de la surface de la Terre jusqu'à la tropopause. L'altitude de la tropopause varie de 10 à 15km en fonction de la latitude et la saison. Bien qu'elle représente une petite fraction de hauteur totale de l'atmosphère, elle contient 80% de sa masse totale et presque l'ensemble de la vapeur d'eau et des aérosols (Seinfeld and Pandis, 1998). On appelle la couche limite atmosphérique (*Planetary Boundary Layer*, PBL) la première couche de la troposphère qui se développe le jour par convection. Elle est directement influencée par le sol, car c'est le lieu d'émission des particules (primaires ou secondaires) et sa hauteur dépend essentiellement des mouvements convectifs. La PBL est séparée de la troposphère libre (*Free troposphere*, FT) par une discontinuité de la température virtuelle. Dans la troposphère libre les concentrations d'aérosols sont moindres et proviennent généralement de transport longue distance. La nuit, on distingue la couche limite stable de la couche résiduelle (Figure 2-2)

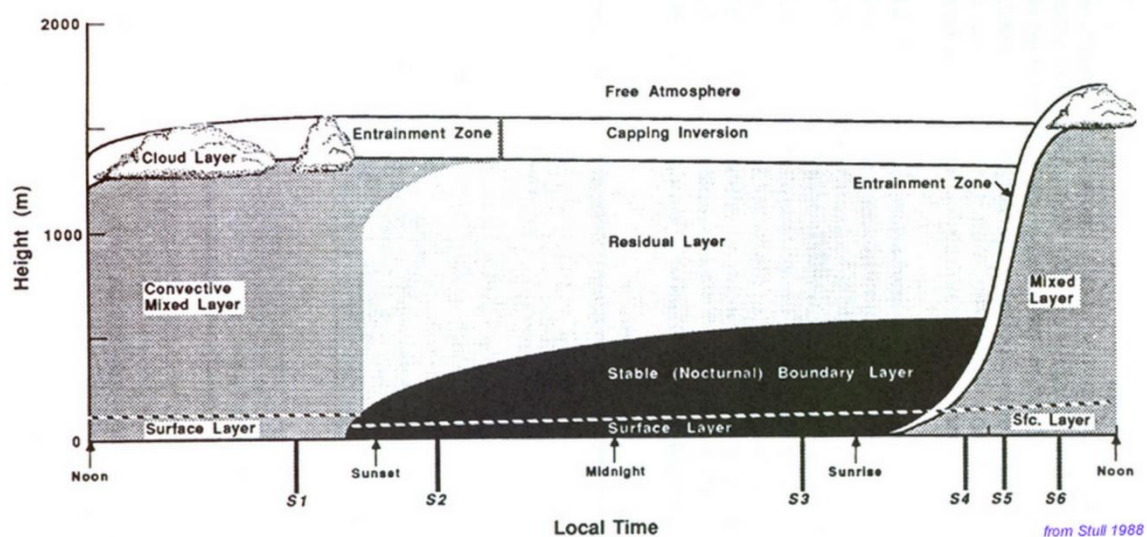


Figure 2-2: La Couche Limite Atmosphérique (Stull 1988)

La couche nocturne stable est considérée comme homogène alors que la couche résiduelle est plus stratifiée. La définition de la couche limite atmosphérique que nous venons de présenter est issue d'une analyse de profils thermodynamiques. Dans de nombreuses études, la couche limite est associée à la couche de mélange homogène d'aérosols. De nombreuses couches d'aérosols sont souvent présentes, ce qui rend plus difficile la restitution de la hauteur de la couche limite, en particulier quand des aérosols sont transportés dans la troposphère libre. Ces derniers sont essentiellement des poussières désertiques, des embruns marins, des particules volcaniques ou des feux de biomasses transportés sur de longues distances.

2.2 Impact Radiatif des aérosols

Les aérosols présents dans l'atmosphère interagissent naturellement avec le flux solaire incident. Une modification de la masse d'aérosols présente dans l'atmosphère entraîne un changement de l'impact radiatif. Cette interaction est appelée forçage radiatif. Par définition (IPCC, 2007), c'est la variation énergétique nette (différence entre l'énergie descendante et montante), en W.m^{-2} , au niveau de la tropopause, due à une modification d'un agent externe au système climatique.

Trois types d'interactions sont reconnus: les effets directs, semi direct et indirect. L'injection par l'être humain d'une grande quantité de particules d'aérosols va impacter le bilan radiatif terrestre.

2.2.1 Effet Direct

Lors des ciels clairs (non nuageux) les aérosols diffusent et absorbent le rayonnement solaire et peuvent modifier considérablement la quantité d'énergie solaire rétrodiffusée vers l'espace ou redistribuée dans la colonne atmosphérique. C'est l'effet direct aussi appelé effet parasol. Comme nous le verrons au paragraphe 2.4., l'intensité de l'effet direct est gouvernée par les propriétés optiques, comme l'albédo de simple diffusion, l'épaisseur optique ou le coefficient de rétrodiffusion. Ces propriétés sont décrites au paragraphe 0. La rétrodiffusion du rayonnement vers l'espace induit en moyenne globale une diminution de l'énergie incidente à la surface et donc en général un forçage radiatif négatif qui se traduit par un refroidissement à la surface de la terre (Charlson et al., 1992; IPCC, 2007), sauf si les aérosols sont absorbants et la surface brillante. En effet ce processus dépend des capacités d'absorption des aérosols mais aussi de l'albedo planétaire. L'albedo planétaire étant la fraction de rayonnement solaire directement renvoyé vers l'espace par la surface de la Terre ou par l'atmosphère. On considère généralement le forçage radiatif pour des longueurs d'onde visibles. L'effet radiatif dans le thermique est moindre mais non négligeable. Yu et al. (2006) proposent une revue des différentes campagnes de mesures réalisée jusqu'au milieu des années 2000. D'après les auteurs, l'effet radiatif direct au sommet de l'atmosphère pour des aérosols, naturels et anthropiques, présents au dessus de l'océan est de $5.5 \pm 0.2 \text{ W.m}^{-2}$. Au dessus des terres il est de $-4.9 \pm 0.7 \text{ W.m}^{-2}$. A l'échelle globale, le forçage radiatif direct des

aérosols anthropiques, au sommet de l'atmosphère, est estimé à $-0.5 \pm 0.4 \text{ W.m}^{-2}$ par le GIEC.

2.2.2 Effet semi direct

L'absorption des aérosols, en particulier des carbones suies, dans le spectre ultraviolet et visible provoque un réchauffement au niveau des couches atmosphériques où ils se situent. Ils modifient en conséquence l'équilibre vertical de la basse et moyenne troposphère (Léon et al., 2002). Cet échauffement peut être suffisamment important pour entraîner l'évaporation de nuages présents ou limiter leur formation (Ackerman et al., 2000). Cet effet est appelé semi direct car il est provoqué par l'effet direct des aérosols. Il exerce un forçage positif par diminution de l'albédo planétaire. Ce forçage n'est pas négligeable et pourrait compenser en partie l'effet direct. (Ramanathan et al., 2001). Koch and Del Genio (2010) proposent une revue des effets semi directs provoqué par les particules absorbantes en fonction du type de nuage et de la position par rapport à la couche de nuage.

2.2.3 Effet indirect

Si la concentration d'aérosols augmente de façon substantielle en raison des émissions anthropogénique, la concentration en gouttelette de nuage peut aussi augmenter, car les particules se comportent comme des noyaux de condensation. Cette élévation de la concentration en nombre de gouttes de nuage entrainera à son tour l'accroissement de la diffusion multiple dans le nuage, de l'épaisseur optique et de l'albedo du nuage. Ceci est le mécanisme de base du premier effet indirect, décrit pour la première fois par Twomey, (1977). Cet effet conduit à la diminution de l'énergie solaire traversant le nuage et un forçage radiatif négatif. Un second effet indirect a été observé par Albrecht (1989). Cet effet s'exprime par un retard de précipitation induit par la diminution du diamètre moyen des gouttelettes des nuages. Cela se traduit également par une augmentation de la durée de vie des nuages.

Cet effet est souvent illustré par les nuages générés par les émissions des bateaux (Figure 2-3). Dans une atmosphère marine, plus propre que les masses d'air continentales, les particules émises par les navires agissent comme des noyaux de condensation, entraînant la formation de nuages, l'augmentation de leur épaisseur optique et la diminution du diamètre effectif.

Bien que majoritairement admis, ces deux effets sont toujours l'objet de discussions. Par exemple Ackerman et al. (2004) ont montré que dans le cas des stratocumulus marins, une augmentation de la concentration en noyaux de condensation provoque une diminution du contenu en eau intégrée sur la colonne atmosphérique. C'est en contradiction avec le deuxième effet indirect. Stevens and Feingold (2009) suggèrent que l'effet indirect est fortement dépendant du régime de nuage considéré et qu'il est très difficile d'établir de relation significatives à des échelles climatiques entre aérosols, nuages et précipitation

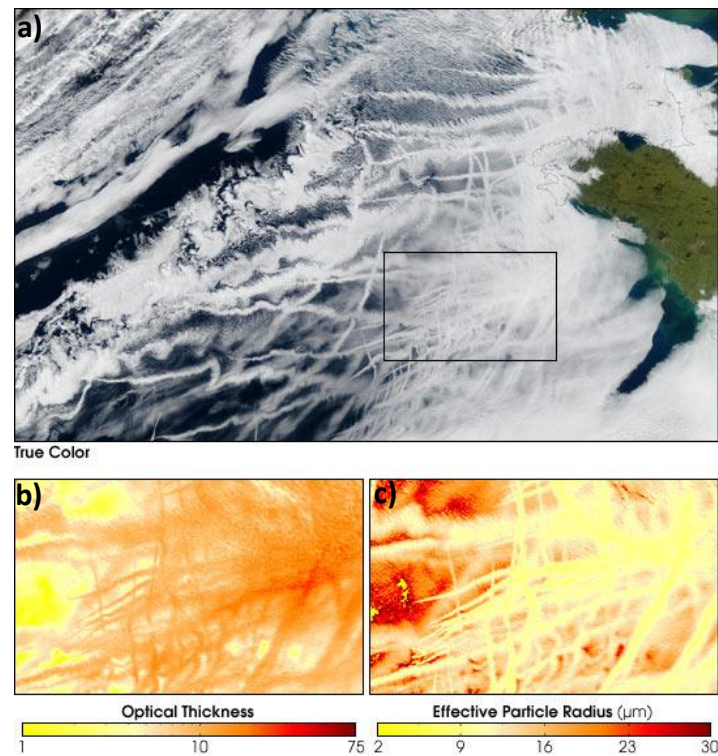


Figure 2-3: Nuages générés par les émissions des bateaux sur l'océan Atlantique le 27 Janvier 2003. Vue du capteur MODIS sur le satellite Aqua. a) Vue en couleur réelle. b) Epaisseur Optique. c) Diamètre effectif des particules (<http://earthobservatory.nasa.gov>).

Nous venons de décrire les principaux effets des aérosols sur le climat. Au cours de cette thèse nous nous sommes concentrés sur l'effet direct. Le paragraphe suivant s'intéresse donc à ce qui gouverne l'effet direct: les propriétés optiques.

2.3 Optique des aérosols : Paramètres clés

L'interaction du rayonnement électromagnétique, (le rayonnement solaire par exemple) avec les particules d'aérosols joue un rôle important dans le fonctionnement du climat. On appelle propriétés optiques des aérosols, la capacité des particules d'aérosols à interagir avec la lumière. Lorsque qu'un rayon lumineux rencontre un aérosol la lumière est déviée dans de multiple direction : c'est la **diffusion**. Une partie du rayonnement est également dissipée sous forme de chaleur c'est l'**absorption**. La somme de l'absorption et de la diffusion est appelée **extinction**.

2.3.1 Extinction de la lumière

On appelle le coefficient d'extinction (σ_{ext}), à une longueur d'onde donnée (λ), la somme du coefficient de diffusion (σ_{sca}) et du coefficient d'absorption (σ_{abs}).

$$\sigma_{ext}(\lambda) = \sigma_{sca}(\lambda) + \sigma_{abs}(\lambda) \quad (1.4)$$

Le coefficient d'extinction est directement lié à la visibilité. On peut utiliser l'équation de Koschmeider (Seinfeld and Pandis, 1998, p.1128) pour calculer la visibilité (x_v) :

$$x_v = \frac{3.912}{\sigma_{ext}} \quad (1.5)$$

L'extinction est donc l'effet le plus visible des aérosols. Si le coefficient d'extinction est fort la visibilité sera très réduite. Ce phénomène s'observe couramment dans les grandes métropoles.

Différents paramètres influencent directement l'intensité de l'extinction: la longueur d'onde incidente, la distribution des aérosols, et leur composition chimique via l'indice de réfraction.

En fonction de la taille des particules et de la longueur d'onde (λ) du rayon incident, on peut diviser la diffusion de la lumière en 3 domaines :

- Régime de Rayleigh: si la particule est petite comparée à λ .
- Régime de Mie: si la particule est environ du même ordre de grandeur que λ .
- Régime géométrique: si la particule est très grande comparée à λ .

La taille des aérosols est du même ordre de grandeur que les longueurs d'ondes étudiées (de l'UV à l'infrarouge moyen). C'est pourquoi le régime de Mie est utilisé. Il est possible de calculer le comportement de rayons lumineux quand ils rencontrent une particule grâce à un code de Mie (Mätzler, 2002). J'ai choisi d'utiliser le code développé par Bond et al. (2006). Ce code est particulièrement adapté pour des aérosols puisqu'il permet de calculer les paramètres optiques directement depuis une distribution en taille mesurée.

2.3.2 Coefficient d'Ångström de diffusion

La variation du coefficient de diffusion entre deux longueurs d'ondes (λ et λ_0) peut être décrite par le coefficient d'Ångström de diffusion α , aussi appelé rapport de couleur :

$$\frac{\sigma_{sca}(\lambda)}{\sigma_{sca}(\lambda_0)} = \left(\frac{\lambda}{\lambda_0}\right)^{-\alpha} \quad (1.6)$$

Avec σ_{sca} le coefficient de diffusion pour les deux longueurs d'ondes λ et λ_0 . Si la variation du coefficient de diffusion en fonction de la longueur d'onde est nulle, α sera égal à zéro. Si elle est directement proportionnelle à la longueur d'onde α sera égal à l'unité.

Un coefficient d'Ångström autour de 2 implique une distribution en taille d'aérosols dominée par des particules du mode accumulation, alors que pour une distribution dominée par des particules du mode grossier, α est proche de zéro (Dubovik et al., 2002).

2.3.3 Albédo de simple diffusion

L'albedo de simple diffusion ω_0 est le rapport entre la diffusion et l'extinction. Il se caractérise par une valeur proche de 1 pour des particules non absorbantes. Il est défini par l'équation suivante:

$$\omega_0(\lambda) = \frac{\sigma_{sca}(\lambda)}{\sigma_{sca}(\lambda) + \sigma_{abs}(\lambda)} \quad (1.7)$$

ω_0 est une propriété critique dans la détermination du forçage radiatif de l'aérosol. Selon Bergstrom and Russell, (1999) une variation de 0.07 de ω_0 au dessus des océans (avec une épaisseur optique constante), engendre une variation de 21% sur le forçage radiatif direct au sommet de l'atmosphère. Au dessus d'une zone de forte végétation, une variation de ω_0 de 1 à 0.9 entraîne une diminution du forçage radiatif direct de 50%.

2.3.4 Fonction de phase

La distribution angulaire de l'intensité de la lumière diffusée par une particule à une longueur d'onde donnée est appelée fonction de phase. Elle est notée $P(\theta)$ et correspond à l'intensité diffusée F , à un angle donné θ , par rapport au faisceau incident et normalisé par l'intégrale de l'intensité diffusée à chaque angle. On l'écrit selon l'équation (1.8) (Seinfeld and Pandis, 1998). L'intégrale de la fonction de phase est 4π .

$$P(\theta) = \frac{F(\theta)}{\int_0^\pi F(\theta) \sin(\theta) d\theta} \quad (1.8)$$

La fonction de phase détermine donc la proportion de l'intensité lumineuse diffusée pour chaque angle, et donc, par exemple la quantité de lumière arrivant jusque au sol ou renvoyée dans l'espace. Pour l'interpréter plus facilement les facteurs d'asymétrie ou le rapport de rétrodiffusion peuvent en être dérivés.

2.3.5 Facteur d'asymétrie et rapport de rétrodiffusion.

Le facteur d'asymétrie g est défini comme l'intensité moyenne pondérée du cosinus de l'angle de diffusion. Si $g = 1$, toute la lumière est diffusée vers l'avant. Si $g = -1$ toute la lumière est diffusée vers l'arrière.

D'Almeida et al. (1991) suggèrent des valeurs sèches de g à 550nm comprises entre 0.64 et 0.83 en fonction du type d'aérosol et de la saison, avec une valeur moyenne de 0.72. En cas de forte humidité g augmente en moyenne à 0.79.

$$g = \frac{1}{2} \int_0^\pi \cos \theta P(\theta) \sin \theta d\theta \quad (1.9)$$

Une autre mesure de la distribution de l'intensité diffusée est le rapport de rétrodiffusion b :

$$b = \frac{\int_{\pi/2}^{\pi} P(\theta) \sin \theta d\theta}{\int_0^{\pi} P(\theta) \sin \theta d\theta} \quad (1.10)$$

L'avantage du rapport de rétrodiffusion est qu'il peut être directement mesuré par un néphélomètre. Il n'y a pas de relation directe entre b et g mais des paramétrisations empiriques existent. La plus utilisée est définie par Andrews et al. (2006) :

$$g = -7.143889 b^3 + 7.464439 b^2 - 3.96356 b + 0.9893 \quad (1.11)$$

Marshall et al. (1995) proposent une relation plus complexe qui dépend de la partie imaginaire de l'indice de réfraction et de la largeur de la distribution en taille.

Ces équations ne sont que des approximations et il conviendra d'utiliser un calcul de Mie quand cela sera possible.

2.3.6 Indice de réfraction

L'indice de réfraction réel d'un milieu m_r mesure le facteur de réduction de la vitesse de la lumière par rapport à la vitesse qu'elle aurait dans le vide. La partie imaginaire m_i mesure la perte d'énergie d'un rayonnement électromagnétique traversant ce milieu: son absorption. L'indice de réfraction complexe m peut s'écrire de la façon suivante:

$$m = m_r + i m_i \quad (1.12)$$

m varie en fonction de la longueur d'onde et du milieu. Il est directement lié à la nature chimique de l'aérosol. La partie réelle varie généralement de 1.333 pour l'eau liquide à 1.55 pour l'aérosol minéral mais il peut atteindre 1.95 dans le visible dans le cas de suie (Bond and Bergstrom, 2006). La partie imaginaire varie de 0 pour des particules purement diffusantes comme le sel marin et elle peut atteindre 0.66 pour des particules très absorbantes comme les suies. L'indice de réfraction varie en fonction de l'humidité relative. En effet, la vapeur d'eau contenue dans l'aérosol entraîne une diminution de son indice de réfraction qui va tendre vers celui de l'eau (1.33). Cette variation peut être modélisée comme nous le verrons au chapitre 3.

L'indice de réfraction est une propriété cruciale pour déterminer l'impact radiatif de l'aérosol. D'après Pilinis et al. (1995), si m_r change seulement de 1.40 à 1.45 le forçage radiatif correspondant peut augmenter de 30%. Ils montrent également que le paramètre le plus crucial à prendre en compte est l'humidité relative notamment en raison de son impact sur l'indice de réfraction.

2.4 Forçage radiatif et Efficacité radiative directe

Comme nous venons de définir les propriétés optiques des aérosols, il est maintenant possible de quantifier l'effet radiatif direct de ces derniers. Dans le cadre de cette thèse on utilise un modèle simple de transfert radiatif. L'approche de Chylek and Wong, (1995) est utilisée. Cette approximation montre que le forçage radiatif direct ΔF , au sommet de l'atmosphère, des aérosols peut être approximé par:

$$\Delta F = -\frac{S_0}{2} T_{atm}^2 (1 - N_{cloud}) [(1 - a)^2 \beta_r \omega_0 - 2a (1 - \omega_0)] \tau \quad (1.13)$$

Avec S_0 la constante solaire, T_{atm} la transmittance de l'atmosphère au-dessus de la couche d'aérosol (0.79), N_{cloud} la fraction du ciel couvert par les nuages, τ l'épaisseur optique, ω_0 l'albédo de simple diffusion moyen, a l'albedo de la surface (0.16) et β_r la fraction de rayonnement diffusée vers le haut par les aérosols. Au cours de cette étude, les valeurs de ΔF seront données pour un ciel Clair, c'est-à-dire avec N_{cloud} égal à zéro. β_r peut être approximé par :

$$\beta_r = \frac{1}{2} (1 - g) \quad (1.14)$$

Avec g le facteur d'asymétrie défini au paragraphe 2.3.5.

Afin de pouvoir comparer l'impact radiatif en fonction des masses d'air uniquement en fonction des propriétés intrinsèque de l'aérosol, et pas en fonction de la quantité de particules présente, on définit l'efficacité radiative par:

$$\Delta E = \Delta F / \tau = -\frac{S_0}{4} T_{atm}^2 (1 - N_{cloud}) 2 [(1 - a)^2 \beta_r \omega_0 - 2a (1 - \omega_0)] \quad (1.15)$$

L'efficacité radiative ΔE est donc le forçage radiatif ΔF normalisé par l'épaisseur optique τ . ΔE est donc indépendant de τ . Cette approche est couramment utilisée dans la littérature pour quantifier un processus physique (e.g. Andrews et al., 2011; Bond and Bergstrom, 2006; Cheng et al., 2008; Delene and Ogren, 2002; Lesins et al., 2002; Stock et al., 2011). De plus comme l'efficacité radiative s'affranchit des variations spatiales de l'épaisseur optique, c'est un paramètre utile pour la comparaison entre modèle et observation (Anderson et al., 2005; IPCC, 2007).

Chapitre 3 : Instrumentation et Méthodologie

Ce chapitre est tout d'abord consacré à la description de la station du Puy de Dôme (PdD) et des instruments qui ont été exploités au cours de cette thèse. Les instruments in situ permettant de mesurer les propriétés microphysiques des aérosols seront d'abord détaillés puis ceux mesurant les propriétés optiques. Enfin les instruments de télédétection, situés à quelques kilomètres du PdD, le Lidar et le photomètre seront détaillés.

La deuxième partie de ce chapitre présente les algorithmes mis en place au cours de cette thèse qui ont permis la synergie entre les mesures optiques et physico-chimiques des aérosols. En particulier, les méthodes utilisées pour calculer l'impact de l'hygroscopicité seront étudiées, aussi bien, sur les propriétés optiques que sur l'efficacité radiative correspondante, en estimant les incertitudes et la précision de ces calculs.

3.1 La station instrumentée du Puy de Dôme.

3.1.1 La station

La station du Puy de Dôme (PdD) est située au centre de la France (+45° 46' 16", +2° 57' 59 ") à 1465m au dessus du niveau de la mer. Le Puy de Dôme est le plus haut volcan de la chaîne des Puys. Il s'agit d'un groupe de volcans alignés selon un axe orienté nord-sud, sur une bande de 3 à 5 km de large pour un peu plus de 45 km de longueur.

La station est majoritairement influencée par des vents d'ouest (37%). On distingue plusieurs types de masse d'air arrivant au PdD : local, océanique, continental et africain (cf section 3.5.1 Hysplit). Son altitude la place à l'interface entre la troposphère libre et la couche limite atmosphérique. Elle permet donc d'étudier les phénomènes représentatifs de ces deux strates de l'atmosphère. Les conditions météorologiques seront étudiées plus en détail au début du chapitre 5.

Le PdD a été classé comme une station " faiblement influencée, avec dépôt constant" dans une étude classant la représentativité des principaux sites en Europe (Henne et al., 2010). D'après les auteurs, cela montre que le site est adapté pour des validations de modèles de transport chimique à l'échelle européenne ou pour la validation de mesures satellites.

La station est l'une des mieux instrumentée en capteurs in situ pour l'étude des aérosols en France. Dans le cadre de cette thèse, une grande partie de l'instrumentation a été exploitée, en combinant mesures physico-chimiques et optiques.

3.1.2 Mesures Physico-chimiques des aérosols :

3.1.2.1 La distribution en taille : SMPS et OPC

La distribution en taille des aérosols au Puy de Dôme est mesurée par 2 instruments complémentaires : le *Scanning Mobility Particle Sizer* et un *Optical Particle Counter* (SMPS et OPC). Leur gamme de mesure respective est 10nm-400nm et 350nm-18µm.

L'élément principal du SMPS est le DMA (*Differential Mobility Analyser*) qui sélectionne les particules en fonction de leur mobilité électrique. Les particules sectionnées sont ensuite comptées par un compteur optique, le CPC (*Condensation Particle Counter*) 3010 produit par TSI. Avant d'entrer dans le DMA les particules sont chargées à l'équilibre par une source radioactive (⁶³Ni) ou par un chargeur corona. Le nombre de charge de charges portées par chaque particule à l'équilibre est bien documenté (Wiedensohler, 1988). Le SMPS a été fabriqué par le LaMP en Janvier 2006 et validé dans le cadre du projet européen EUSAAR. Depuis cette date des mesures systématiques sont réalisées. Une climatologie de la distribution en taille a été réalisée en 2009 (Venzac et al., 2009). Elle montre que la taille des particules d'aérosols présents au PdD varie suivant la saison et la journée. Cette variation saisonnière est principalement due à la dynamique de la couche limite.

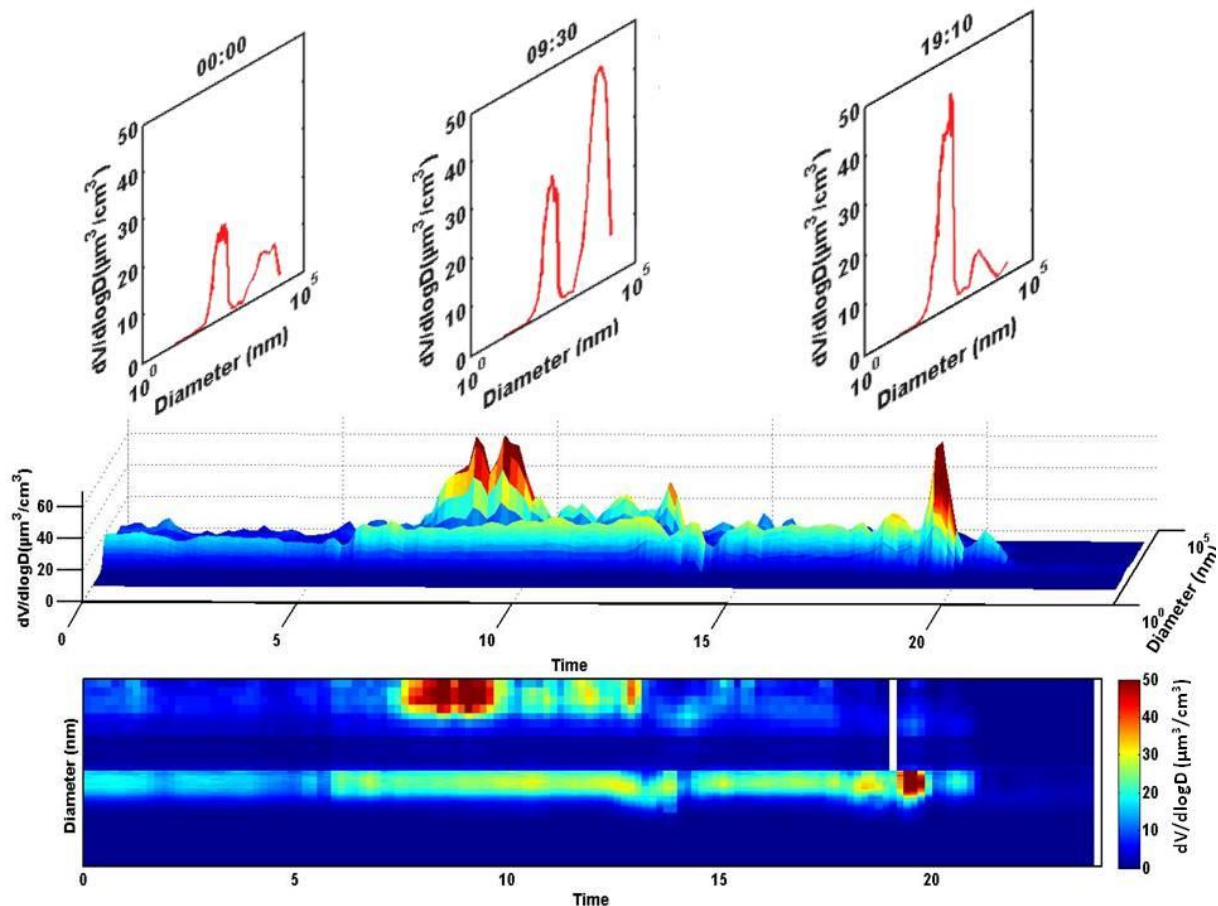


Figure 3-1 Distribution en volume des aérosols ($dV/d\log D$) le 28/06/2011

L'OPC en place au Puy de Dôme est un Grimm 1.108. Il mesure la distribution en taille grâce à un faisceau laser à 638nm. Dès qu'une particule passe devant le laser, le signal diffusé est transmis à une diode réceptrice. Le signal reçu est associé à une classe de taille en fonction de sa puissance. Cette taille est calculée à l'aide d'un calcul de Mie. Il suppose donc des hypothèses de forme et d'indice de réfraction. Le Grimm possède 16 canaux de 350nm à 18μm.

3.1.2.2 La masse: TEOM

La masse des aérosols est mesurée par un instrument commercial : le TEOM-FDMS (*Tapered Element Oscillating Microbalance- Filter Dynamic Measurement System*) (Ruppecht et al., 1992). Le TEOM mesure la masse des aérosols en utilisant un filtre conique oscillant. Les particules aspirées à l'aide d'une pompe de prélèvement se déposent sur le filtre. En augmentant la masse du système, elles produisent une décroissance de la fréquence d'oscillation. Cette variation de fréquence est ensuite convertie en variation de masse. Le TEOM collecte les aérosols sur un filtre chauffé à 50°C. Pour tenir compte de la perte des aérosols les plus volatils le TEOM est équipé du système FDMS. Le FDMS permet de mesurer pendant 6 minutes la masse apparente d'aérosols appelée "concentration en poussière non-volatile". Ensuite le flux d'air passe à travers un filtre à 4°C. Le filtre TEOM ne collectant plus de poussières, la variation de masse du filtre TEOM mesurée pendant les 6 minutes est

causée par un ensemble de phénomènes physico-chimiques affectant les poussières collectées préalablement par le filtre TEOM, dont le plus important est la perte des matières volatilisables. La concentration équivalente calculée à partir de cette variation de masse du filtre TEOM est appelée "concentration en poussières volatiles". Le TEOM FDMS additionne ensuite la "concentration de poussières non volatiles" à la "concentration en poussières volatiles" pour obtenir la masse de particules dans l'atmosphère.

3.1.2.3 L'hygroscopicité : HTDMA

Le HTDMA (Hygroscopic Tandem Differential Mobility Analyser) est un instrument conçu au LaMP (Villani et al., 2008). Il est principalement composé de deux DMA. Le premier sélectionne les particules à taille voulue pour une humidité inférieure à 40% pendant que le deuxième réalise un scan pour différentes tailles de particules à 90% d'humidité. Ces particules sont comptées par un CPC à eau (TSI 3772). Ce système permet donc de connaître l'accroissement du diamètre provoqué par l'humidité: le facteur de croissance hygroscopique GF défini au paragraphe (2.1.4)

Le flux d'aérosol est séché avant de pénétrer dans le premier DMA par un assécheur à diffusion en silicagel. Une fois sélectionné, il est ensuite humidifié avant de passer dans le deuxième DMA. L'humidité du flux d'aérosol est contrôlée en passant à travers une membrane nafion. Le contenu en eau du contre flux du nafion est piloté en faisant passer le flux d'air à travers un bulleur ou un assécheur. L'humidité est mesurée par un contrôleur du point de rosée "Dew point mirror". Il faut plusieurs heures pour faire varier de façon importante l'humidité du système mais une fois l'humidité de consigne atteinte, celle-ci reste stable de façon durable (écart type de l'humidité sur 1000 scans: 0.9%). Les mesures sont donc réalisées à 90%. Des calibrations au sulfate d'ammonium et des scans sec sont réalisés périodiquement. Le HTDMA a participé à différentes inter-comparaisons internationales dans le cadre du projet européen EUSAAR. Les résultats sont présentés par Duplissy et al., (2009) et montrent, lors de la calibration au sulfate d'ammonium, que l'incertitude sur GF mesuré avec le HTDMA du LaMP, est de $\pm 2\%$.

Pour déterminer le facteur de croissance hygroscopique des particules on sélectionne tout d'abord les scans pour lesquels l'humidité était à moins de 5% de l'humidité relative de consigne (85%-95%). Seuls les scans avec un nombre suffisant de particules ($>1\#/cm^{-3}$), ne présentant pas une variabilité aberrante (écart-type/nombre total de particules $<10\%$) et avec les flux équilibrés ($\pm 10\%$) sont conservés. Une régression est ensuite réalisée à l'aide de 3 distributions log-normales. Seules les régressions avec un coefficient de détermination $r^2 > 0.8$ sont conservées. La mesure obtenue par les HTDMA est donc décomposée en 3 modes: hygrophobique, moyen, et hygroscopique. La fraction en nombre de particules appartenant à chacun de ces modes est calculée. Cette décomposition permet ensuite de recalculer la distribution en taille humide à partir de celle mesurée sèche par le SMPS et des GF mesurés par le HTDMA. La figure ci-dessous représente un exemple d'inversion HTDMA réalisée pendant la campagne intensive de Juin 2011

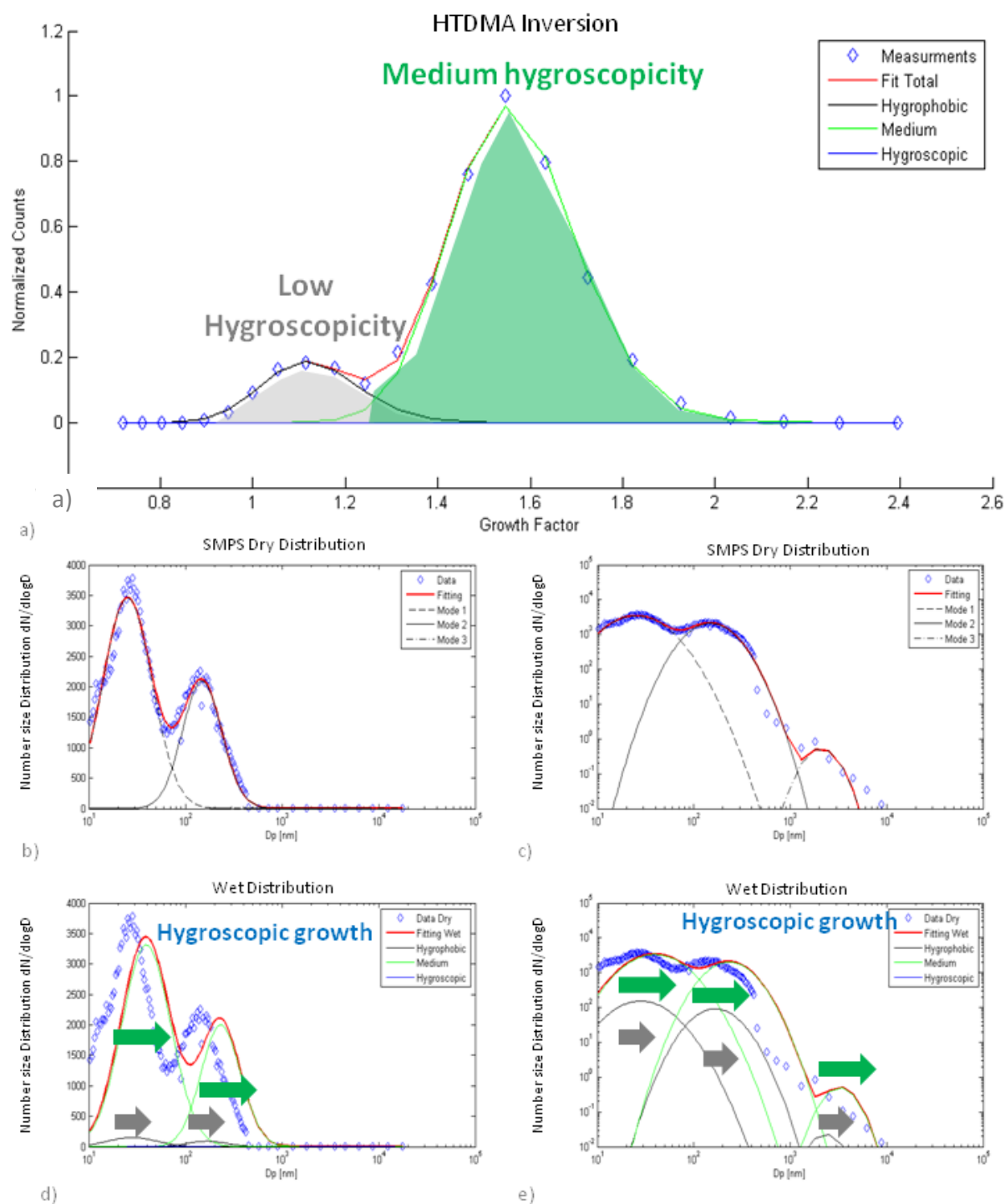


Figure 3-2: Exemple d'inversion HTDMA (Juin 2011). A: Mesure HTDMA à 110nm pour une humidité de 100%. B et C: Mesure SMPS. D et E : Combinaison, calcul de la distribution en taille humide.

Sur la Figure 3-2-a la distribution en GF d'un aérosol de 110nm montre la présence de 2 modes. Le premier, hygrophobe, avec un GF de 1.1 contient 12% des particules et le deuxième avec un GF de 1.57 contient 88% des particules. L'existence de ces deux modes montre que le mélange de cette population d'aérosols est externe. Ces hygroscopicités sont appliqués sur toute la distribution en taille mesurée par le SMPS. Elle est composée de 3 modes: Aitken à 30nm, accumulation à 100nm et grossier autour de 2 μ m (Figure 3-2-b). Afin de pouvoir distinguer les 3 modes, deux représentations sont utilisées pour la concentration:

avec (Figure 3-2-c) et sans échelle logarithmique (Figure 3-2-b). Pour obtenir une distribution virtuelle humide, on applique les GF calculés et leurs fractions respectives (Figure 3-2-d et 3-2-e). Elle nous permettra de calculer les propriétés optiques correspondantes dans le paragraphe 3.3.3.

Nous faisons l'hypothèse que l'hygroscopicité est la même quel que soit le diamètre des particules. En effet, si la composition chimique est la même, κ est constant et GF varie peu. Par exemple si GF est de 1.7 à 110nm et à 90% d'humidité, on peut calculer GF pour d'autres tailles en gardant κ constant: il est de 1.65 à 50nm et 1.74 à 1 μ m. Toutefois, si la composition chimique est différente en fonction de la taille, notamment entre les particules supermicroniques et submicronique, cela peut introduire un biais dans les résultats. Cependant, les mesures au PdD ne permettent pas de connaître l'hygroscopicité des particules supermicroniques.

L'erreur estimée peut être importante en particulier pour des masses d'air marines, quand du sel de mer est transporté jusqu'au PdD. Lors de ces événements, nous faisons donc l'hypothèse que le sel est transporté à la fois sous forme supermicronique et submicronique, ce qui implique une forte hygroscopicité et une erreur moindre.

Comme nous l'avons vu précédemment, de nombreux critères de qualité sont appliqués pour s'assurer de la pertinence des mesures. Le HTDMA est un instrument non commercial développé au sein du LaMP qui a demandé des améliorations constantes. Au final le taux de fonctionnement n'est que de 20,4% entre les premières mesures en septembre 2008 et les plus récentes en juillet 2012. Mais ce taux a augmenté au cours du temps pour s'établir à 40% pour le premier semestre 2012. Néanmoins c'est l'instrument critique de cette thèse du fait du faible nombre de mesures.

3.1.2.4 Composition chimique: AMS

La composition chimique et la concentration en masse des particules submicroniques non réfractaires à 600°C sont mesurées avec un cToF-AMS d'Aerodyne (Drewnick et al., 2005) en périodes de campagnes intensives. Pour extraire la composition chimique de chaque type d'aérosols les données brutes de l'AMS sont traitées avec les hypothèses standard décrites par (Allan et al., 2004). Freney et al. (2011) décrivent les méthodes utilisées pour traiter les données au Puy de Dôme. Ils présentent également les variations de la composition chimique des aérosols pour différentes saisons. L'AMS présente l'avantage de fournir la composition chimique complète (composés inorganiques, composés organiques) de l'aérosol avec une résolution temporelle inférieure à la minute. Ces mesures peuvent donc être directement confrontées aux mesures de l'instrumentation physique (SMPS, OPC) et optique (Nephelometre, MAAP) dans les cas où les particules réfractaires (sels, minéraux) contribuent peu, c'est-à-dire pour les masses d'air présentant une faible concentration en aérosols supermicroniques.

3.1.3 Propriétés Optiques des aérosols

3.1.3.1 L'absorption de la lumière par les aérosols : le MAAP et l'Aethalomètre

De 2001 à 2008, l'absorption de la lumière a été mesurée par un Aethalomètre AE-16 de *Magee Scientific*. L'AE-16 mesure l'atténuation de la lumière (à 880nm) sur un filtre en fonction du temps. En fonction de la variation d'atténuation on peut calculer le coefficient d'absorption. Ce calcul est soumis à de nombreuses incertitudes comme la diffusion multiple ou la charge du filtre. Il est largement reconnu que l'Aethalomètre mesure des coefficients d'absorption trop élevés. (Arnott et al., 2005; Collaud Coen et al., 2010; Schmid et al., 2006). Malgré de nombreux travaux sur la correction des données de l'Aethalomètre (Collaud Coen et al., 2010; Virkkula et al., 2007; Weingartner et al., 2003) un consensus ne se dégage pas encore sur la meilleure méthode pour corriger les données. Les données présentées dans cette étude ne seront donc pas corrigées. Seules les variations relatives seront considérées.

Depuis 2008, l'absorption est mesurée par un MAAP (*Multi Angle Absorption Photometer*). Le MAAP mesure le rayonnement transmis et rétrodiffusé par les particules impactées sur un filtre. Une description détaillée de l'instrument peut être trouvée dans Petzold and Schönlinner (2004). Le MAAP utilise un modèle de transfert radiatif à deux flux pour minimiser l'influence de la diffusion lors des mesures d'absorption. La longueur d'onde donnée par le constructeur est 670nm alors qu'elle est mesurée à 637nm par Müller et al., (2010b). Pour corriger cette variation de la longueur d'onde, Müller et al. (2010b) conseillent de multiplier l'absorption mesurée par 1.05.

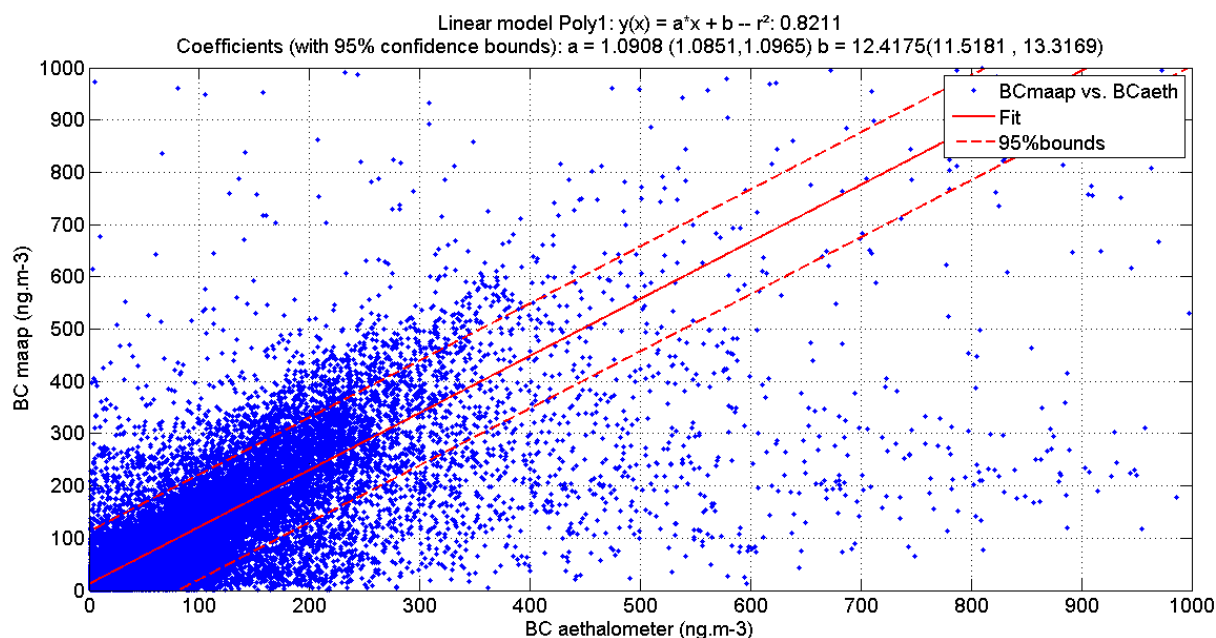


Figure 3-3: Corrélation entre les concentrations en BC entre le MAAP et l'Aethalomètre. La ligne rouge représente la régression linéaire et les lignes pointillées l'intervalle de confiance à 95%.

Les mesures fournies par l'instrument sont des concentrations en carbone suie (BC), à partir desquelles on peut remonter à la mesure du coefficient d'absorption en multipliant la concentration en BC par le coefficient d'absorption spécifique ($6.6\text{m}^2/\text{g}$).

En 2008, les deux instruments fonctionnaient côte à côte permettant une intercomparaison des deux méthodes. Même si les mesures entre les deux instruments sont corrélés ($r^2=0.8$ Figure 3-3), de nombreux points sont aberrants et il est difficile de comparer les mesures Aethalomètre avec les mesures MAAP pour le site du puy de Dôme. L'interprétation des mesures Aethalomètre se fera donc avec prudence.

3.1.3.2 La diffusion de la lumière par les aérosols : le Néphélomètre.

Le Néphélomètre TSI 3563 permet de mesurer la diffusion de la lumière à 3 longueurs d'ondes : 450, 550 et 700 nm. Il est en place depuis Juin 2006 au PdD et permet de mesurer la lumière diffusée seulement pour des angles entre 7 et 170° (mesure intégrée) et rétrodiffusée entre 90 et 170°. En conséquence, seule une partie de la lumière diffusée est mesurée. Certains angles n'étant pas mesurés, il est nécessaire de corriger cette troncature en appliquant les corrections préconisées par Anderson and Ogren (1998), qui prennent en compte le coefficient d'Ångström (équation 2(3.1)).

$$\sigma_{\text{sca}}(\lambda) = \sigma_{\text{neph}}(\lambda) (a_1(\lambda) + a_2(\lambda) \text{ \AA}) \quad (3.1)$$

Le coefficient de diffusion réel (σ_{sca}) peut donc s'écrire en fonction du coefficient de diffusion mesuré par le néphélomètre entre 7 et 170° (σ_{neph}) multiplié par un facteur correctif. Ce facteur correctif dépend des coefficients donnés dans le tableau 3-1 pour les différentes longueurs d'onde. Il est proportionnel au coefficient d'Ångström, car en fonction de la taille des particules, la fonction de phase est différente, et donc la proportion de lumière diffusée dans les zones aveugles va changer. Les procédures de calibrations définies par Anderson et Ogren sont appliquées au moins tous les 6 mois

	a_1	a_2
450nm	1.365	-0.156
550nm	1.337	-0.138
700nm	1.297	-0.113

Tableau 3-1: Coefficients pour la correction de la troncature angulaire du Néphélomètre TSI 3563 (Anderson and Ogren, 1998).

A partir des mesures du Néphélomètre, il est possible de calculer le coefficient d'Ångström et le facteur d'asymétrie, comme décrit section 2.2.2 et 2.2.5. La combinaison des mesures du MAAP et du Néphélomètre permet de calculer l'extinction et l'albedo de simple diffusion ω_0 (section 2.2.3)

3.1.3.3 Hygroscopicité et diffusion de la lumière : le Néphélomètre à humidité contrôlée

Le Néphélomètre à humidité contrôlé est un instrument conçu par le Laboratoire de Géologie et de Géophysique de l'Environnement (LGGE) de Grenoble.

Il a été installé au Puy de Dôme au cours de la campagne intensive de Juin 2011. Il est constitué du Néphélomètre Ecotech Aurora 1000 mesurant la diffusion de la lumière à 520nm de 10 à 170° (cette troncature n'est pas corrigée), auquel un système manuel de contrôle d'humidité a été ajouté, permettant de maintenir l'humidité à 90%. En combinant ces mesures avec celles du Néphélomètre TSI, il est possible de calculer le facteur d'accroissement de la diffusion avec l'humidité (section 6.1.2).

3.2 Télédétection

Les instruments de télédétection se situent sur le campus des Cézeaux (+45° 45' 50"N, +3° 6' 41"E) à 420m au dessus du niveau de la mer et à 11km de la station du PdD (Figure 3-4).

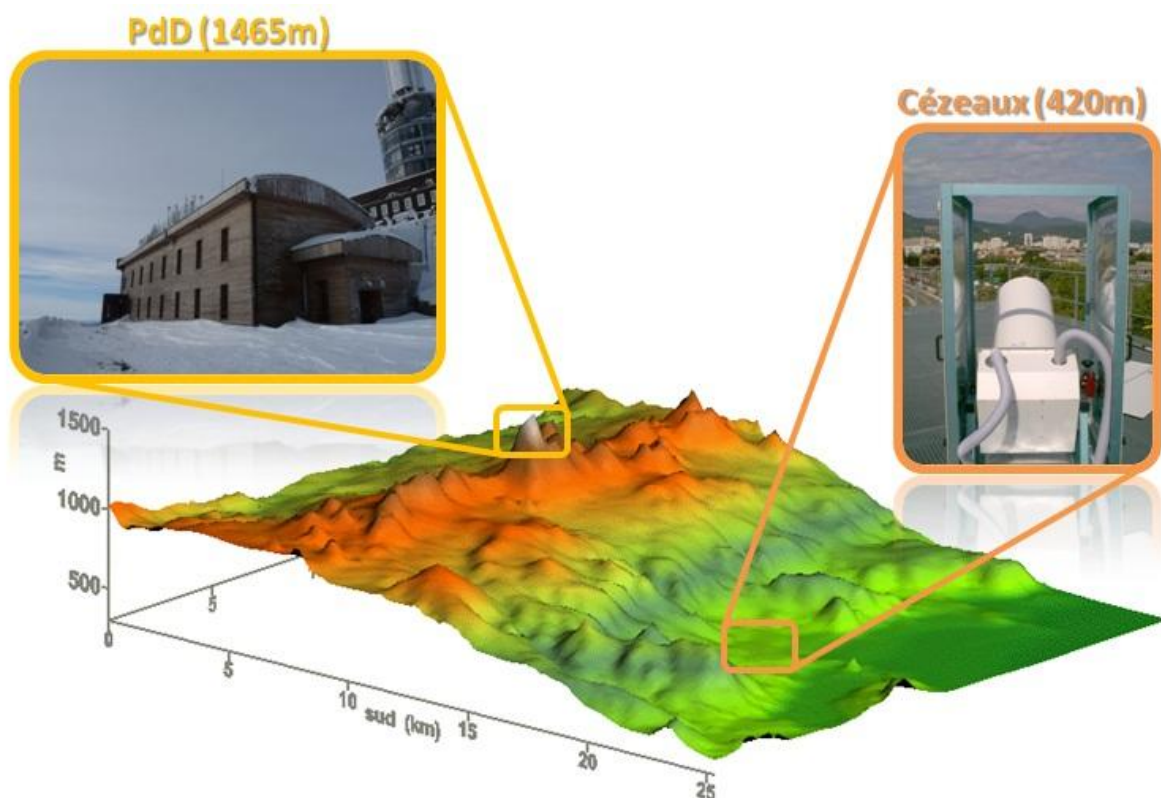


Figure 3-4 : Situation des instruments

3.2.1 Photomètre

Le photomètre (CIMEL CE-318) est un instrument qui vise le soleil en suivant son déplacement. L'ensemble des photomètres installés dans le monde forme un parc instrumental constituant le réseau AERONET avec des réseaux partenaires comme Photon

pour l'Europe et l'Afrique. La fonction première du photomètre est de mesurer l'épaisseur optique des aérosols intégrée sur la colonne atmosphérique. L'énergie reçue par l'instrument est comparée à celle qui devrait être reçue en l'absence d'aérosol (énergie théorique fonction de la position du soleil et de la position géographique du photomètre (Holben et al., 1998)). Ces mesures sont réalisées à 4 longueurs d'onde (440, 670, 870 et 1020nm) avec une largeur spectrale de 10nm. Ces bandes spectrales correspondent à des fenêtres atmosphériques où l'absorption des composés gazeux est faible. Techniquement, le photomètre est équipé d'un robot deux axes qui permet de suivre le mouvement du soleil dans les plans zénithaux et azimutaux. L'incertitude totale sur l'épaisseur optique obtenue est inférieure à 0.02 (Dubovik and King, 2000).

Cet instrument permet également de retrouver d'autres propriétés optiques grâce à l'inversion *Almucantar* (Dubovik and King, 2000) . Cette inversion permet, à partir de mesures du ciel en cercles parallèles à l'horizon, de restituer la distribution en taille des aérosols ($dV(r)/d\ln(r)$) entre 50nm et $10\mu\text{m}$, la fonction de phase $P(\theta)$, l'albedo de diffusion simple ω_0 et l'indice de réfraction complexe. L'indice complexe de réfraction peut être obtenu pour des épaisseurs optiques supérieures à 0.5 à 440nm avec une erreur absolue de 0.04 sur la partie réelle et 30% pour la partie imaginaire d'un aérosol fortement absorbant (50% pour un aérosol faiblement absorbant). La distribution volumique est représentée par la fonction de densité logarithmique du volume total ($dV/d\log(r)$) et s'exprime en μm^3 de particules par μm^2 de surface d'air. La normalisation de cette distribution avec une échelle d'altitude adaptée est donc nécessaire. De manière générale, la hauteur de la couche limite dans laquelle les aérosols sont supposés être mélangés de manière homogène est utilisée.



Figure 3-5: Photographie du photomètre CIMEL réalisant une visée directe du soleil.

Les résultats obtenus par un instrument passif comme le photomètre sont intégrés sur toute la colonne de l'atmosphère et ne fournissent aucune information sur la distribution verticale des aérosols. A l'opposé la télédétection active permet de connaître cette distribution, nous l'utiliserons donc au cours de cette étude.

3.2.2 Lidar

3.2.2.1 Principe

Le Lidar (Light Detection And Ranging) est un instrument de télédétection active. Un Lidar est principalement composé d'un laser et d'un télescope. Quand le faisceau laser rencontre un objet (molécule, particule ou goutte) certains photons sont rétrodiffusés puis captés par le télescope.

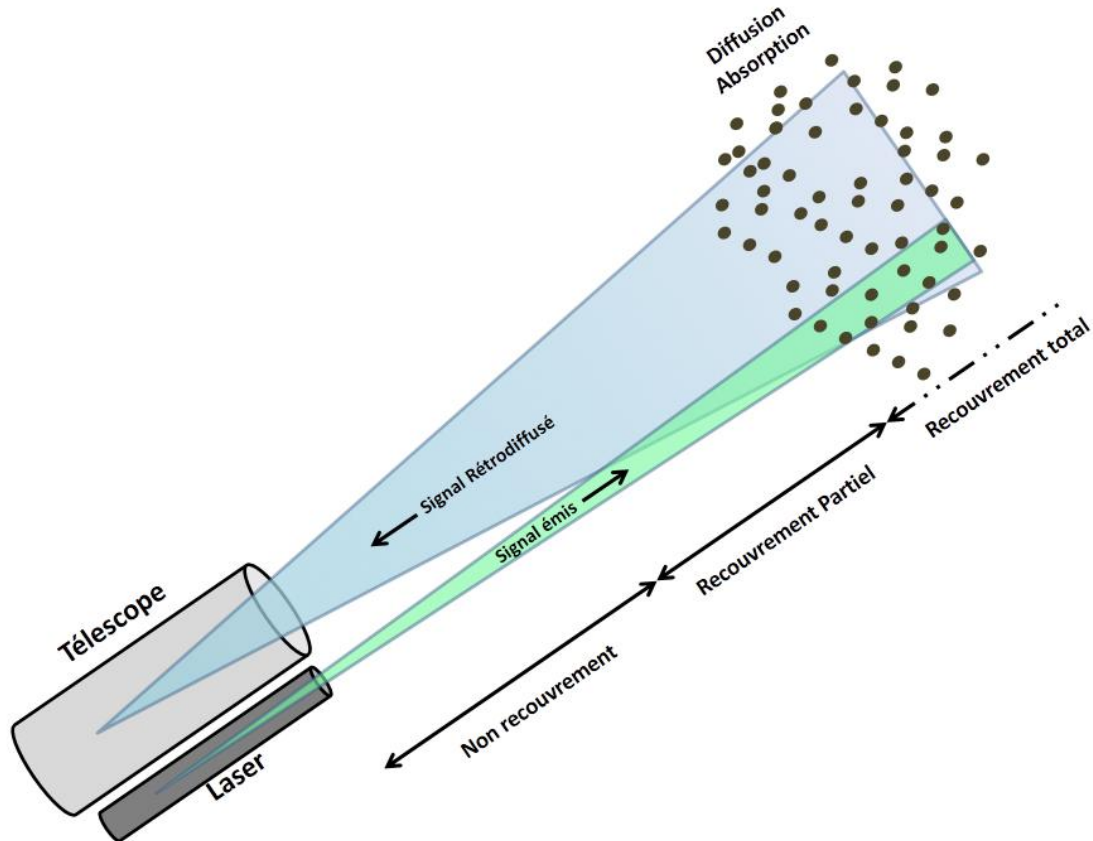


Figure 3-6: Illustration schématique d'un Lidar

Le Lidar de l'OPGC, construit par Raymetrics, émet des pulses de 75mJ à 355nm avec une fréquence de 10Hz. Le télescope est de type cassegain avec un miroir primaire de 300mm de diamètre et une distance focale de 600nm. Il est directement couplé via des fibres optiques à la boîte de détection de 4 canaux (Papayannis et al., 2005). La quantité de lumière rétrodiffusée est décrite par l'équation Lidar :

$$P(R) = \frac{E_0 C O(R)}{R^2} \beta(R) e^{\int_0^R -2\alpha(r) dr} \quad (3.2)$$

Avec $P(R)$ la puissance rétrodiffusée à une distance R du Lidar, E_0 l'énergie laser émise, C la constante Lidar décrivant l'efficacité du système optique et de détection, $O(R)$ la fonction de recouvrement représentant la portion du faisceau laser dans le champ de vue du télescope à

la distance R . $\beta(R)$ et $\alpha(R)$ représentent les coefficients de rétrodiffusion et d'extinction, somme des contributions moléculaire et particulaire.

3.2.2.2 Fonction de recouvrement

Le Lidar est aveugle dans les premières couches de l'atmosphère, quand le faisceau Laser et le champ de vue du télescope ne se recoupent pas, la fonction de recouvrement $O(R)$ est nulle (Figure 3-6). Le signal rétrodiffusé augmente progressivement avec la portion du faisceau laser à l'intérieur du champ de vue du télescope. Quand le faisceau est entièrement dans le champ de vue, on atteint l'altitude de recouvrement total, $O(R)$ est égal à 1. La fonction de recouvrement peut être utilisée pour restituer un profil dans les basses couches de l'atmosphère, et devient un facteur important d'incertitudes. Il faut donc la connaître avec précision. Il est possible de déterminer la fonction de recouvrement expérimentalement, en inclinant le Lidar horizontalement. En considérant que l'atmosphère est homogène dans les basses couches de l'atmosphère, le signal Lidar normalisé devient donc uniquement dépendant de la fonction de recouvrement et permet de déterminer celle-ci.

Il est également possible de calculer la fonction de recouvrement de manière théorique (Kuze et al., 1998). Mais cela suppose un alignement parfait du télescope. Un exemple de détermination expérimentale et théorique de la fonction de recouvrement est montré Figure 3-7.

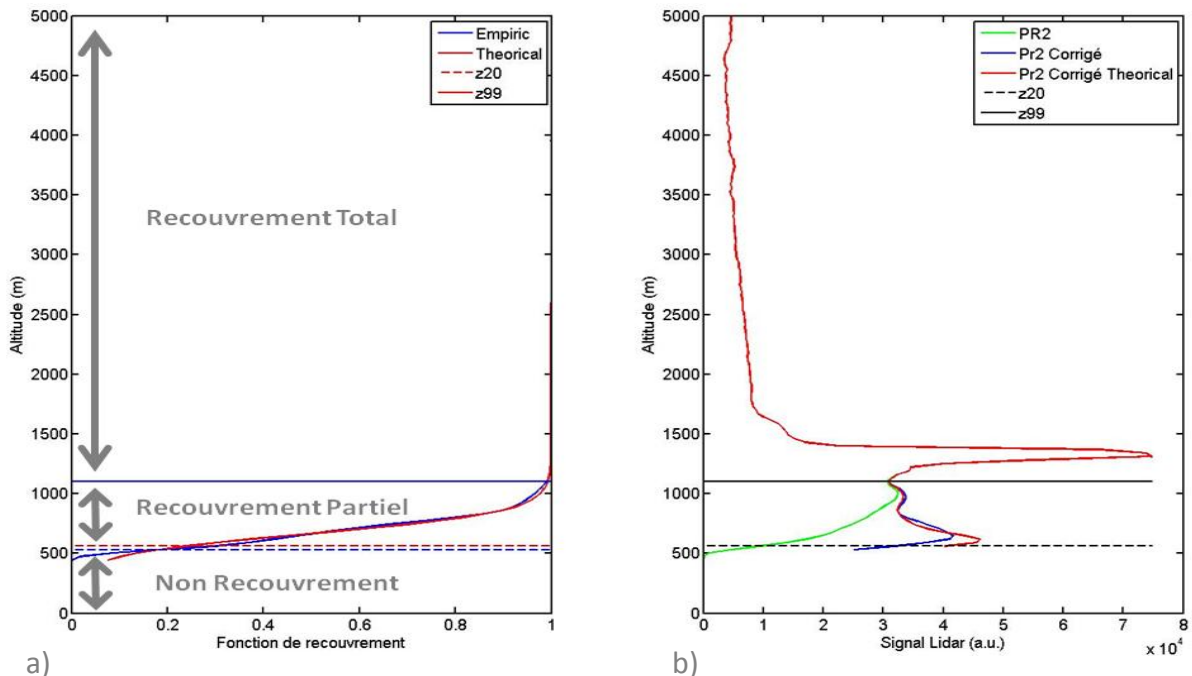


Figure 3-7: a): Fonctions de recouvrement théorique (rouge) et mesurée (bleue). b): un profil Lidar brut (vert) puis corrigé avec le facteur de recouvrement mesuré (bleu) et théorique (rouge). En trait plein est représentée l'altitude de recouvrement total (z99) et en trait discontinu l'altitude où le recouvrement est de 20% (z20).

Si le facteur de recouvrement est supérieur à 99% on considère que le recouvrement est total. L'altitude de recouvrement total (z_{99}) est représentée en trait plein et l'altitude où la fonction de recouvrement est supérieure à 20% (z_{20}) en trait discontinu. Comme les fonctions de recouvrement théorique et mesuré divergent en dessous de l'altitude z_{20} , on utilisera le signal Lidar à partir de cette altitude. On préférera également la fonction de recouvrement mesurée car elle est valable même si l'alignement n'est pas parfait. Le profil Lidar et les fonctions de recouvrement présentés sont typiques de ceux réalisés au cours de cette étude, avec un recouvrement total autour de 1100m. L'altitude de recouvrement est principalement dépendante de la taille du diaphragme permettant de changer le champ de vue du télescope. Un diaphragme de 4mm est généralement utilisé. D'autres tailles de diaphragme (de 1 à 3mm) ont également été utilisées pour améliorer la sensibilité du signal dans les hautes couches de l'atmosphère (Cirrus, panache volcanique). Dans ce cas l'altitude de recouvrement totale était plus haute mais le niveau de bruit était plus faible, et donc la qualité des mesures à haute altitude était meilleure.

3.2.2.3 Signal moléculaire

A 355nm, le signal moléculaire représente une composante importante du signal Lidar, qu'il faut ôter au signal total pour restituer le signal des particules. On peut calculer la rétrodiffusion moléculaire à partir des profils de pressions et de température (Bucholtz, 1995). Comme il n'y a pas de radio sondages à proximité du site de mesure, on utilisera les profils standards de pressions et de températures. Ces profils sont ajustés en fonction des mesures de pression et d'humidité réalisés aux Cézeaux.

3.2.2.4 Hauteur de la Couche Limite

Une des premières informations que fournissent les profils de rétrodiffusion mesurés par LIDAR est la hauteur de la Couche Limite Atmosphérique (CLA) (cf. Chapitre 2). La hauteur de la couche limite est primordiale pour mieux comprendre les mesures réalisées au Puy de Dôme. Différentes techniques LIDAR ont été développées pour identifier le sommet de la couche limite. Elles se basent généralement sur la forte variation de la concentration d'aérosols, et donc du signal Lidar, entre la couche limite et la troposphère libre. Les plus utilisées sont celles mesurant la variance d'un signal LIDAR, son gradient (c'est à dire la dérivée première ou seconde du signal Lidar) et celle mesurant l'analogie entre une ondelette et le signal Lidar. Cette dernière est appelée WCT (Wavelet Covariance Technique, Brooks, 2003). Ces méthodes ont été comparées, la méthode de la WCT est considérée comme plus fiable (Baars et al., 2008; Hervo, 2009). Cette méthode suppose que puissance rétrodiffusée va diminuer au sommet de la couche limite. Le maximum de la fonction WCT calculée se situera au sommet de la couche limite. On calcule la WCT avec l'équation suivante

$$WCT_f(a,b) = \frac{1}{a} \int_{z_b}^{z_t} S(r) h\left(\frac{r-b}{a}\right) dr \quad (3.3)$$

Avec la fonction de Haar h:

$$h\left(\frac{r-b}{a}\right) = \begin{cases} +1, & b - \frac{a}{2} \leq r \leq b \\ -1, & b \leq r \leq b + \frac{a}{2} \\ 0, & \text{autrement} \end{cases} \quad (3.4)$$

Avec $S(r)$ le signal corrigé par l'altitude au carré (Pr^2), r l'altitude, r_b et r_t respectivement les limites inférieure et supérieure du signal lidar. a est la largeur du pas et b l'emplacement de ce pas. Nous prendrons $a=12 \Delta r$ comme conseillé par Baars et al. (2008), Δr étant la résolution spatiale du Lidar (7,5 m pour le Lidar de l'OPGC). En utilisant les équations 3.2 et 3.4, la forme discrétisée peut s'écrire :

$$WCT = \frac{1}{n} \left(\sum_{b-\frac{a}{2}}^b P(r)r^2 - \sum_b^{b+\frac{a}{2}} P(r)r^2 \right) \quad (3.5)$$

Nous allons donc calculer la WCT à chaque altitude. Dans le cas d'un ciel clair, à l'interface entre la couche limite et la troposphère libre, la quantité d'aérosols, et donc le signal Lidar rétrodiffusé, décroissent rapidement. On observera donc une similitude entre la fonction de Haar et le profil Lidar. La WCT calculée sera maximum à cette altitude.

La hauteur de la CLA correspond donc au maximum de WCT calculé pour chaque profil Lidar. Ces mesures font l'hypothèse que la couche limite est peu déformée par le relief est que les aérosols sont répartis de façon homogènes. D'autres méthodes ont été proposées pour déterminer la hauteur de la couche limite, notamment en utilisant des transformées de fourrier (Martucci et al., 2010) ou en combinant plusieurs paramètres atmosphériques, comme le vent, l'extinction des aérosols, la concentration d'ozone, la réflectivité radar ou la turbulence (Delbarre et al., 2005). L'algorithme STRAT développé au SIRTa (Morille et al., 2007) permet également de détecter la hauteur de couche limite, les zones de nuages ou moléculaires. Cet algorithme a été très utile au début de notre étude pour comparer nos résultats avec des méthodes déjà validées (Hervo, 2009). Pour le Lidar de l'OPGC l'algorithme STRAT ne détectait pas toujours la présence de la hauteur de la couche Limite. Nous avons également montré que, en multipliant la valeur de la WCT par l'altitude, le maximum de cette valeur se situe au sommet de la couche de transition (ou de la couche résiduelle la nuit). C'est le principal intérêt de l'algorithme développé. Il permet de différencier la couche limite convective de la couche de transition (ou de la couche résiduelle la nuit) lorsque celle-ci est présente.

3.2.2.5 Détection des nuages

Il n'est pas possible de réaliser des inversions Lidar si des nuages sont présents dans les premières couches de l'atmosphère car le signal rétrodiffusé par les nuages peut saturer le

récepteur. De plus, ils ne permettent pas d'utiliser une portion de l'atmosphère comme zone de référence moléculaire (algorithme de Klett section 3.2.2.6). Il est donc nécessaire de supprimer les profils avec présence de nuage. Cela peut se faire soit manuellement en étudiant chaque profil soit à l'aide d'un algorithme. J'ai choisi d'utiliser la forte variabilité temporelle et spatiale des nuages pour les détecter. On calculera donc l'écart type d'un signal Lidar normalisé dans le temps et dans l'espace comme indicateur de la présence d'un nuage. D'autres méthodes ont également été testées, comme le calcul de la dérivée seconde d'un signal ou l'utilisation d'ondelette (Morille et al., 2007), mais ces méthodes se sont avérées moins robustes et plus couteuse en temps de calcul. La Figure 3-8 présente un exemple de détection de nuage le 24 juin 2012. De gauche à droite la Figure 3-8 montre: le signal Lidar (Pr2) normalisé, l'écart type spatial et temporel calculé (sous forme de graphe en 2 puis en 3 dimensions) et enfin le masque nuage correspondant. La journée est marquée par la présence de nuages dans les basses couches vers 08h UTC et d'une zone de nuage s'abaissant progressivement au cours de la journée de 7000 à 2000m. L'algorithme basé sur l'écart type permet bien de détecter ces nuages tout en les différenciant des aérosols de la couche limite qui évolue autour de 2000m et des aérosols supermicroniques transportés en fin de journée entre 3500m et le sol. Le calcul du rapport de dépolarisation et les mesures in situ permettent de confirmer l'hypothèse de la présence de particules supermicroniques en fin de journée.

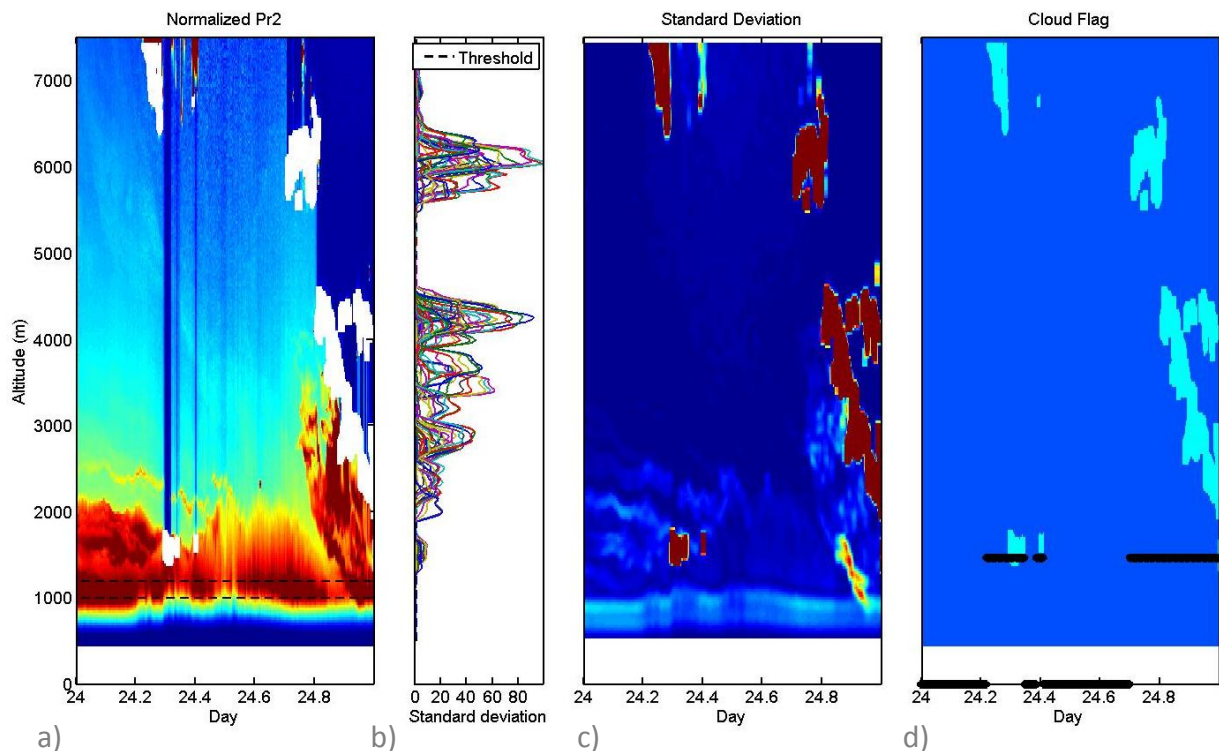


Figure 3-8 Exemple de l'algorithme de détection des nuages. a: puissance Lidar normalisée. Les Nuages détectés sont remplacés par des carrés Blanc. b et c: Ecart type correspondant. d: masque nuages (les nuages détectés sont en bleu clair)

3.2.2.6 Extinction LIDAR à partir du signal élastique

Le calcul de l'extinction est une première étape à la restitution d'un profil de masse d'aérosol et d'un impact radiatif sur toute la colonne atmosphérique. On peut exprimer la rétrodiffusion Lidar en fonction de la puissance rétrodiffusée (Weitkamp, 2005):

$$\beta_{aer}(R) = -\beta_{mol}(R) + \frac{S(R)e^{-2 \int_{R_0}^R (L_{aer}(r) - L_{mol}(r)) \beta_{mol} dr}}{\frac{S(R_0)}{\beta_{aer}(R_0) + \beta_{mol}(R_0)} - 2 \int_{R_0}^R L_{aer}(r) S(r) e^{-2 \int_{R_0}^r (L_{aer}(r') - L_{mol}(r')) \beta_{mol}(r') dr'} dr} \quad (3.6)$$

Avec $\beta_{aer}(R)$ le facteur de rétrodiffusion particulaire et β_{mol} le moléculaire. $S(R)$ est le signal Lidar corrigé en fonction de distance ($S(R)=P(R)R^2$). R_0 l'altitude de référence ou l'on considère que l'on mesure seulement un signal moléculaire, en général dans la haute troposphère. Pour résoudre cette équation on utilise la méthode définie par (Klett, 1985).

En première hypothèse, la concentration en aérosol dans la zone de référence est considérée comme nulle. La rétrodiffusion moléculaire est ensuite obtenue à partir d'un profil de pression et de température standard ou obtenu par un modèle. Le profil d'extinction particulaire obtenu varie peu selon que les profils de pression et de température soient standards ou modélisés. Cependant, si la température au sol est mal considérée cela peut introduire un biais sur toute la colonne (Whiteman, 2003a). Pour calculer la rétrodiffusion moléculaire, on utilise les équations de (Bucholtz, 1995).

Pour calculer un profil d'extinction à partir du profil de rétrodiffusion des aérosols obtenu, on définit le coefficient extinction-sur-rétrodiffusion L , aussi appelé rapport Lidar. C'est le rapport entre l'extinction α et la rétrodiffusion β :

$$L = \frac{\alpha}{\beta} \quad (3.7)$$

Le rapport Lidar est connu pour les gaz ($L_{mol}=8\pi/3$ sr). Pour les aérosols, L_{aer} est dépendant des propriétés microphysiques, chimiques et morphologiques des particules. Ces propriétés dépendent du type d'aérosol et de l'humidité ce qui en fait le paramètre clé dans l'inversion. Nous reviendrons sur son calcul dans le paragraphe 3.3.4. Une fois le rapport Lidar déterminé, le profil d'extinction particulaire est calculé en multipliant le rapport Lidar par le coefficient de rétrodiffusion particulaire à chaque altitude.

Des valeurs typiques du rapport Lidar, déterminées par un Lidar Raman à 532nm (Weitkamp, 2005), sont données dans le Tableau 3-2. La variabilité des valeurs est importante, le rapport Lidar pouvant varier d'un facteur deux pour une même masse d'air. Il est donc important de réaliser une climatologie du rapport lidar représentative de la région de mesure.

Marin	20-35sr
Poussière Saharienne	50-80sr
Particules urbaines peu absorbantes	35-70sr
Particules absorbante provenant de feux de biomasse	70-100sr

Tableau 3-2 : Valeur typiques du rapport Lidar pour différents rapports Lidar à 532nm d'après Weitkamp (2005)

3.2.2.7 Rapport de dépolarisation

Le Lidar mesure la puissance du faisceau rétrodiffusé élastiquement à 355nm selon deux polarisations : parallèle ($P_{//}$) et perpendiculaire ($P_{\perp}$). La lumière rétrodiffusée est dépolarisée si elle est réémise par un objet non sphérique. On peut calculer le rapport de dépolarisation volumique δ à une distance r :

$$\delta(r) = \frac{P_{\perp}(r)}{P_{//}(r) + P_{\perp}(r)} \quad (3.8)$$

Le rapport de dépolarisation est une propriété intensive qui ne dépend pas de la concentration des particules. Il peut être utilisé pour différencier des couches d'aérosols détectées par Lidar (Ansmann et al., 2011)

3.2.2.8 Voies Raman

Le Lidar mesure également la lumière rétrodiffusée inélastiquement à 387 et 408nm. Cette diffusion inélastique est appelée diffusion Raman, du nom du prix Nobel de Physique *Chandrashekhara Venkata Raman* qui l'a démontré en 1928. Elle est provoquée par le passage d'une molécule dans un autre état vibrationnel et rotationnel (Weitkamp, 2005). Le décalage en longueur d'onde dépend uniquement de la composition chimique de la matière. Cela permet donc de caractériser la concentration d'un composé chimique voulu. Dans le cas du Lidar de l'OPGC les composés étudiés sont N₂ et H₂O. La diffusion Raman est beaucoup plus faible que la diffusion Rayleigh. Avec le Lidar de l'OPGC on ne peut l'utiliser que la nuit. L'information donnée par la diffusion Raman permet de lever une hypothèse sur l'une des inconnues de l'équation LIDAR, et ainsi de restituer le signal aérosol sans avoir recours à un autre instrument. L'algorithme développé au cours de cette thèse pour calculer l'extinction des aérosols à partir du signal Lidar Raman est détaillé au paragraphe 3.3.5.

3.3 Méthodologie, algorithmes

3.3.1 Rapport Masse-extinction

Le Lidar de l'OPGC permet de mesurer le profil d'extinction des aérosols. Or, il peut être utile de caractériser la masse d'aérosols pour leurs effets climatiques, pour la qualité de l'air, ou même la sécurité aérienne en cas d'éruption volcanique. Il faut donc appliquer un algorithme de restitution du profil de masse d'aérosol à partir du profil d'extinction mesuré. η peut également être utilisé dans les modèles globaux pour calculer l'épaisseur optique à

partir de masses d'aérosols modélisée (Bian et al., 2009). On appelle η le rapport entre la masse et l'extinction d'un aérosol.

$$\eta(\lambda) = \frac{M}{\sigma_{sca(\lambda)} + \sigma_{abs(\lambda)}} \quad (3.9)$$

Pour calculer η nous utilisons les mesures in situ réalisées au sommet du Puy de Dôme, à partir de la masse d'aérosol M en $\mu\text{g.m}^{-3}$ mesurée par le TEOM, de la diffusion ($\sigma_{sca(\lambda)}$) mesurée par le néphélomètre et l'absorption ($\sigma_{abs(\lambda)}$) mesurée par le MAAP. Le fait de mesurer le coefficient d'absorption à 637nm au lieu de 355nm introduit une erreur systématique dans le calcul de η . Cette incertitude sera discutée au paragraphe 3.4.5.

Ce paramètre est dépendant de la longueur d'onde et du type d'aérosol (par exemple sa distribution en taille, sa composition chimique (Hess et al., 1998)). L'hygroscopicité des particules a également un impact (Bian et al., 2009; Hänel, 1972). Cependant, nous n'avons pas de moyen expérimental de déterminer la variation de η avec l'humidité. Nous utiliserons donc la valeur sèche de η comme première approximation.

Une fois le profil d'extinction connu on peut appliquer un coefficient masse extinction pour obtenir un profil de masse d'aérosols. Pour cela on utilisera la climatologie du rapport masse extinction détaillée dans le paragraphe 4.2.9.

3.3.2 Calcul de l'indice de réfraction

L'indice de réfraction m est un paramètre essentiel pour déterminer la fonction de phase et donc le rapport Lidar avec les mesures In situ. Pour l'estimer on utilise une méthode itérative et multi instrumentale. L'algorithme mis en place pour retrouver l'indice de réfraction est représenté en orange sur la Figure 3-9.

La première étape consiste à mesurer la distribution en taille à l'aide du SMPS et de l'OPC. Cela permet de calculer les paramètres optiques correspondant avec le code de Mie développé par Bond et al. (2006). En comparant l'extinction obtenue avec celle mesurée par la combinaison du MAAP et du néphélomètre, j'ai mis en place une méthode itérative qui permet de faire varier l'indice de réfraction jusqu'à ce que les deux extinctions soit égales à $\pm 10\%$. Cette méthode initialement proposée par (Raut and Chazette, 2007) et utilisé par (Bukowiecki et al., 2011) lors de l'événement volcanique de l'Eyjafjalla en 2010 est à la base d'autres inversions mises en place lors de cette thèse.

Pour calculer l'indice de réfraction, on utilise les données brutes du néphélomètre, sans utiliser la correction de la troncature angulaire proposée par (Anderson and Ogren, 1998). Selon Bond et al. (2009) il est préférable d'utiliser le code de Mie pour simuler la troncature. En effet, pour des aérosols fortement absorbants ($m_i > 0.1$), la correction d'Anderson et Ogren peut conduire à de fortes erreurs. Pour cette partie, le code de Mie simulera donc une

diffusion en tenant compte de la sensibilité angulaire du néphélomètre (Anderson et al., 1996).

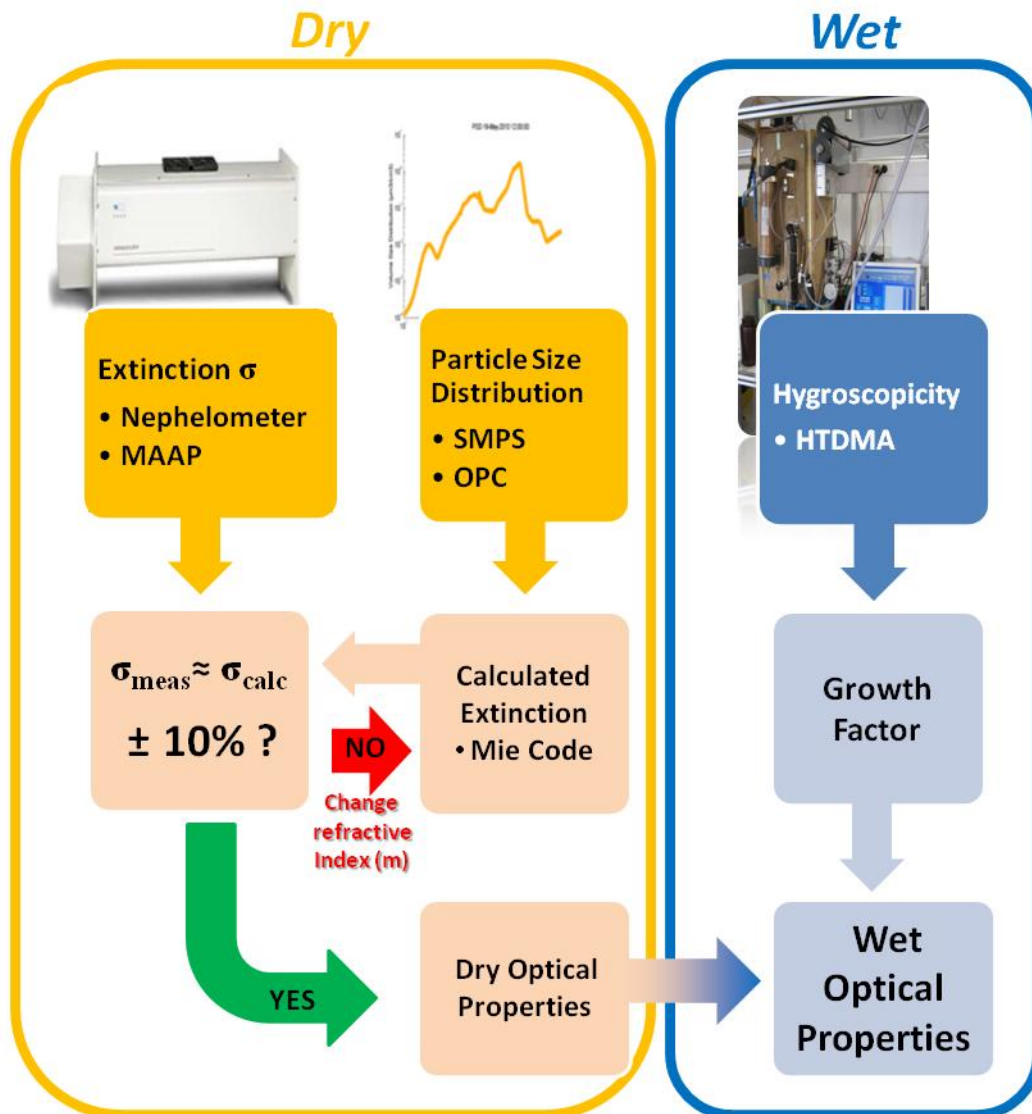


Figure 3-9: Schéma de l'approche multi instrumentée pour retrouver l'indice de réfraction et les propriétés optiques en fonction de l'humidité. En orange, les propriétés optiques et physiques sèches et en bleu celles humides. Les propriétés mesurées sont représentées en couleurs foncées et celles calculées en clair.

La Figure 3-10 représente le coefficient d'extinction mesuré par le Néphélomètre et le MAAP en fonction de celui calculé à 550nm par l'algorithme mis en place.

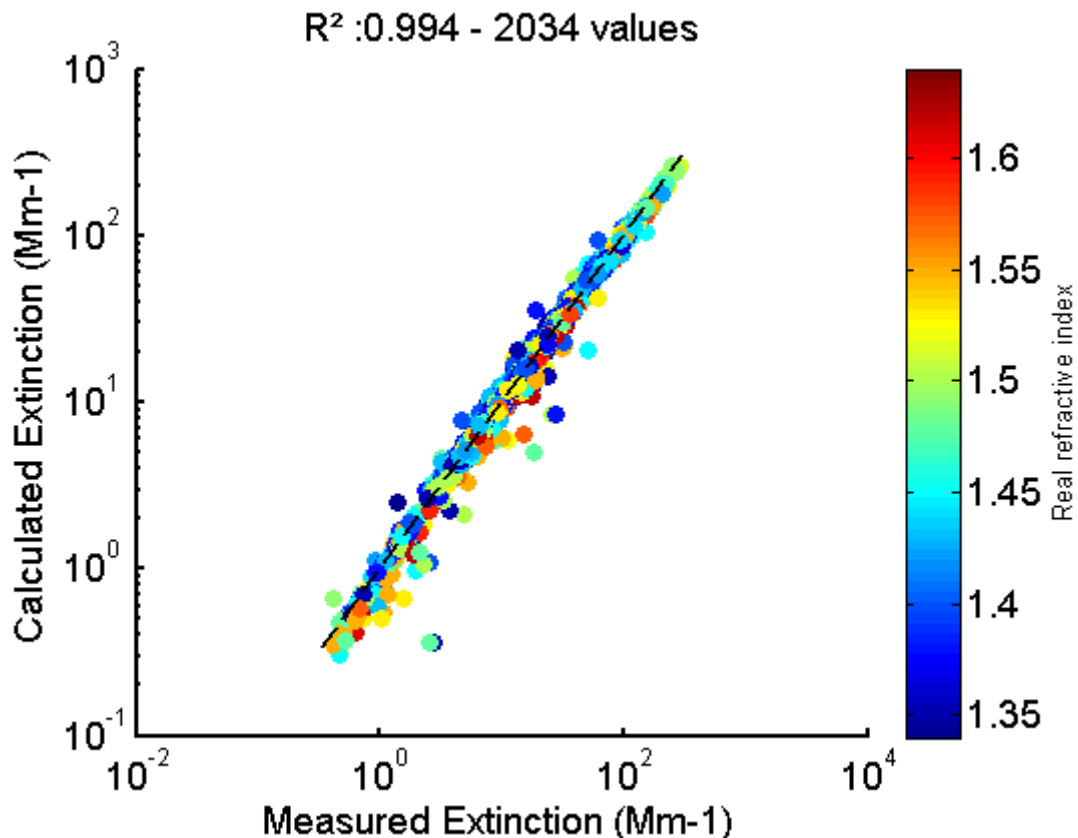


Figure 3-10 Coefficient d'extinction calculé à 550nm en fonction de celui mesuré. La couleur représente l'indice de réfraction réel.

Sur la Figure 3-10 on remarque la très bonne corrélation entre $\sigma_{\text{ext}}(550)$ calculé et celui mesuré ($r^2=0.994$). L'indice de réfraction réel retrouvé varie de 1.34 à 1.64, l'indice complexe de 0.001 à 0.054. L'inversion a été calculée sur plus de 2000 intervalles de 3 h soit plus de 250 jours entre 2010 et 2011. Ce résultat est attendu puisque la méthode itérative modifie l'indice de réfraction pour que les résultats concordent. Cependant cela confirme le grand nombre de mesures où les instruments fonctionnaient simultanément et sans différence significative.

L'indice de réfraction est l'élément de base qui nous permet de calculer les autres paramètres optiques avec les mesures in situ comme le rapport Lidar (paragraphe 3.3.4.1.) ou l'impact de l'hygroscopicité sur les propriétés optiques.

3.3.3 Facteur d'accroissement optique

Un facteur d'accroissement optique peut être calculé pour chaque propriété optique (coefficient de diffusion, d'extinction...) pour prendre en compte l'évolution due à la présence d'eau dans la particule. Dans un premier temps, la distribution en taille est paramétrée par trois modes lognormaux (voir paragraphe 3.1.2.3). L'augmentation des diamètres moyens de ces modes en fonction de l'humidité est ensuite calculée à partir des mesures HTDMA. L'indice de réfraction humide peut être calculé en suivant la "règle de mélange pondérée par le volume" décrit par l'équation suivante: (Hasan and Dzubay, 1983; Michel Flores et al., 2012)

$$m_{wet} = V_{dry}m_{dry} + (V_{wet} - V_{dry}) * m_{water} \quad (3.10)$$

Avec m_{wet} l'indice de réfraction humide, m_{dry} celui calculé à l'aide de la méthode décrite au paragraphe 3.3.2, m_{water} l'indice de réfraction de l'eau (1.333). V_{dry} est la fraction volumique de la distribution sèche et V_{wet} est celle de la distribution calculée après une croissance hygroscopique virtuelle.

Pour chaque paramètre optique i on peut déterminer le changement provoqué par l'humidité en terme de facteur d'accroissement optique $f_i(RH, \lambda)$, dépendant de l'humidité RH et de la longueur d'onde λ . Par exemple pour le coefficient de diffusion, le facteur de d'accroissement $f_{\sigma_{sca}}(RH, \lambda)$ est défini comme:

$$f_{\sigma_{sca}}(RH, \lambda) = \frac{\sigma_{sca}(RH, \lambda)}{\sigma_{sca}(RH_{dry}, \lambda)} \quad (3.11)$$

C'est donc le rapport entre le coefficient de diffusion à l'humidité voulue $\sigma_{sca}(RH, \lambda)$ et le coefficient de diffusion sec $\sigma_{sca}(RH_{dry}, \lambda)$. Le facteur d'accroissement est défini de la même manière pour l'absorption, l'extinction et les autres propriétés optiques, en appliquant le code de mie aux distributions sèches et humides.

Connaitre l'impact de l'humidité sur les propriétés optiques et radiatives, et en particulier les facteurs d'accroissement, permettra d'utiliser des relations simples à travers les facteurs d'accroissement, sans nécessiter l'utilisation d'un code de mie pour chaque distribution d'aérosols. Nous allons maintenant nous intéresser au rapport Lidar qui est essentiel pour interpréter les mesures Lidar sur toute la colonne atmosphérique.

3.3.4 Rapport LIDAR

Il existe plusieurs méthodes pour déterminer le rapport. Grace à l'importante instrumentation disponible au puy de Dôme, nous avons quatre méthodes différentes pour calculer le rapport LIDAR.

3.3.4.1 A partir des mesures In situ

Le rapport Lidar peut être déterminé directement en utilisant la mesure de la diffusion, de l'absorption et de la rétrodiffusion (Anderson et al., 2000). Toute fois il existe peu de néphélomètres capables de mesurer la diffusion à 180°. La synergie des mesures in situ, décrite au paragraphe 3.3.2, permet de calculer les propriétés optiques des aérosols, en particulier la fonction de phase P11. On peut ensuite obtenir le rapport Lidar in situ L_i avec l'équation suivante :

$$L_i = \frac{4\pi}{\omega_0 P_{11}(180^\circ, in situ)} \quad (3.12)$$

Avec ω_0 l'albédo de simple diffusion calculé à partir du MAAP et du néphélomètre et $P_{11}(180^\circ, in situ)$ la fonction de phase à 180° calculée par le code de Mie.

Ce rapport Lidar est calculé pour un aérosol sec à l'altitude du Puy de Dôme. Comme les autres propriétés optiques, le rapport Lidar peut être recalculé à humidité ambiante en utilisant la méthode décrite au paragraphe ci-dessus.

Inconvénient : L_i est calculé pour une altitude fixe. Le fait de l'appliquer à toute la colonne peut introduire des erreurs dues, par exemple à la présence des couches d'aérosols de natures différentes en fonction de l'altitude. De plus, le fait d'utiliser un code de Mie introduit l'hypothèse que les particules sont sphériques. Cependant si on considère que le rapport Lidar varie peu, au sein d'un même type de masse d'air, on peut réaliser une climatologie et utiliser ces valeurs par la suite.

3.3.4.2 a partir des mesures photomètre

L'inversion *Almucantar* du photomètre donne directement la fonction de phase des aérosols intégrée sur toute la colonne atmosphérique (Dubovik and King, 2000). On peut donc calculer le rapport Lidar avec un photomètre L_p selon:

$$L_p = \frac{4\pi}{\omega_0 P_{11}(180^\circ, photomètre)} \quad (3.13)$$

Le rapport Lidar obtenu est calculé aux longueurs d'ondes mesurées par le photomètre (440, 670, 870 et 1020nm). Pour retrouver le rapport Lidar à 355nm le coefficient d'Ångström du rapport Lidar est calculé entre 440 et 670nm. De la même manière que pour le coefficient de diffusion ou d'absorption, le rapport Lidar à 355nm est ensuite extrapolé à partir de celui mesuré à 440 nm et du coefficient d'Ångström obtenu. (Ansmann et al., 2002; Bond and Bergstrom, 2006)

Inconvénient : L_p ne peut être calculé que les jours sans nuage, avec une faible résolution temporelle, et il est intégré sur toute la colonne atmosphérique. L'incertitude sur cette méthode ne peut pas être estimée directement (Bond and Bergstrom, 2006; Pedros et al., 2010)

3.3.4.3 Synergie Photomètre/Lidar

Lors de l'inversion Lidar, l'inconnue que l'on cherche à restituer est le coefficient d'extinction mais d'autres inconnues, notamment le rapport Lidar, sont présentes dans l'équation Lidar. L'épaisseur optique déterminée par le photomètre permet d'ajouter une équation au système. En effet, l'épaisseur optique est la somme des coefficients d'extinctions sur toute la colonne atmosphérique. On peut procéder par une méthode itérative jusqu'à obtenir une valeur du rapport lidar L_i pour que l'épaisseur optique mesurée par le photomètre soit égale à celle calculée avec le Lidar. Pour cela, l'épaisseur optique est calculée à 355nm à partir du coefficient d'Ångström entre les épaisseurs optiques mesurées par le photomètre à 440 et

670nm. Cette méthode est décrite par Pelon et al., (2002) et est utilisée pour déterminer le rapport Lidar dans le cas d'une couche limite homogène (Chazette, 2003; Duflot et al., 2011).

Inconvénient : L_i est également calculé à partir du photomètre. Il est donc calculé seulement les jours sans nuage et il est intégré sur toute la colonne atmosphérique. La fonction de recouvrement est un facteur critique pour déterminer L_i .

3.3.5 Extinction et Rapport Lidar avec le signal Lidar Raman

Pour s'affranchir des incertitudes sur la détermination indirecte du rapport Lidar il est possible de calculer directement l'extinction à l'aide du signal Raman. En effet, en calculant l'extinction moléculaire à partir des profils de pression et de température, cela permet d'enlever une inconnue au système, et de se libérer de l'approximation forte du rapport lidar.

On obtient l'équation suivante (Weitkamp, 2005):

$$\alpha_{aer(R,\lambda 0)} = \frac{\frac{d}{dR} \ln \left(\frac{N_{Ra}(R)}{S(R, \lambda Ra)} \right) - \alpha_{mol}(R, \lambda 0) - \alpha_{mol}(R, \lambda Ra)}{1 + \left(\frac{\lambda 0}{\lambda Ra} \right)^{a(R)}} \quad (3.14)$$

où l'extinction moléculaire peut être calculée à 2 longueurs d'ondes: celle d'émission, $\lambda 0$ (355nm) et celle du signal Raman $N_2 \lambda Ra$ (387nm).

La densité de l'atmosphère N_{Ra} est calculée en suivant la loi des gaz parfaits en fonction de la pression et de la température.

On prend généralement un coefficient d'Ångström d'extinction $a(R)$ égal à 1. En effet, Mattis et al. (2004) ont montré qu'une variation du coefficient d'Ångström ne représente qu'une faible variation dans le calcul final de l'extinction.

La partie critique du calcul est le bruit provoqué par la dérivée du logarithme du signal. En effet, le signal Raman est faible donc bruité, par conséquent sa dérivée l'est encore plus. Pour réduire ce bruit, on procédera au calcul de la dérivée avec différentes résolutions verticales en fonction de l'altitude et une importante moyenne temporelle (généralement 30min). On choisira ensuite la résolution verticale adaptée en fonction de l'altitude et les signaux seront fusionnés (*Gluing*). On calculera également la dérivée en calculant la pente du signal sur une fenêtre de taille définie (fit polynomial d'ordre 1) plutôt que sur 2 points. Le signal Raman pourra aussi également être préalablement lissé par une moyenne glissante, ou par un filtre de Savitzky-Golay d'ordre 2, qui permet de lisser le signal sans décaler en altitude les pics observés.

Comme nous l'avons déjà précisé, le signal Raman permet d'enlever une inconnue au système d'équation. La rétrodiffusion peut être calculée, sans faire d'hypothèses importantes comme le rapport Lidar, en utilisant l'équation suivante :

$$\beta_{aer}(R, \lambda_0) = \left[(\beta_{aer}(R_0, \lambda_0) + \beta_{mol}(R_0, \lambda_0)) \frac{P(R_0, \lambda R a) P(R, \lambda_0)}{P(R_0, \lambda R_0) P(R, \lambda R a)} \times \frac{N_{Ra}(R)}{N_{Ra}(R_0)} \frac{e^{-\int_{R_0}^R (\alpha_{aer}(r, \lambda R a) + \alpha_{mol}(r, \lambda R a)) dr}}{e^{-\int_{R_0}^R (\alpha_{aer}(r, \lambda_0) + \alpha_{mol}(r, \lambda_0)) dr}} \right] - \beta_{mol}(R, \lambda_0) \quad (3.15)$$

On considère que la rétrodiffusion est nulle dans la zone de référence (R0). On utilise également l'extinction et la rétrodiffusion moléculaire calculée à partir des profils de pression et température. L'extinction à la longueur d'onde d'émission est calculée en utilisant celle obtenue par le signal Lidar de la voie Raman. On utilisera pour cela la dépendance avec la longueur d'onde exprimée par le coefficient d'Ångström a . Cela revient à multiplier l'extinction Raman par $(\lambda R a / \lambda_0)^a$. Soit par un facteur 1.0901 si on utilise un coefficient d'Ångström égal à 1. a varie généralement entre 0 et 2 mais l'incertitudes associée est négligeable (moins de 1%, Whiteman, 2003b).

On peut ainsi calculer le rapport Lidar Raman L_r , pour le comparer aux valeurs obtenues par les autres méthodes de calcul, en faisant le rapport entre la rétrodiffusion et l'extinction:

$$L_r = \frac{\alpha_{aer}(R, \lambda_0)}{\beta_{aer}(R, \lambda_0)} \quad (3.16)$$

Dans le cadre des projets ACTRIS/EARLINET, l'ensemble des Lidar du réseau (dont celui de l'OPGC), doit subir des séries de test et de validations dans un but d'harmonisation des mesures Lidar au niveau Européen. L'un des tests organisés dans le cadre d'EARLINET est l'inversion d'un signal LIDAR synthétique fourni à l'ensemble des groupes du réseau. (Pappalardo et al., 2004) Les algorithmes d'inversion du signal Lidar mis en place au cours de ce travail ont donc été comparés à ceux utilisés dans le réseau EARLINET. Les résultats obtenus montrent un bon accord (voir Figure 3-12). Le coefficient de corrélation obtenu pour l'extinction est 0.94 et montre la validité de l'algorithme développé.

Inconvénient : Les voies Raman ne peuvent être utilisées seulement la nuit. De plus, comme le montre la Figure 3-12, même dans un cas théorique et avec signal de bonne qualité, il est difficile d'obtenir une valeur exacte du rapport lidar (à 20% près dans la couche limite, Pappalardo et al., 2004).

Ces 4 méthodes présentent donc des avantages et des inconvénients et sont donc complémentaires. On procédera à leur intercomparaison dans le paragraphe 4.6.

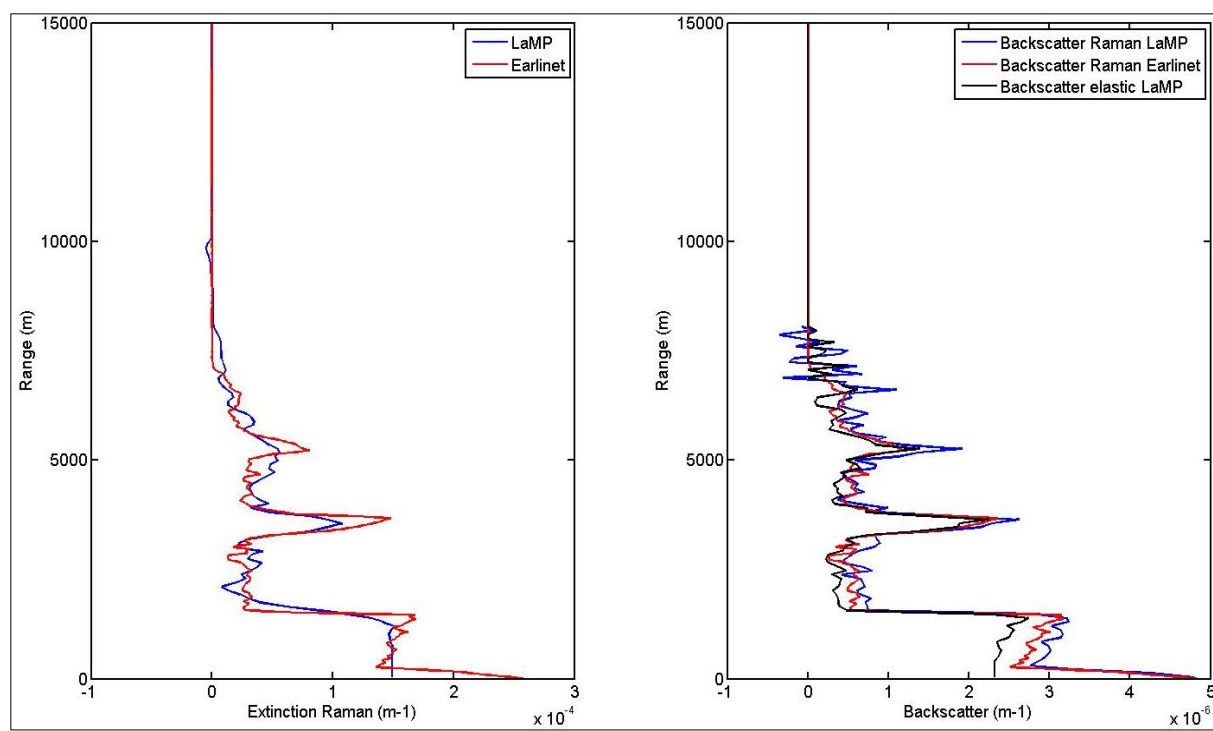


Figure 3-11: Comparaison algorithmes de calcul d'extinction et de rétrodiffusion pour l'intercomparaison d'algorithme dans le cadre d'EARLINET

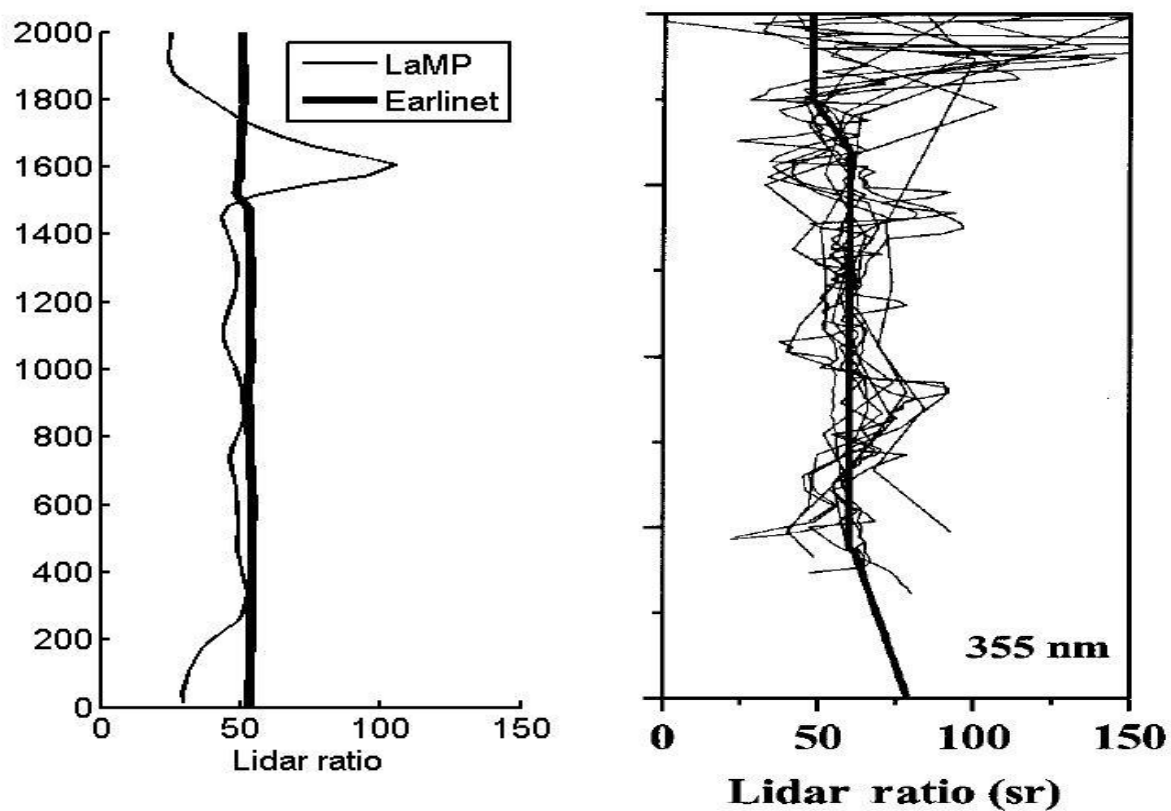


Figure 3-12: Gauche: comparaison du rapport Lidar retrouvé par l'algorithme mis en place au cours de cette thèse et celui d'Earlinet. Droite: résultats de l'intercomparaison Earlinet (Pappalardo et al., 2004)

3.4 Incertitudes et précision

Il est essentiel d'estimer l'incertitude sur les valeurs obtenues en combinant plusieurs instruments. Nous estimerons cette incertitude, pour chaque méthode de restitution, en propageant les erreurs relatives à chaque mesure.

3.4.1 Distribution en taille

Le détail des pertes et des incertitudes du SMPS sont référencées dans Venzac et al.(2009). La précision sur la taille de particules, estimée à partir de billes de latex, a pu être déterminée à 4%. La correction des charges préconisée par (Wiedensohler, 1988) est appliquée. Toutefois durant certaines périodes de mesures (notamment Juin 2009 à Décembre 2010) la source radioactive n'était pas toujours présente. Il n'y a pas eu d'inversions réalisées pendant cette période. Depuis décembre 2010 un chargeur Corona (Li and Chen, 2011) neutralise l'aérosols en amont du SMPS. Une intercomparaison entre le SMPS du PdD et un SMPS standard du réseau ACTRIS a été menée du 17 au 16 Juin 2011. Les résultats montrent un très bon accord entre les deux instruments (Figure 3-13). L'écart entre les deux instruments est calculé à moins de 10% par gamme de taille.

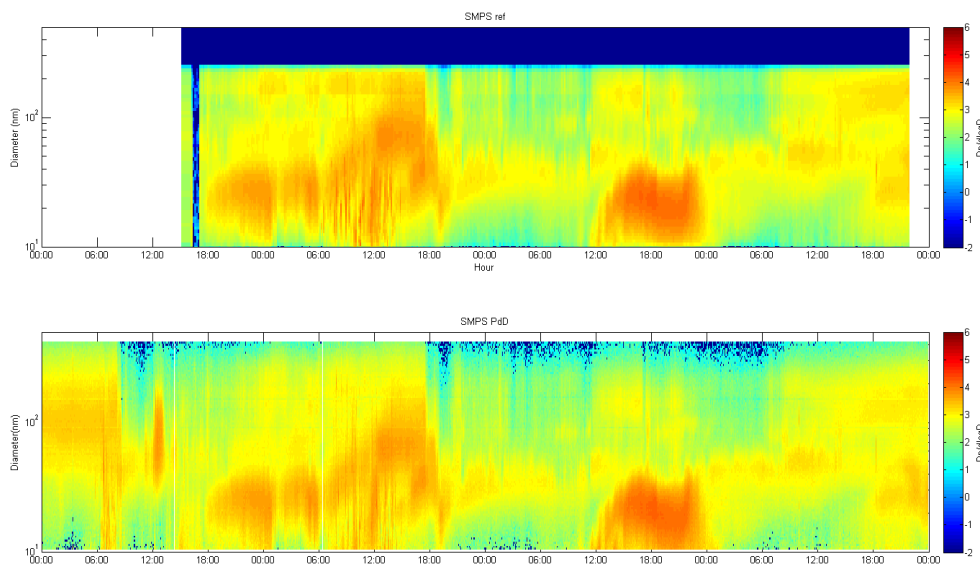


Figure 3-13: Distribution en taille mesurée par les SMPS de référence (haut) et le SPMS du Puy de Dôme (bas) lors de l'intercomparaison du 17 au 19 Juin 2011.

Par définition, les incertitudes associées à un OPC sont plus importantes qu'une mesure directe comme un APS (Aerosol Particle Sizer) car elles dépendent de l'indice de réfraction de l'aérosol et donc de la chimie de l'aérosol. Pour le Grimm 1.108 le constructeur estime à 2% la reproductibilité. Mais d'après Peters et al. (2006) , même si la taille est correctement mesurée lors de calibration PSL, des erreurs systématiques sont observées tant en nombre et en masses comparé à d'autres instruments tel que l'APS 3221 de TSI. Burkart et al. (2010) estiment cette différence à moins de 10% la différence entre le nombre de particules mesuré par l'OPC et celui mesuré par un système DMPS.

3.4.2 Propriétés optiques

L'incertitude sur le coefficient de diffusion mesuré par le néphélomètre TSI 3563 est de moins de 7% (Anderson et al., 1996). Pour déterminer σ_{sca} à une autre longueur d'onde λ , on peut propager l'erreur selon la formule suivante (Wagner and Silva, 2008):

$$\frac{\Delta\sigma_{sca(\lambda)}}{\sigma_{sca(\lambda)}} = \left| \ln\left(\frac{\lambda}{450}\right) \Delta\text{\AA} \right| + \frac{\Delta\sigma_{sca(450)}}{\sigma_{sca(450)}} \quad (3.17)$$

L'incertitude relative sur le coefficient de diffusion à 355nm $\frac{\Delta\sigma_{sca(355)}}{\sigma_{sca(355)}}$ sera donc fonction de l'incertitude absolue sur le coefficient d'Ångström $\Delta\text{\AA}$ et de l'incertitude absolue sur le coefficient de diffusion à 450nm $\frac{\Delta\sigma_{sca(450)}}{\sigma_{sca(450)}}$. $\Delta\text{\AA}$ ne dépend que des longueurs d'ondes considérées et de l'incertitude relative sur les coefficients de diffusion (Wagner and Silva, 2008). Comme Å est calculé entre 450 et 700nm, $\Delta\text{\AA}$ est égal à 0.32. L'extrapolation de $\sigma_{sca(355)}$ à partir de $\sigma_{sca(450)}$ en utilisant Å entraine donc une erreur de 16%.

L'incertitude pour le coefficient d'absorption à 637nm mesuré par le MAAP est de $\pm 12\%$ (Petzold and Schönlinner, 2004). Pour calculer $\sigma_{abs}(\lambda)$ à partir de $\sigma_{sca(637)}$ en considérant que le coefficient d'absorption d'Ångström (*Absorption Ångström Exponent AAE*) est égal à 1. C'est-à-dire que l'absorption est directement proportionnelle à la longueur d'onde. Si on prend le cas extrême considéré dans cette thèse, c'est-à-dire pour une longueur d'onde de 355nm, on peut écrire $\sigma_{abs(355)} \approx 637/355 * \sigma_{abs(637)}$. L'AAE est dépendant de la composition et le type d'aérosol. Pour un aérosol urbain, la valeur de l'AAE est proche de 1 mais elle peut monter jusqu'à 2.5 pour d'autres types de particules (Russell et al., 2010).

Le photomètre mesure l'AAE entre 440 et 870nm (Dubovik and King, 2000; Russell et al., 2010). En moyenne sur la période de Juillet 2010 à Juillet 2012, il est de 1.02 avec un écart type de 0.26. En conséquence, si on considère un AAE de 1 au lieu de la valeur réelle, cela revient en moyenne à calculer la différence entre l'absorption à la longueur d'onde voulue avec un AAE de 1 ($\sigma_{abs(\lambda)} \approx 637/\lambda * \sigma_{abs(637)}$) et l'absorption avec un AAE extrême de 1.28 ($\sigma_{abs(\lambda)} \approx (637/\lambda)^{1.28} * \sigma_{abs(637)}$). La formule suivante est utilisée pour calculer l'erreur sur le coefficient d'absorption:

$$\frac{\Delta\sigma_{abs(\lambda)}}{\sigma_{abs(\lambda)}} = \left| 1 - \left(\frac{\lambda}{637}\right)^{0.28} \right| + \frac{\Delta\sigma_{abs(637)}}{\sigma_{abs(637)}} \quad (3.18)$$

En ne mesurant de façon continue que le coefficient d'absorption à 637nm, les incertitudes relatives moyennes introduites sur $\sigma_{abs(355)}$ et $\sigma_{abs(550)}$ sont 18 et 4% respectivement. Cette erreur reste relativement faible car les mesures du photomètre à proximité du PdD montrent que l'AAE reste proche de 1.

Pour l'albedo de diffusion simple ω_0 , à une longueur d'onde λ , l'incertitude est donnée après propagation d'erreur par l'équation suivante:

$$\frac{\Delta\omega_0(\lambda)}{\omega_0(\lambda)} = \Delta\sigma_{\text{abs}}(\lambda) \left(\frac{1}{\sigma_{\text{abs}}(\lambda)} + \frac{1}{\sigma_{\text{sca}}(\lambda) + \sigma_{\text{abs}}(\lambda)} \right) + \frac{\Delta\sigma_{\text{sca}}(\lambda)}{\sigma_{\text{sca}}(\lambda) + \sigma_{\text{abs}}(\lambda)} \quad (3.19)$$

Pour calculer les incertitudes de l'indice de réfraction retrouvé à l'aide de notre méthode décrite au paragraphe 3.3.2 , on introduit du bruit sur une mesure prise comme référence (le 26/06/2011 entre 03:00 et 06:00). Le bruit est introduit en suivant une loi normale avec la valeur x de la mesure et son incertitude décrite au paragraphe précédent. Le calcul est réalisé sur 100 cas. A 355 nm, l'indice de réfraction retrouvé est $1.47 \pm 0.03 + 0.012 i \pm 0.004 i$. L'incertitude sur la partie réelle est donc de 2% et celle sur la partie imaginaire 30%. Pour 550nm l'indice est $1.47 \pm 0.03 + 0.013 \pm 0.003$. Cela correspond toujours à une incertitude de 2% sur la partie réelle mais l'incertitude sur la partie complexe est plus faible: 21%. Logiquement, la précision sur l'indice de réfraction retrouvée à 550nm est plus importante qu'à 355nm puisque les hypothèses de dépendance avec la longueur d'onde sont plus restreintes. L'erreur relative estimée sur l'indice de réfraction semble très faible (2%), mais la partie réelle varie qu'entre l'indice de réfraction de l'eau (1.333) et 1.63, soit une plage de 0.3. L'incertitude relative réelle serait donc de 10%.

3.4.3 Hygroscopicité

Pour connaître l'incertitude pour les mesures HTDMA : la même méthode est appliquée. Un bruit gaussien est appliqué sa distribution mesurée par le HTMDA. Sur 100 scans simulés, l'écart type est de 7% sur les facteurs de croissance hygroscopique (GF), et 1% sur la faction de chaque mode. Le principal facteur d'incertitude est l'humidité à l'intérieur de l'instrument.

3.4.4 Rapport Lidar

On applique le même traitement pour le rapport Lidar que pour l'indice de réfraction. Les incertitudes sur le GF et la faction de chaque mode sont également prises en compte. On trouve un rapport lidar sec de $73 \pm 7 \text{ Sr}^{-1}$. Notre incertitude apparente est de 10%. Cette incertitude ne tient pas compte de la non-sphéricité des particules. Si on tient compte de la croissance hygroscopique des particules pour une humidité de 90%, le rapport Lidar humide est $92 \pm 8 \text{ Sr}^{-1}$. L'incertitude associée est du même ordre de grandeur d'environ 9%.

3.4.5 Rapport masse extinction

La masse des aérosols est mesurée par le TEOM-FDMS (voir section 3.1.2.2). La précision de l'instrument ΔM donnée par le constructeur est de $2.5 \mu\text{g.m}^{-3} \pm 1\%$ de la mesure. L'incertitude sur le rapport masse extinction peut s'écrire en fonction de la masse M , des coefficients d'absorption et de diffusion et de leurs incertitudes associées:

$$\Delta\eta(\lambda) = \frac{1}{\sigma_{\text{abs}}(\lambda) + \sigma_{\text{sca}}(\lambda)} \left(\Delta M + M \frac{\Delta\sigma_{\text{abs}}(\lambda) + \Delta\sigma_{\text{sca}}(\lambda)}{\sigma_{\text{abs}}(\lambda) + \sigma_{\text{sca}}(\lambda)} \right) \quad (3.20)$$

Comme η , $\Delta\eta$ va varier en fonction de la longueur d'onde. $\Delta\eta$ sera plus élevé pour des longueurs d'onde faibles puisque qu'on s'éloigne du point de mesure de σ_{abs} . Néanmoins la valeur de l'albedo de diffusion simple est élevée au PdD (0.9 en moyenne sur 2008/2012). L'absorption ne présente donc qu'environ 10% de la mesure de l'extinction. L'impact de cette forte incertitude sur le coefficient d'absorption lors du calcul du coefficient d'extinction et donc de η est relativement limité.

3.5 Classification des masses d'air, Rétrotrajectoires

3.5.1 Hysplit

Hysplit (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) est un modèle lagrangien de dispersion atmosphérique (Draxler and Rolph, 2012) qui simule l'évolution d'une parcelle d'air lagrangienne dans un intervalle de temps positif (pour des prévisions) ou négatif (pour les rétrotrajectoires). Pour cela le modèle utilise les données météorologiques du NCEP (National Center for Environmental Prediction de la NOAA) qui assimile des données conventionnelles et satellite (Global Data Assimilation System).

Les rétrotrajectoires sont calculées toutes les 6 heures sur 3 jours avec un modèle de vitesse verticale isobarique. Ces rétrotrajectoires sont classées en fonction de leur origine: locale, océanique, océanique modifiée, continentale et africaine. La Figure 3-14 représente la carte des zones définies. Le code couleur représente le nombre de rétrotrajectoires calculées à partir du site du Puy de Dôme passant par un carré de $1^\circ \times 1^\circ$ pendant la période 2009-2011 (échelle logarithmique).

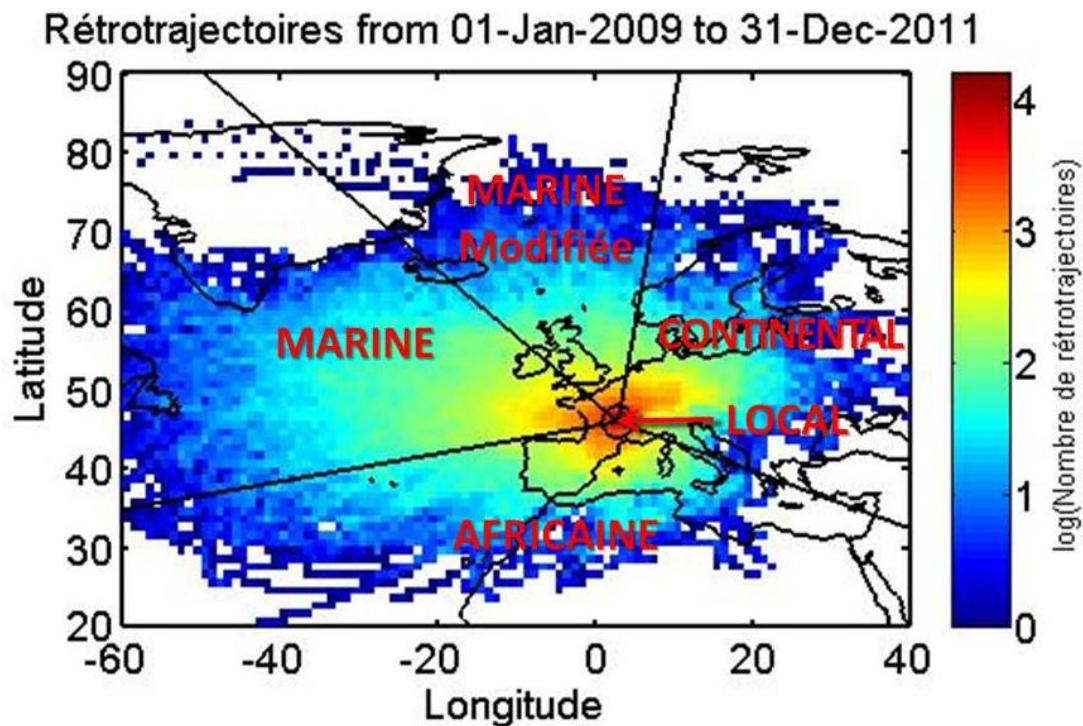


Figure 3-14: Rétrotrajectoires déterminées par Hysplit de 2009 à 2011

L'origine d'une rétrotrajectoire est définie en fonction du nombre d'heures passée dans chaque secteur par une masse d'air. Pour chaque rétrotrajectoire le poids d'un point varie linéairement selon le nombre d'heures que la masse d'air a passé dans l'atmosphère: le poids est de 1 quand la masse d'air est au Puy de Dôme, il devient égal à 0.5 dans le secteur où la rétrotrajectoire est passée 72h auparavant. En effet, si une masse d'air a passée 1.5 jours dans la zone océanique puis 1.5 dans la zone locale, on suppose qu'elle est plus influencée par les émissions locales qu'océaniques.

La principale origine des masses d'air mesurées au PdD est océanique. Viennent ensuite des masses d'air d'origine africaine, continentale, océanique modifiée et enfin locale. Nous reviendrons dans le chapitre 5 sur les variations des propriétés optiques des aérosols en fonction de l'origine de la masse d'air.

3.5.2 Flexpart

Flexpart est également un modèle Lagrangien de dispersion atmosphérique (Stohl et al., 2005). que nous avons utilisé pour estimer la concentration de cendres volcaniques dans l'atmosphère pendant l'événement volcanique de l'Eyjafjalla (chapitre 5). Ce modèle utilise les données météorologiques de l'European Centre for Medium Range Weather Forecasts (ECMWF) avec une résolution horizontale de $0.25^{\circ} \times 0.25^{\circ}$ et verticale de 250m.

De Mars 2006 à Septembre 2010 des *quicklook* des rétrotrajectoires sont disponibles pour la station (<http://transport.nilu.no/flexpart-projects?stn=PDD>). Flexpart fournit des produits supplémentaires aux rétrotrajectoires calculées par Hysplit, par exemple une distribution en taille de l'aérosol en 25 classes de diamètres allant de 0.25 à 250 μ m.

3.6 Evolution temporelle, Test saisonnier de Mann Kendall.

Il est difficile de dégager des tendances à partir de d'une série de donnée qui présente souvent des données manquantes. Le test de Mann Kendall (Gilbert, 1987) permet de dégager de façon robuste des tendances même si des données sont manquantes, négatives et indépendamment de la distribution statistique. La représentativité de ce test peut être surestimée si la taille de l'échantillon est faible (Collaud Coen et al., 2012; Wang and Swail, 2001). Dans le cadre de cette étude, ce test est appliqué sur des échantillons comportant plusieurs milliers de valeurs, le test saisonnier de Mann Kendal peut donc être considéré comme représentatif des tendances pluri annuelles (Bayazit and Önöz, 2007).

3.7 Synthèse du chapitre

Au cours de ce chapitre, la station du Puy de Dôme a été présentée, avec les principaux instruments permettant de quantifier les propriétés physico-chimiques et optiques des aérosols. Ensuite nous avons décrit les instruments de télédétections, actifs ou passifs, disponibles au laboratoire. L'accent a été mis sur les algorithmes mis en place sur les mesures Lidar pour détecter les nuages, calculer la hauteur de la couche limite ou l'extinction élastique et inélastique des aérosols.

Ensuite sont présentés les nouveaux algorithmes mis en places pour exploiter au mieux la synergie multi-instrumentale. Ces algorithmes nous permettront tout d'abord de réaliser une climatologie et une cartographie des propriétés optiques au Puy de Dôme (Chapitre 4). in-situ/télédétection. Ils ont également été conçus pour calculer l'impact de l'hygroscopicité sur les différents paramètres optiques et en déduire l'efficacité radiative correspondante. Les incertitudes sur les différents paramètres obtenus sont également estimées.

Enfin, les modèles de rétrotrajectoire utilisés au cours de cette thèse pour connaître l'origine des particules mesurées au PdD sont décrits.

Chapitre 4 : Etude long terme : 5 ans de mesures au Puy de Dôme

Le chapitre précédent explique comment les mesures d'aérosol mises en place depuis plusieurs années, sur le site instrumenté du Puy de Dôme (PdD) permettent de calculer des propriétés optiques simples (comme les propriétés d'absorption et de diffusion de l'aérosol), ou plus appliquées aux besoins d'inversion Lidar et de calcul d'impact radiatif, comme le rapport Lidar ou le facteur d'asymétrie.

Dans le chapitre suivant, une climatologie de ces différents paramètres est présentée. Nous nous intéresserons d'abord aux variations temporelles (pluriannuelle, saisonnière et journalière) de ces propriétés, puis à l'influence de l'origine des masses d'air arrivant au PdD. Une cartographie de chaque propriété optique en sera déduite. Enfin les résultats obtenus grâce aux mesures in situ seront comparés à de la télédétection. Tout d'abord la cartographie du coefficient d'Ångström est confrontée avec des mesures satellite. Ensuite, la distribution en taille calculée par le photomètre est comparée avec celle mesurée in situ.

4.1 Situation météorologique au Puy de Dôme.

Afin de mieux interpréter les propriétés optiques des aérosols mesurées au PdD, nous allons, dans un premier temps, nous intéresser aux conditions environnementales caractérisant le site

4.1.1 Conditions météorologiques

Les conditions météorologiques rencontrées sur le site du puy de Dôme sont calculées sur la période 2008-2011 où tous les instruments mesurant les propriétés optiques des aérosols sont présents. Le Puy de Dôme est majoritairement influencé par des vents d'ouest, puisque dans environ 50% du temps la direction du vent est comprise entre 225 et 315° (Figure 4-1). On note que le bâtiment militaire situé à proximité du chalet (au Nord-est) perturbe les mesures de vent provenant de cette direction. Le site de mesures est en nuage 50% du temps ($RH > 98\%$). La température présente de fortes variabilités saisonnières avec le minimum en Février ($-1.5 \pm 5.5^\circ\text{C}$) et le maximum en Aout ($13.1 \pm 5.3^\circ\text{C}$). La pression varie autour de 850hPa ($852 \pm 8\text{hPa}$) avec un maximum en Aout (857hPa) et un minimum en Décembre (849hPa).

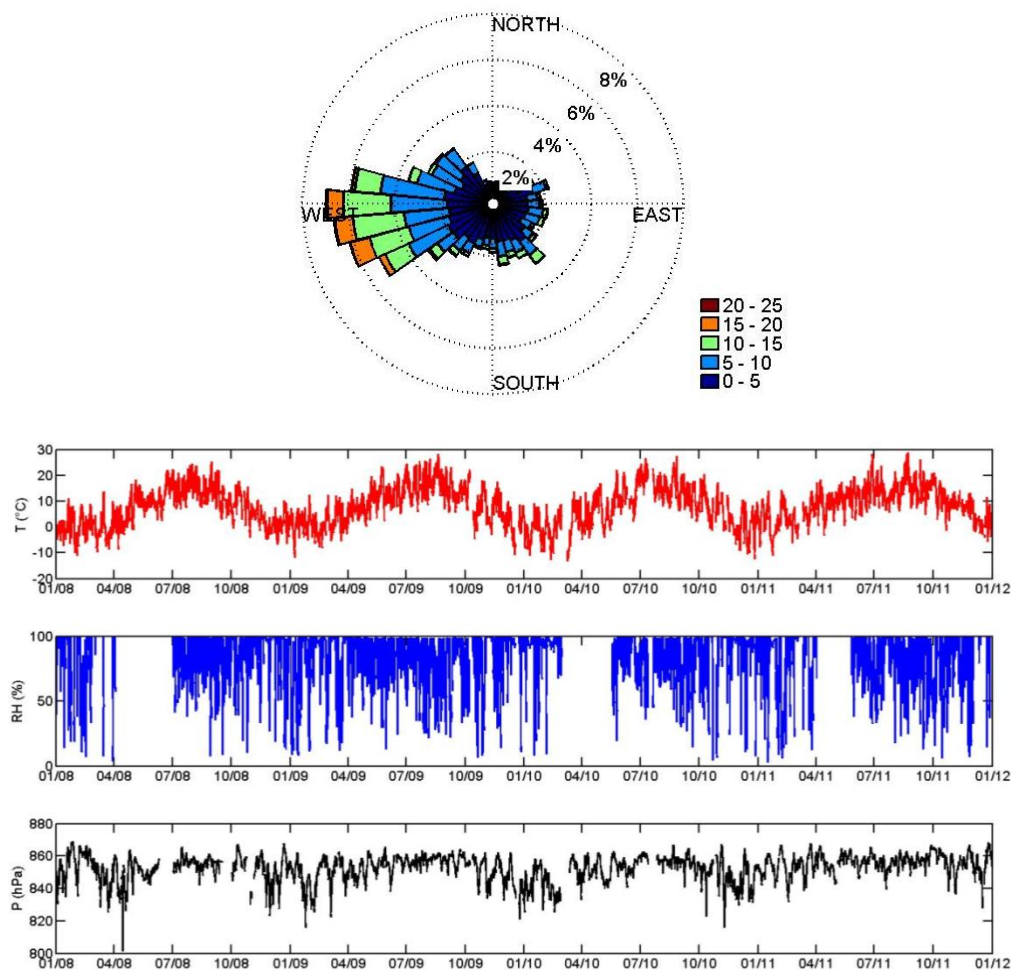


Figure 4-1: Conditions météorologiques au Puy de Dôme: De haut en bas: Rose des vents (m.s^{-1}), température ($^\circ\text{C}$), humidité (%) et Pression (hPa).

Si on applique un test saisonnier de Mann Kendall sur la température (voir chapitre 3), on note l'augmentation des températures sur la décennie 2001-2011. L'augmentation est de 0.94°C sur la décade en accord avec les valeurs données par l'IPPC : $0.177 \pm 0.052^{\circ}\text{C/an}$.

4.1.2 Types de masses d'air

Le modèle Hysplit a été utilisé pour calculer les rétrotrajectoires à 3 jours arrivant au Puy de Dôme, toutes les 6 heures sur les années 2008 à 2011. Les résultats ont été analysés statistiquement pour être représentés Figure 4-2. Comme mentionné au chapitre 3 et en accord avec les vents dominants mesurés à la station, la principale origine des masses d'air mesurées au PdD est océanique (37.3% sur 2008-2011). Viennent ensuite des masses d'air d'origine africaine (27.1%), continentale (18.4%), océanique modifiée (10%) et enfin locale (7.2%).

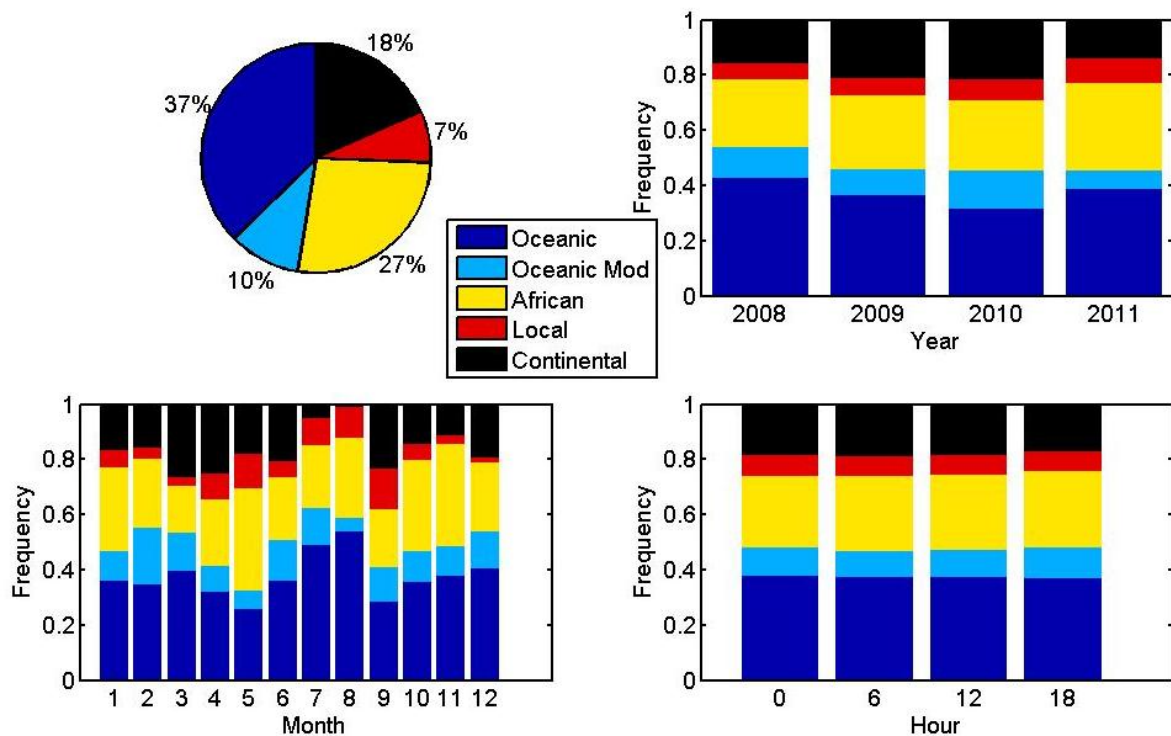


Figure 4-2: Variation saisonnière de la provenance des masses d'air au PdD.

On remarque qu'en fonction des années, l'origine des rétrotrajectoires varie peu: la principale origine reste océanique et l'ordre des suivantes reste conservé. En revanche, l'origine des masses d'air peut montrer une variation saisonnière significative. Les masses d'air continentales sont presque absentes en Juillet et en Aout. Elles sont principalement remplacées par des masses d'air océaniques. Au printemps et en automne, la proportion de masses d'air continentales augmente de façon importante. Les masses d'air locales sont plus fréquentes l'été, en accord avec une plus grande influence de la couche limite dans laquelle les vents sont moins forts (vitesse médiane en été 4m/s , en hiver 7m/s).

4.1.3 Hauteur de la Couche Limite

Comme pour tous les sites de mesures, la provenance des masses d'air est un facteur déterminant pour comprendre l'évolution des propriétés optiques au PdD. Mais du fait de son altitude et sa disposition géographique, la station est à l'interface entre deux couches de l'atmosphère: la couche limite et la troposphère libre. Mesurer la hauteur de la couche limite par Lidar (cf chapitre 3) nous permet de mieux interpréter les mesures.

4.1.3.1 Etude de cas: La campagne intensive de Février 2012.

Plusieurs campagnes intensives ont été réalisées au Puy de Dôme. Durant ces campagnes, de nombreux instruments ont été déployés (AMS, PSM, Api-tof...) permettant ainsi une meilleure caractérisation de l'aérosol. Au cours de ces campagnes intensives, le Lidar était opérationnel en continu dès que les conditions météorologiques le permettaient. En particulier, une période intéressante pour l'étude de la dynamique atmosphérique a été détectée du 04/02 au 07/02/2012. Cette période est caractérisée par des températures fortement négatives. La Figure 4-3 représente les mesures Lidar, la hauteur de couche limite associée et le coefficient d'absorption.

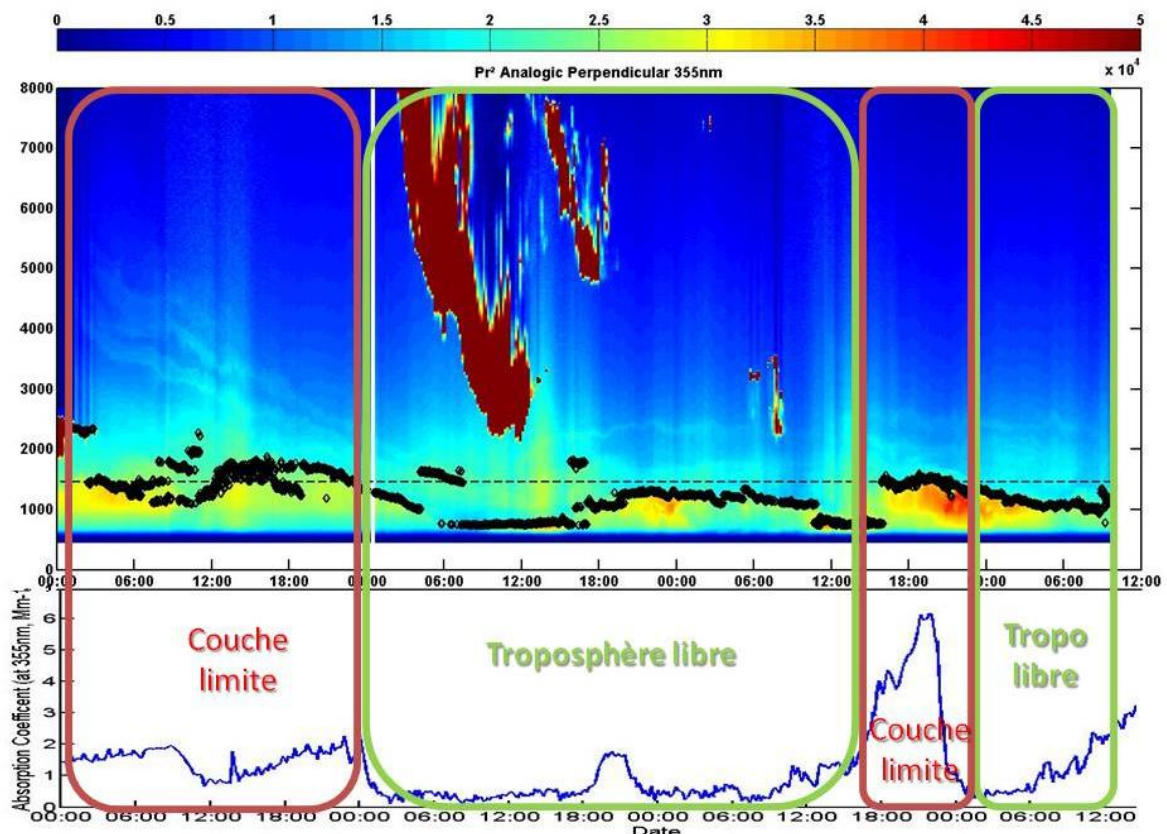


Figure 4-3: Haut: Mesures Lidar du 04/02 au 07/02/2012. La Hauteur de couche limite calculée est représentée par les points noirs. La ligne pointillée noire représente la hauteur du Puy de Dôme (1465m). Bas: Coefficient d'absorption pour la même période

Sur la Figure 4-3, on note la corrélation entre la hauteur de la couche limite et les variations du coefficient d'absorption. En particulier, le 04/02/2012 à minuit, σ_{abs} varie de 2 Mm^{-1} à 0.5 Mm^{-1} , simultanément à une variation de hauteur de CLA de 2 km à 500 m en quelques

heures, confirmant le passage de la station de la couche limite (en rouge) à la troposphère libre (en vert). De même, la montée de la couche limite détectée par le Lidar le 06/02 à 18h se traduit bien par une augmentation importante de σ_{abs} qui ne redescendra qu'avec la couche limite après 23h30. On notera, par ailleurs, la présence de nuages entre 8000 et 2000m le 05/02 entre 5h et 19h qui empêche le calcul d'extinction Lidar à cette période. Le calcul de la hauteur de la couche limite est également perturbé par la présence de nuages dans les basses couches le 04/02 entre 0h et 2h.

Bien que la variation des propriétés des aérosols conjointement à la variation de la hauteur de la CLA ne soit pas une preuve univoque de la précision et la justesse de notre algorithme de restitution de la hauteur de la CLA, elle nous conforte dans notre calcul, et nous permet d'établir avec confiance des statistiques sur l'évolution de la hauteur de la CLA au cours du temps.

4.1.3.2 Variations journalières et saisonnières

La Figure 4-4 représente la variation journalière médiane de la couche limite pour les différentes saisons, calculées à partir de mesures LIDAR effectuée entre 2009 et 2011, avec un taux de tirs de plus de 30% sur cette période.

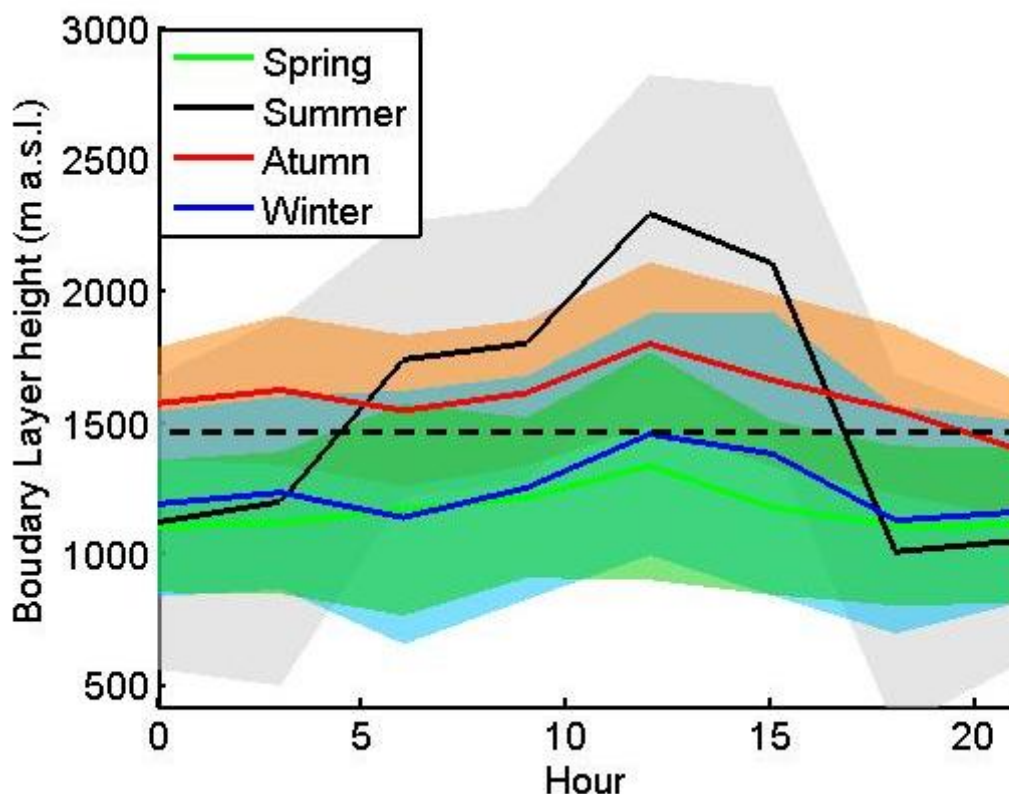


Figure 4-4: Variation journalière de la hauteur de couche limite en 2011. Le trait plein représente la médiane, et l'aire l'écart type pour chaque saison. En vert le printemps, en noir l'été, en rouge l'automne et en bleu l'hiver. La ligne discontinue noire représente l'altitude du Puy de Dôme (1465m)

Sur la Figure 4-4, nous constatons que même si une dynamique journalière est visible, la hauteur de la couche limite présente peu de variations en hiver et au printemps. Pour cette

période, le PdD reste la plupart du temps en troposphère libre. Néanmoins, la variabilité est importante et la hauteur de la couche limite médiane reste proche de l'altitude du PdD: même si la majorité des mesures au PdD se font en troposphère libre, de nombreux jours seront influencés par la couche limite. La faible variation mesurée au printemps peut s'expliquer par la forte proportion d'air continental froid mesuré en Mars et Avril (42%). En raison de cet épisode de froid la convection et le développement de la couche limite était peu marqué.

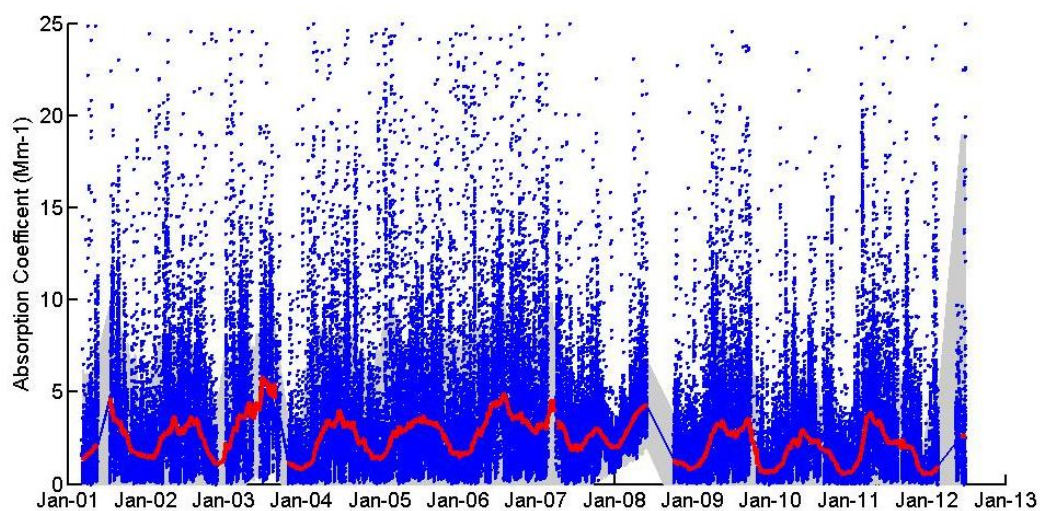
La plus forte variation journalière est mesurée en été. Pour cette saison, le PdD se situe clairement en couche limite le jour et en dehors pendant la nuit. Pendant la nuit, les mesures du PdD peuvent être représentatives de la couche résiduelle ou de la troposphère libre suivant les conditions. D'après la Figure 4-4, le PdD est majoritairement dans la couche limite atmosphérique en Automne. A cette période la zone de recouvrement Lidar était élevée ($\approx 1000\text{m}$). Il est possible que le Lidar ait détecté uniquement la couche de transition existant au dessus de la couche Limite et pas la couche limite elle-même.

Après avoir décrit les différents facteurs qui peuvent influencer les mesures à la station du PdD, nous allons nous intéresser aux variations journalières à pluriannuelles des propriétés optiques de l'aérosol.

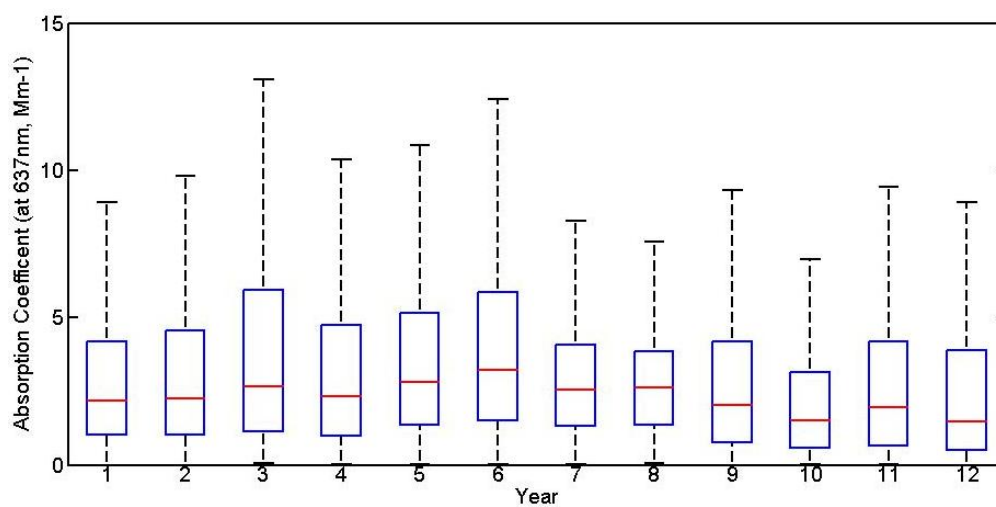
4.2 Variations long terme des propriétés optiques de l'aérosol mesurées in situ.

4.2.1 L'absorption σ_{abs}

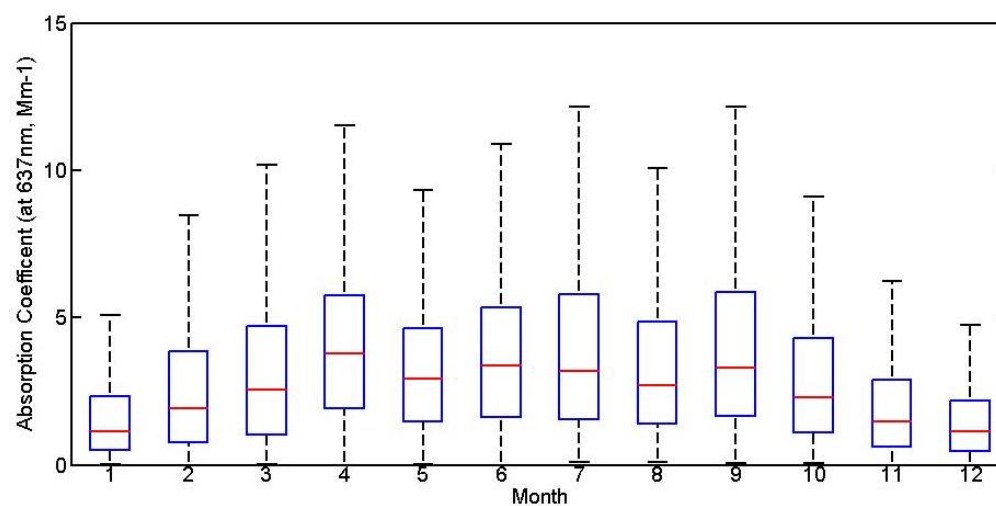
La plus longue série de mesures des propriétés optiques au Puy de Dôme concerne le coefficient d'absorption σ_{abs} . Deux instruments ont permis de réaliser ces mesures: l'Aethalomètre et le MAAP. Il est largement reconnu que l'Aethalomètre mesure des coefficients d'absorption trop élevés (Chapitre 3). Les données sont donc qualitatives de 2001 à 2007. Toutefois, le fait d'utiliser une médiane relativise l'influence des pics d'absorption peu réalistes. La Figure 4-5 représente les mesures d'absorption de 2001 à 2012. Pour l'Aethalomètre, le coefficient d'absorption est calculé à 637nm en utilisant un coefficient d'Ångström d'absorption égal à 1.



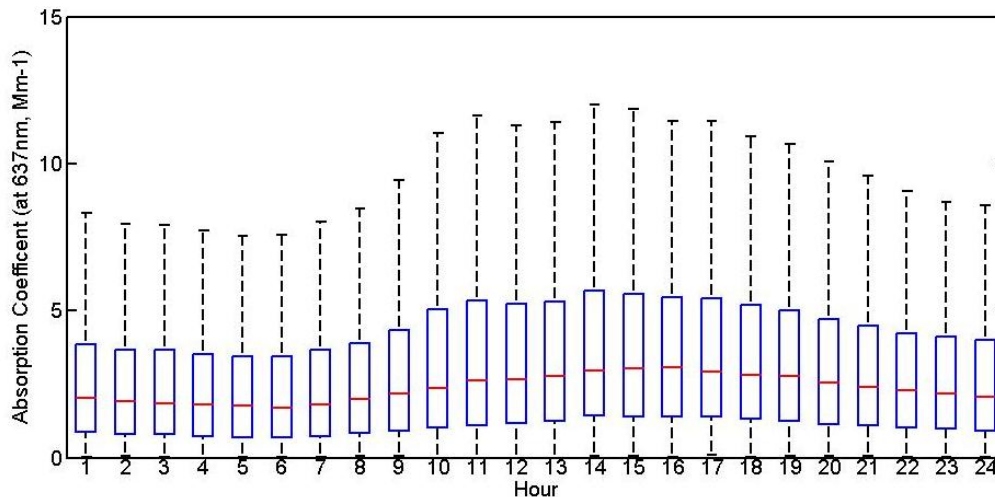
a)



b)



c)



d)

Figure 4-5: Evolution du coefficient d'absorption (2001-2012). A) Les points bleus représentent les mesures toutes les heures, la ligne rouge la médiane sur 3 mois. B) Les traits rouges représentent la médiane du coefficient d'absorption pour chaque année. Le rectangle bleu est tracé entre le 25^{ème} et le 75^{ème} percentile. Les traits pointillés noirs représentent les 5^{ème} et 95^{ème} percentiles. Même représentation du coefficient d'absorption mais en fonction des mois (C) et des heures de la journée (D).

Sur la Figure 4-5 a) est représentée l'évolution de la médiane annuelle de σ_{abs} . La valeur médiane mesurée au PdD à 637nm est 1.4 Mm^{-1} (moyenne 2.1 Mm^{-1} , écart type 3.4 Mm^{-1} , 90^{ème} percentile 4.2 Mm^{-1}). A 550 nm les valeurs sont très similaires avec une médiane est 1.6 Mm^{-1} (moyenne 2.4 Mm^{-1} , écart type 3.9 Mm^{-1} , 90^{ème} percentile 4.9 Mm^{-1}). Andrews et al. (2011) reportent une climatologie des mesures d'absorption sur les sites de haute altitude. Elles sont très variables en fonction d'un site à l'autre. En Europe on retrouve le Jungfraujoch en Suisse (3580m), Izaña dans les îles Canaries au sud de l'Espagne (2400m) et le mont Cimone en Italie (2200m). Les médianes sont plus faibles au Jungfraujoch et à Izaña (environ 0.5 Mm^{-1} à 550nm) et plus élevée au Monte Cimone (environ 2 Mm^{-1} à 550nm). Ces valeurs médianes de coefficient d'absorption ne sont pas seulement une fonction de l'altitude (puisque deux site de même altitude ont des valeurs médianes très différentes) mais aussi fonction des sources d'aérosol absorbants présentes au niveau régional. La station d'Izaña est une station représentative de l'aérosol marin et de poussière désertique alors que le Monte Cimone est influencé par la pollution intense de la vallée du Pô. Les valeurs mesurées au PdD se situent entre les valeurs du Monte Cimone et d'Izaña montrant l'influence des aérosols anthropiques.

Au Puy de Dôme, le coefficient d'absorption ne montre pas de tendance pluriannuelle notable. On peut comparer ce résultat avec les mesures réalisées au Jungfraujoch (JFJ). Pour la période 2000-2006, les coefficients d'absorptions et de diffusions ont augmentés au JFJ mais cette tendance n'est pas valable pour une période plus longue (Collaud Coen et al., 2007, 2011). D'après cette seconde étude parue en 2011, pour un site de haute altitude, les facteurs météorologiques sont prédominants. Plus précisément, le site est majoritairement en troposphère libre pendant la nuit, en particulier pour des conditions météorologiques advectives, et en couche limite pendant l'été, même la nuit en cas de conditions météorologiques associées à de la subsidence. Les auteurs ont obtenu ces conclusions en

utilisant la classification des conditions météorologiques données par l'AWS (Alpine Weather Statistics). D'après les auteurs, le fait d'être en couche limite ou troposphère libre influence principalement les propriétés d'absorption de l'aérosol échantillonné au Jungfraujoch. Au Puy de Dôme, nous n'avons pas assez de mesures LIDAR ou de modèle avec une résolution suffisamment précise, pour déterminer si l'évolution long terme des propriétés d'absorption de l'aérosol est corrélée à une évolution long terme de l'influence de la couche limite sur le site. Toutefois, l'influence de la couche limite sur les mesures du puy de Dôme peut être étudiée à partir des variations saisonnière et journalière des valeurs de coefficient d'absorption.

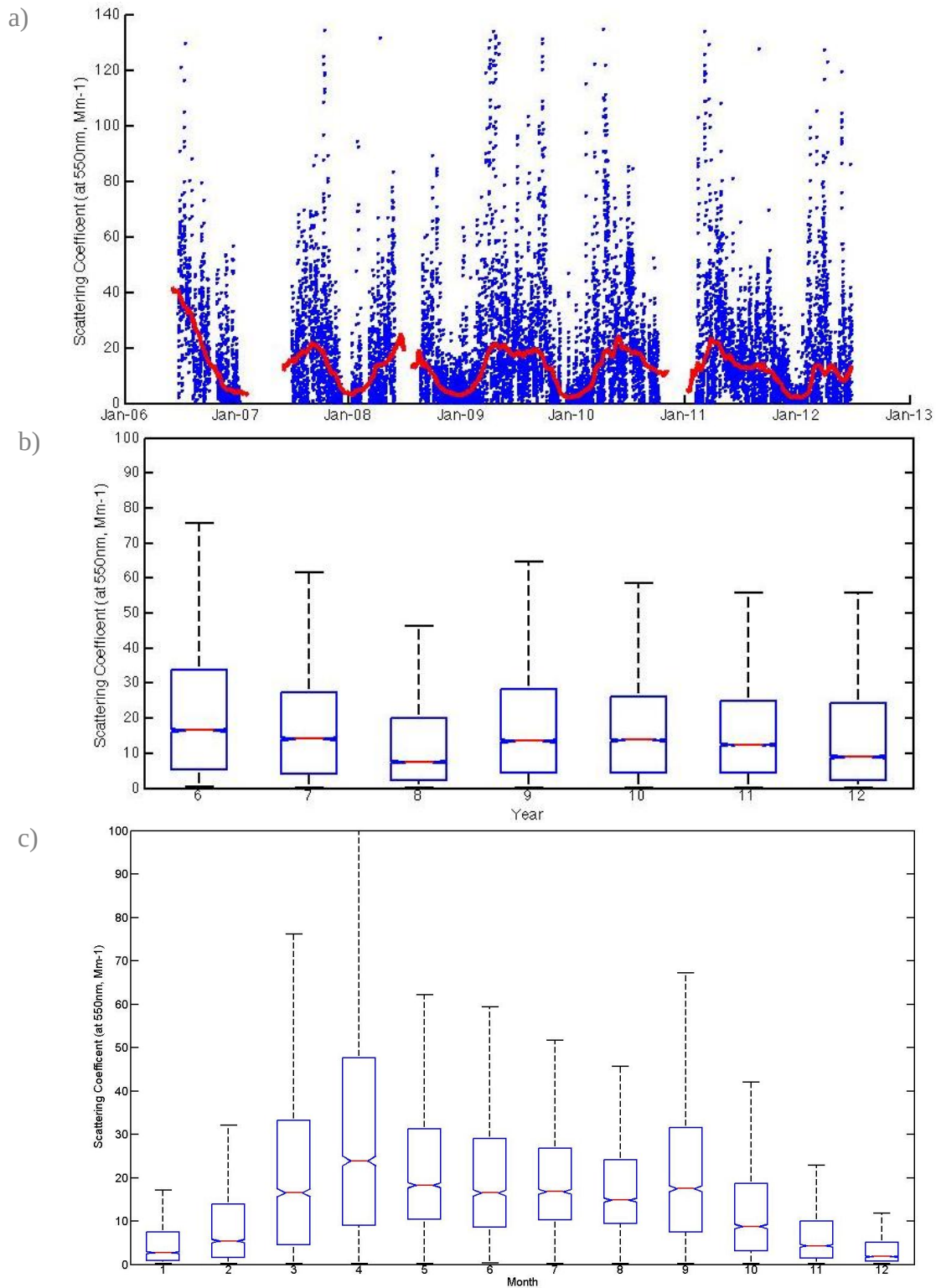
Sur les Figure 4-5 a) et d), le coefficient d'absorption montre une nette variation saisonnière et journalière. Deux maxima saisonniers sont observés, le premier au printemps et le second en automne. Or, la hauteur de la couche limite est maximale en été. Les variations saisonnières du coefficient d'absorption sont donc une combinaison entre la dynamique de l'atmosphère, apportant plus de polluants de la couche limite pendant les saisons chaudes, et l'intensité des sources, plus importantes en saison froide et mi-saison. Ce résultat est sensiblement différent de l'analyse sur le nombre de particules menée par Venzac et al (2009), qui observait un nombre de particules maximum en été. Andrews et al. (2011) reportent également une importante variation saisonnière pour les sites de haute altitude, avec des minima en hiver et un maximum autour de l'été mais qui varie en fonction des sites. Au Jungfraujoch, il se situe en juillet-août alors qu'à Izaña, le maximum est en mars suivi d'août, juillet, septembre comme au Puy de Dôme.

Au Puy de Dôme, ces périodes de maxima correspondent également à des périodes pendant lesquelles la fréquence d'occurrence de masses d'air continentales est accrue. Cet aspect pourrait également influencer les variations saisonnières de l'absorption. L'absorption diminue très clairement pendant l'hiver quand le PdD passe la plus grande partie du temps en troposphère libre ou en nuage. On retrouve les mêmes valeurs au PdD en hiver que celles mesurées sur la plupart des sites situés en haute altitude (Andrews et al., 2011). Même si les mesures sont réalisées en aval d'un *whole air inlet* pour échantillonner les particules présentes à l'intérieur des gouttelettes de nuage, la présence de nuages sur le site n'est pas à négliger puisqu'ils favorisent un lessivage plus important. Pour le confirmer, les données sont filtrées quand l'humidité est supérieure à 98%. Dans ce cas, la médiane sur 2009-2011 est de 1.4 Mm^{-1} à 637nm au lieu de 0.99 Mm^{-1} . L'influence de la hauteur de la CLA est soulignée par la Figure 4-5 D) sur laquelle on voit nettement l'augmentation de σ_{abs} au cours de la journée. Comme on l'a vu au début de ce chapitre, statistiquement l'origine des masses d'air ne présente pas de différences significatives en fonction de l'heure de la journée. Cette variation ne peut donc s'expliquer que par la montée de la CLA.

4.2.2 La diffusion σ_{sca}

Le coefficient de diffusion σ_{sca} est mesuré à 3 longueurs d'onde par le Néphélomètre depuis 2006. On s'intéresse ici à la longueur d'onde centrale 550nm. La figure suivante présente son

évolution au cours du temps. On notera des interruptions dans les mesures début 2007, au cours de l'été 2008 et fin 2011.



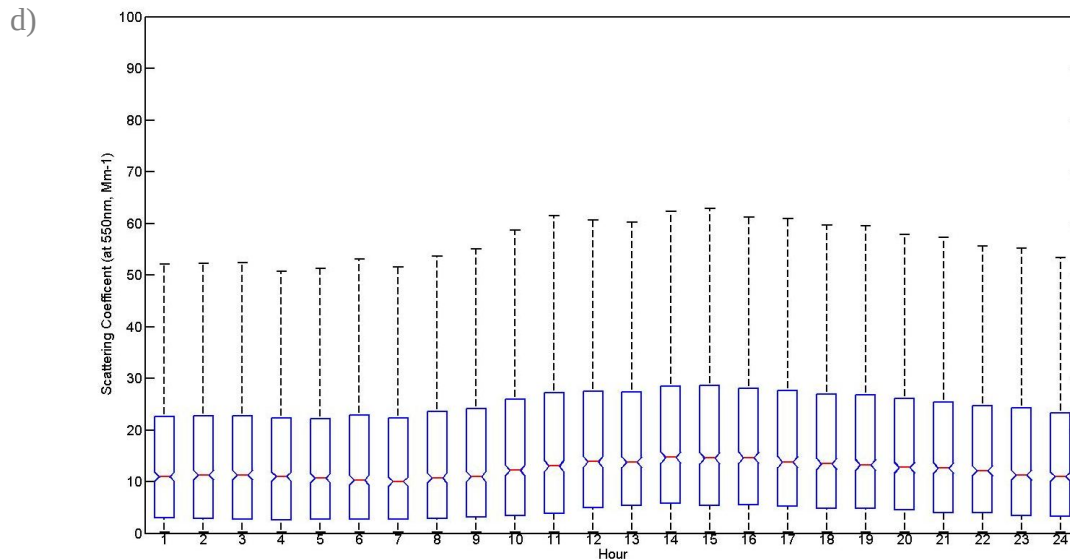


Figure 4-6: Evolution du coefficient de diffusion à 550nm (2006-2011)- Voir Figure 4-5

Le coefficient de diffusion au PdD présente des valeurs moyennes (moyenne : 19.5, médiane 12.2, écart-type 25.8, 90^{ème} percentile 43.6 Mm^{-1}) bien plus faibles et variables que d'autres sites de basse altitude en Europe. Par exemple pour Grenade en Espagne la moyenne est de $60 \pm 30 \text{Mm}^{-1}$ (Lyamani et al., 2010). Le coefficient de diffusion est également plus faible qu'en Europe de l'est: $40.3 \pm 27.1 \text{Mm}^{-1}$ (Kalivitis et al., 2011). Il est plus proche des valeurs reportées en haute altitude par Andrews et al. (2011), avec une médiane autour de 10Mm^{-1} pour Izaña et le mont Cimone.

Les variations temporelles long terme de σ_{sca} sont similaires à celles de σ_{abs} , et il est difficile de dégager une évolution pluriannuelle, *a fortiori* sur un plus petit nombre d'années. L'année 2008 présente la valeur de σ_{sca} la plus basse sur la période de mesures. Cela est majoritairement provoqué par l'absence de mesures pendant une grande partie de l'été. En effet, l'été fait partie des saisons où les valeurs de diffusion sont les plus élevées. De même le coefficient de diffusion médian pour 2012 est bas car il n'est calculé que sur les premiers mois de l'année. Le test de Mann Kendall ne montre pas de tendance significative. Collaud Coen et al., (2012) trouvent une absence de tendance similaire sur d'autres sites d'altitude en Europe comme le Jungfraujoch en Suisse (3580m) ou l'Hohenpeissenberg en Allemagne (950m). Cette absence de tendance en Europe est à opposer à la tendance négative (-2-3% par an) que l'on retrouve en Amérique continentale (Collaud Coen et al., 2012).

De nouveau, les conclusions sont similaires à celles dégagées pour l'absorption: les particules diffusent de façon moins intense la lumière pendant l'hiver. σ_{sca} atteint un maximum au mois d'avril, reste élevé pendant l'été pour décroître à partir du mois de septembre. Les variations sont toujours cohérentes avec les observations reportées dans les principaux sites de haute altitude (Andrews et al., 2011). En revanche, les variations saisonnières sont inversées par rapport aux sites de couche limite: pour Grenade le maximum est en hiver. D'après les auteurs cela est partiellement provoqué par une épaisseur de couche limite plus faible en saison froide (d'où un effet de « concentration ») mais également en raison de sources

différentes, principalement des sources de combustions plus élevées en hiver. Au Puy de Dôme, on retrouve également l'impact des sources d'aérosols puisqu'en hiver, la proportion de masses d'air continentales est maximale.

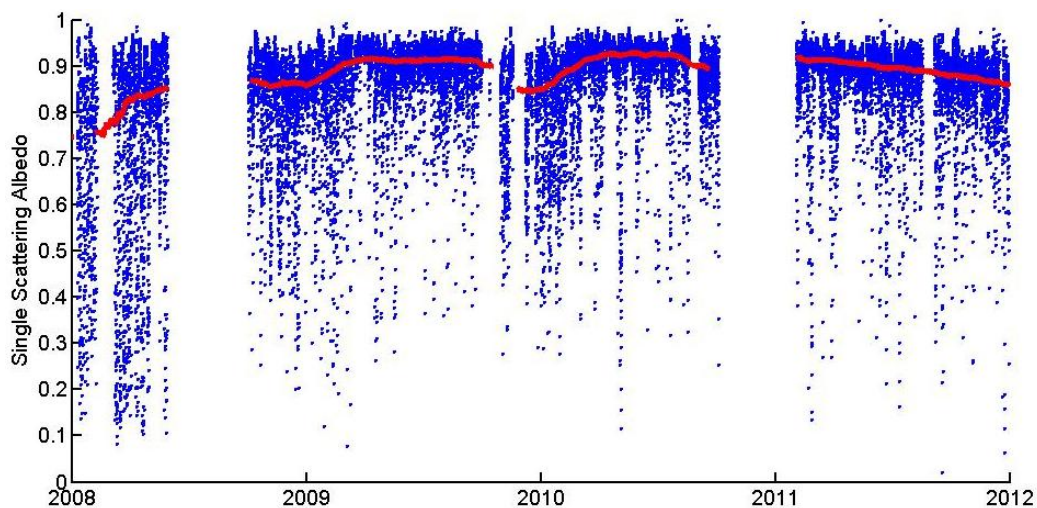
En altitude, au Puy de Dôme comme dans les autres sites, les variations journalières sont principalement corrélées avec la montée de la couche limite: le coefficient de diffusion augmente au cours de la journée. De plus en couche limite, la variation journalière du coefficient de diffusion est directement reliée avec les émissions dues au trafic routier: avec un pic en début et en fin de journée (Lyamani et al., 2010).

Il semble donc que pour les propriétés de diffusion, la dynamique de la couche limite joue un rôle important comme pour les propriétés d'absorption, mais que la variation saisonnière des sources présentes en couche limite contribue à modeler le signal en haute altitude.

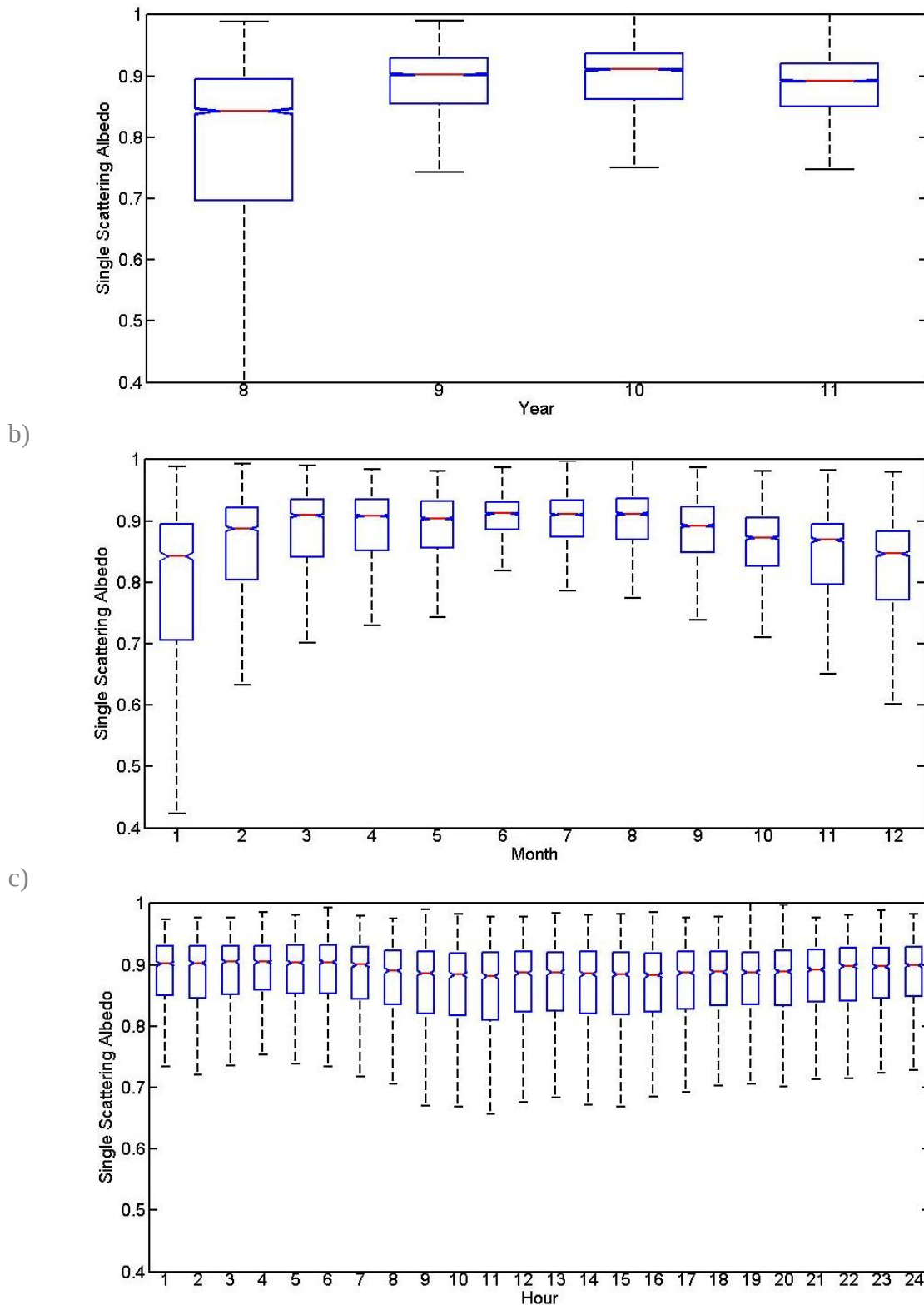
Nous avons étudié les variations des 2 propriétés optiques extensives: la diffusion et l'absorption. Nous allons à présent étudier les variables intensives qui dépendent uniquement du type de particules et non plus de leur nombre/masse.

4.2.3 L'albedo de simple diffusion ω_0

ω_0 est une mesure de la faculté d'un type d'aérosol à absorber la lumière, avec des valeurs faibles pour un aérosol absorbant, et élevées (proches de 1) pour un aérosol principalement diffusant. Ce paramètre est calculé de 2008 et 2011 lorsque que le MAAP et le néphélomètre était en fonctionnement simultanément (Figure 4-7-a).



a)



d)
Figure 4-7: Evolution de l'albedo de simple diffusion (2008-2011)- Voir Figure 4-5

La valeur médiane retrouvée 0.88 ± 0.12 est proche de celle retrouvée pour la majorité des sites de haute altitude (0.90 ± 0.05 , Andrews et al., 2011). Les valeurs mesurées directement en zone urbaine sont généralement beaucoup plus basses (e.g. 0.68 ± 0.7 , Lyamani et al., 2010).

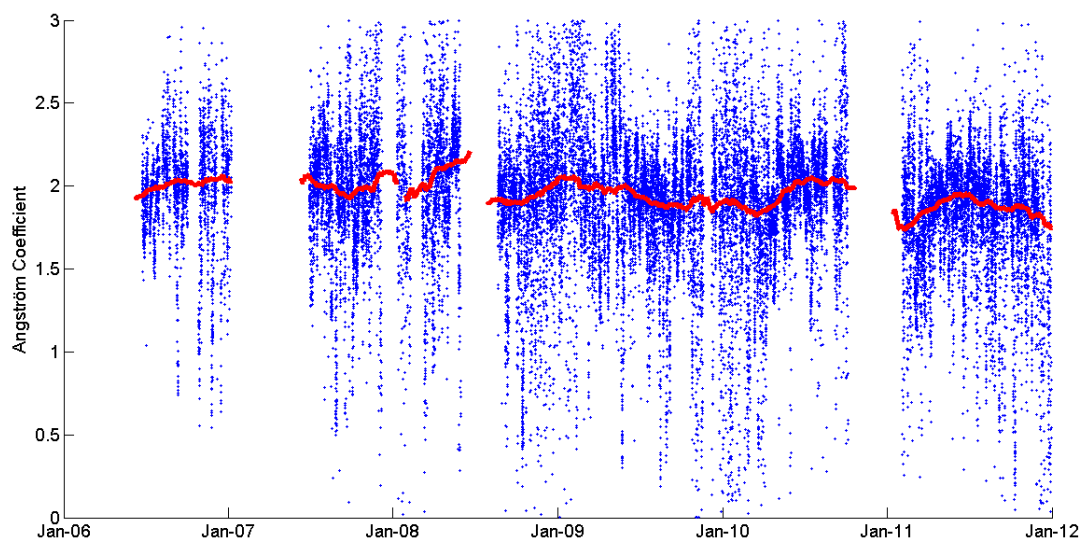
Pour ce paramètre intensif, il est également difficile de conclure sur l'évolution multi annuelle, qui ne marque pas de tendance claire. La médiane annuelle en 2008 est à exclure car l'année n'est pas complète. De plus, il n'y a pas de tendance sur les 3 années restantes (Figure 4-7-b).

L'albedo de diffusion simple est le paramètre optique intensif montrant la plus grande variabilité saisonnière. En hiver, ω_0 présente un minimum marqué qui va augmenter progressivement jusqu'à atteindre un maximum en été (Figure 4-7-c). Cette variation saisonnière est cependant moins marquée que celle observée pour les propriétés extensives (absorption et diffusion) et les maxima ne sont pas observés à la même période. Cela indique que les variations saisonnières observées pour l'absorption et la diffusion sont majoritairement dues à une variabilité sur la quantité de matière plutôt que sur les propriétés intrinsèques des particules d'aérosol elles-mêmes. ω_0 est minimum en hiver, ce qui correspond à la présence d'une plus grande fraction d'aérosols absorbants (proportionnellement à la masse totale), très probablement représentatifs d'aérosols de combustion. Ces valeurs plus faibles peuvent également être provoquées par un biais dans les mesures en raison de la faible charge d'aérosols, ou alors par le lessivage plus grand des aérosols diffusant (Marcq et al., 2010), ou enfin à une formation moins fréquente d'aérosols secondaires au Puy de Dôme, provoquée par une intensité solaire plus faible (Boulon et al., 2011b). Des variations saisonnières similaires sont observées dans la majorité des sites de haute altitude (Andrews et al., 2011).

Une variation journalière est également visible avec une valeur de ω_0 qui diminue légèrement pendant la journée (Figure 4-7-d). Ce phénomène est probablement lié à la montée de la couche limite qui apporte des aérosols plus absorbants.

4.2.4 Le coefficient d'Ångström α

La Figure 4-8 représente l'évolution temporelle du coefficient d'Ångström mesuré par le néphélomètre entre 400 et 700nm de 2006 à 2011.



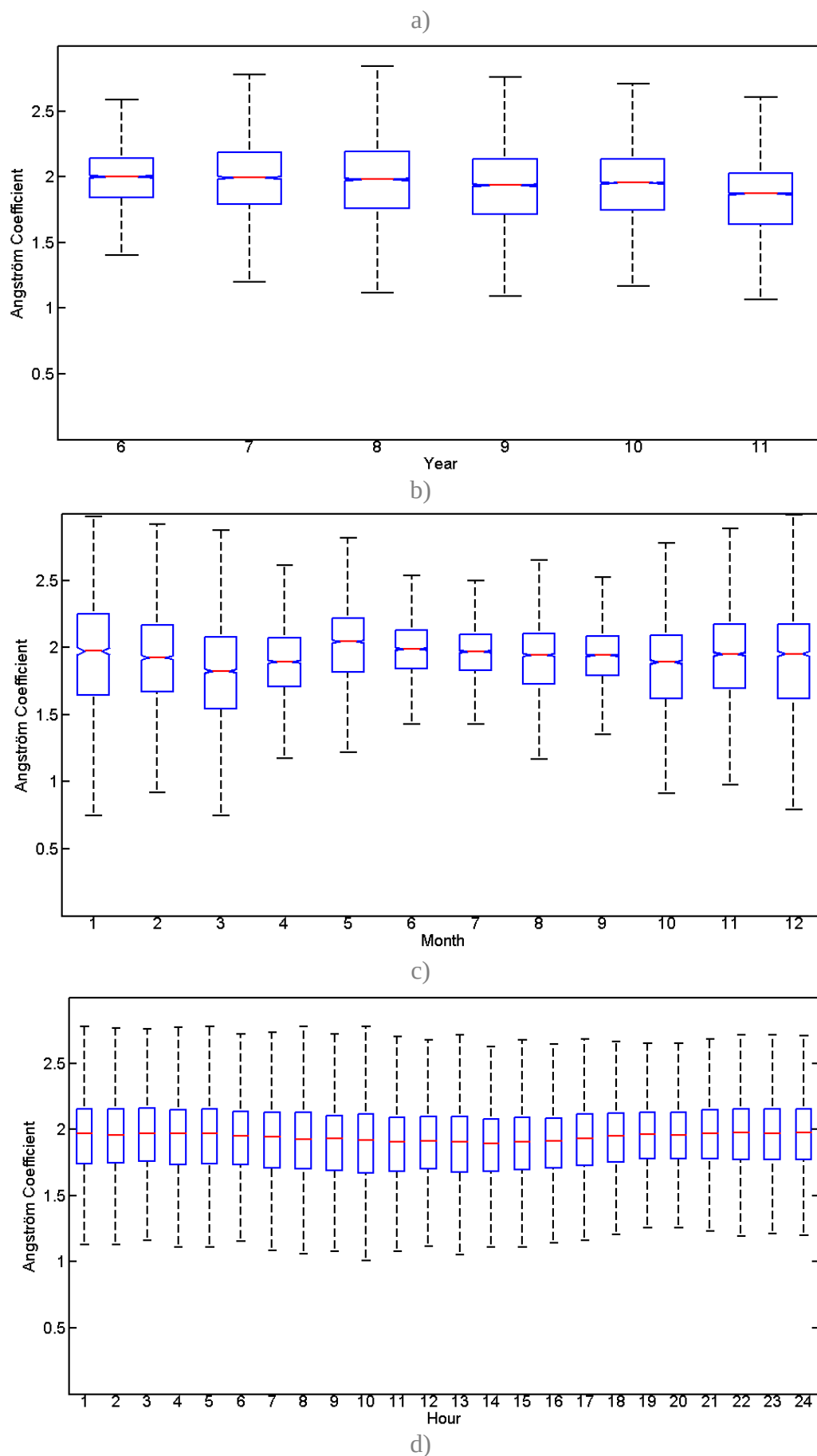


Figure 4-8: Evolution du coefficient d'Ångström (2006-2011)- Voir Figure 4-5

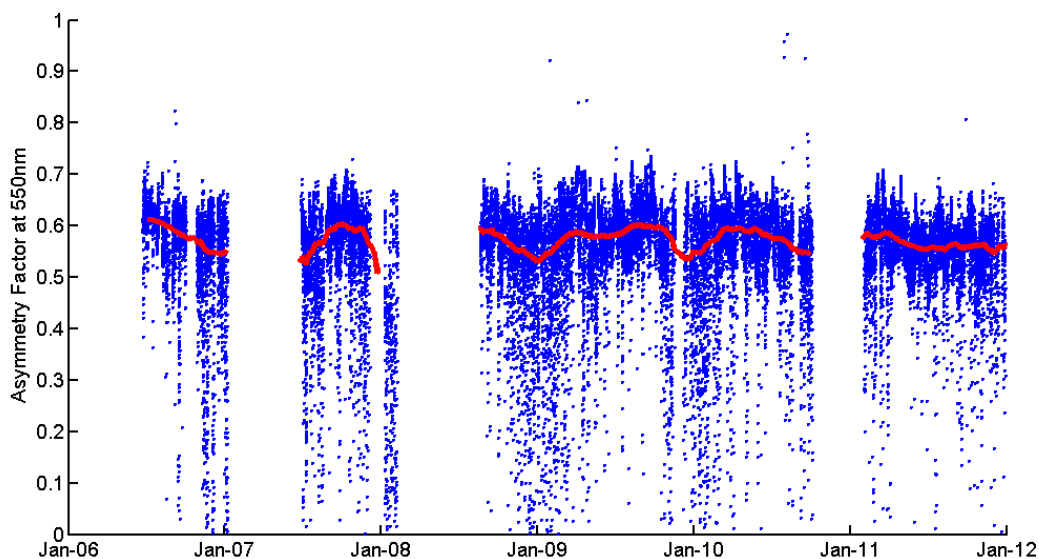
La valeur médiane de α est 1.92 ± 0.40 , montrant la prédominance d'aérosols submicroniques sur le Puy de Dôme et donc des particules fines. La valeur médiane est proche de celle retrouvée au Jungfraujoch (environ 1.8). En revanche, à Izaña α est beaucoup plus faible (<1), du fait de la forte influence de masse d'air saharienne de large diamètre (Andrews et al., 2011).

Le paramètre intensif α , montre moins de variabilité saisonnière et journalière que les paramètres extensifs. Toutefois, une légère baisse de la médiane annuelle de α est visible entre 2006 et 2011. Le test de Mann-Kendall montre une pente négative significative de -0.087 par an (-4.6%), qui indiquerait une tendance à des aérosols plus gros. Des tendances similaires sont retrouvées pour certains sites aux USA (Collaud Coen et al., 2012).

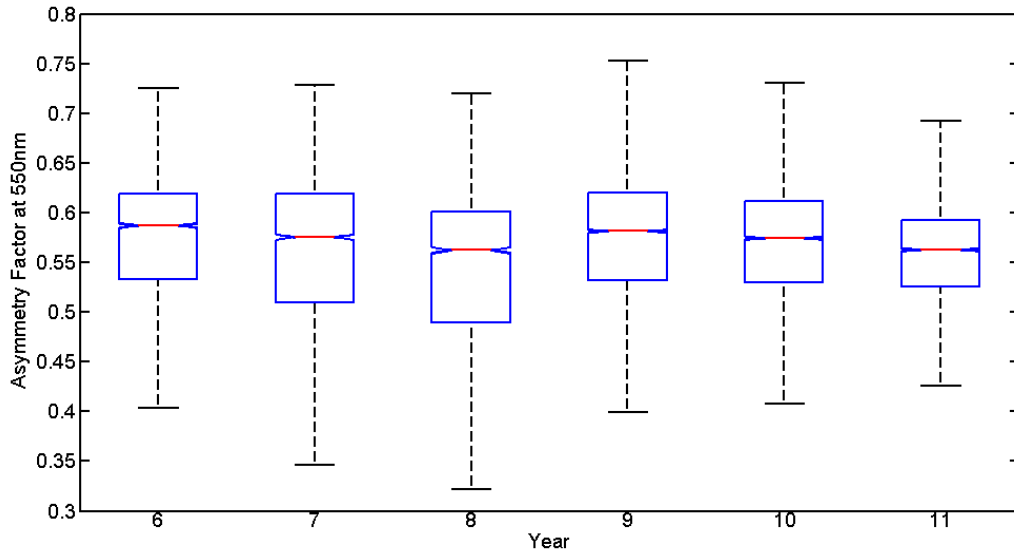
Le coefficient d'Ångström étant représentatif d'une taille moyenne de particules, nous pouvons en déduire que le spectre dimensionnel normalisé par la concentration totale, varie légèrement en fonction de la saison et de l'heure de la journée, sur les tailles optiquement actives. Dans Venzac et al. (2009), la distribution en taille mesurée au Puy de Dôme varie, entre le jour et la nuit, en terme de concentration mais très peu pour le diamètre moyen. Ceci est cohérent avec la forte stabilité journalière de α . Toujours d'après Venzac et al. (2009), le diamètre des particules diminue légèrement en hiver, en particulier pour le mode accumulation (127nm contre 140nm en été), en cohérence avec la légère augmentation de α en hiver.

4.2.5 Le facteur d'asymétrie g

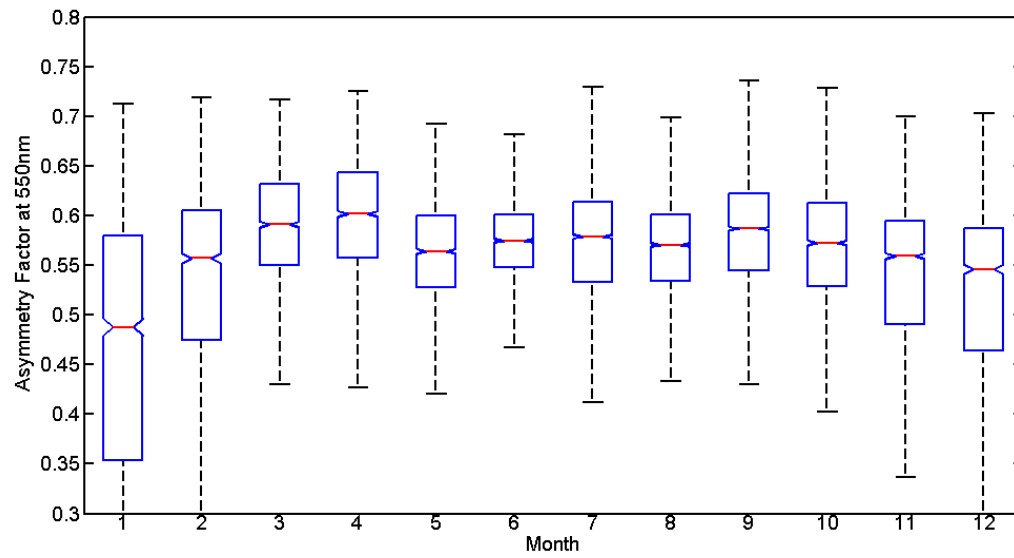
La Figure 4-9 représente l'évolution temporelle du facteur d'asymétrie mesuré par le néphélomètre à 500nm de 2006 à 2011.



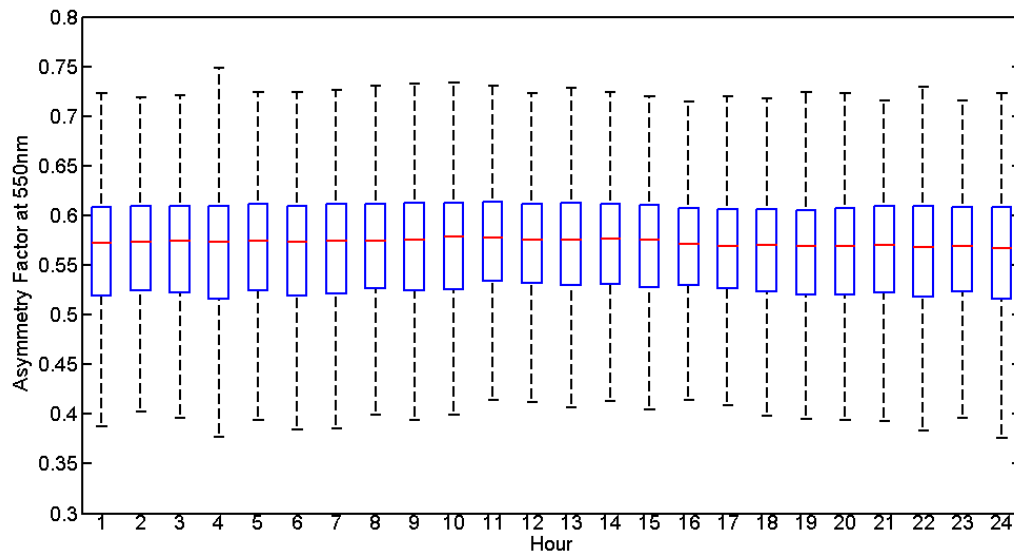
a)



b)



c)



d)

Figure 4-9: Evolution du facteur d'asymétrie (2006-2011)- Voir Figure 4-5

Le facteur d'asymétrie g est dépendant de la géométrie de la diffusion de la particule, il quantifie la proportion de diffusion vers l'avant (cf Chapitre 2). Il est principalement influencé par le diamètre des particules (Andrews et al., 2006). Plus les particules sont grosses, plus il est proche de 1. Au Puy de Dôme la valeur médiane est de 0.57 (moyenne 0.54, écart-type 0.12, 90^{ème} percentile 0.64). Andrews et al. (2011) ne donnent pas la valeur du facteur d'asymétrie pour les principaux sites de haute altitude. En revanche la valeur retrouvée au PdD est du même ordre de grandeur que celle mesurée en été près de Marseille (0.59 ± 0.05 , Mallet et al., 2003).

L'année 2008 présente une médiane plus faible que les autres années à cause de l'absence de mesures en été. Néanmoins le test de Mann Kendal montre une pente significative de -0.09 par an (-16%). Cette information indiquerait une tendance de l'aérosol à évoluer vers des tailles plus petites avec les années, en désaccord avec l'information donnée par l'évolution de $\ddot{a}$. Ceci indiquerait que la taille seule ne définit pas une valeur de g . Nous étudierons plus en détail les différentes variables influant sur g dans le paragraphe 4.2.6.

Comme pour les autres paramètres intensifs les variations saisonnières et journalières de g sont relativement faibles. Cependant la variation saisonnière est observable: un minimum est présent en janvier (0.49) et décembre (0.54). Le maximum est en avril (0.6) suivi de mars et septembre (0.59). La variation journalière est nulle. Les conclusions sont les mêmes que pour le coefficient d'Ångström. On retrouve les variations de la distribution en tailles au Puy de Dôme (Venzac et al., 2009). Il y a peu de variation du diamètre des particules entre le jour et la nuit, mais on observe bien une diminution du diamètre en hiver.

4.2.6 Relation entre g et $\ddot{a}$

Le facteur d'asymétrie g et le coefficient d'Ångström $\ddot{a}$ sont tous deux dépendants de la taille des particules. Ces deux paramètres sont souvent utilisés comme indicateurs de la taille des particules. Toutefois, si on trace g en fonction de $\ddot{a}$, on constate que $g=f(\ddot{a})$ n'est pas une simple relation linéaire. Liu et al. (2008) utilisent une paramétrisation empirique pour déterminer g à partir des mesures satellites de $\ddot{a}$. Avec les mesures des photomètres AERONET, ils démontrent la corrélation entre le rayon effectif des particules et le coefficient d'Ångström, mais se basent sur l'hypothèse que seul le diamètre des particules a une influence sur g et $\ddot{a}$. A l'heure actuelle, il existe des mesures satellites au dessus des terres, de $\ddot{a}$ mais pas de g , or c'est un paramètre essentiel pour déterminer l'impact radiatif des aérosols (Liu and Pinker, 2008).

L'intérêt d'étudier la relation entre g et $\ddot{a}$ avec les mesures du PdD est donc double: mieux comprendre les mesures réalisées au Puy de Dôme et tenter de trouver une paramétrisation permettant de calculer g en fonction de $\ddot{a}$. Pour approfondir cette question, nous avons représenté sur la Figure 4-10 g en fonction de $\ddot{a}$ sur la période 2008-2011. Les deux paramètres sont calculés à partir des mesures du néphélomètre du Puy de Dôme, selon les formules données au Chapitre 2. Pour la figure de gauche, la couleur représente σ_{abs} et la

taille des points σ_{sca} . Sur la figure de droite, la couleur représente l'origine des masses d'air. Jaune pour les masses d'air Africaine, bleu pour les océaniques, bleu clair pour les océaniques modifiées, marron pour les continentales et rouge pour les locales.

Les deux paramètres sont logiquement anti corrélés, puisque des particules fines ont un coefficient d'Ångström faible et un g a priori élevé. Sur la Figure 4-10, on distingue deux zones de corrélation. La première, encadrée en noir, montre une première dépendance linéaire entre $\tilde{a}$ et g . Pour un g élevé (>0.65), cela correspond à un $\tilde{a}$ faible (>2) et donc des particules fines. Ces fines particules sont à la fois fortement absorbantes et diffusantes. La deuxième zone encadrée en bleu montre une dépendance linéaire de pente moins négative entre g et $\tilde{a}$. La figure B) représente le même graphe mais avec la couleur qui dépend de l'origine des masses d'air. On remarque que dans la zone bleue, les valeurs faibles de $\tilde{a}$ proviennent exclusivement de masses d'air océaniques et africaines. On utilise une régression linéaire, de type $y=ax+b$, pour les particules océaniques et africaines (droite bleue, $a=-0.05$, $b=0.66$, $r^2=0.2$). Pour celles provenant de masses d'air locales, la pente est significativement différente (droite noire, $a=-0.14$, $b=0.87$, $r^2=0.4$). Les deux zones se recoupent dans une zone où les propriétés optiques sont plus variables.

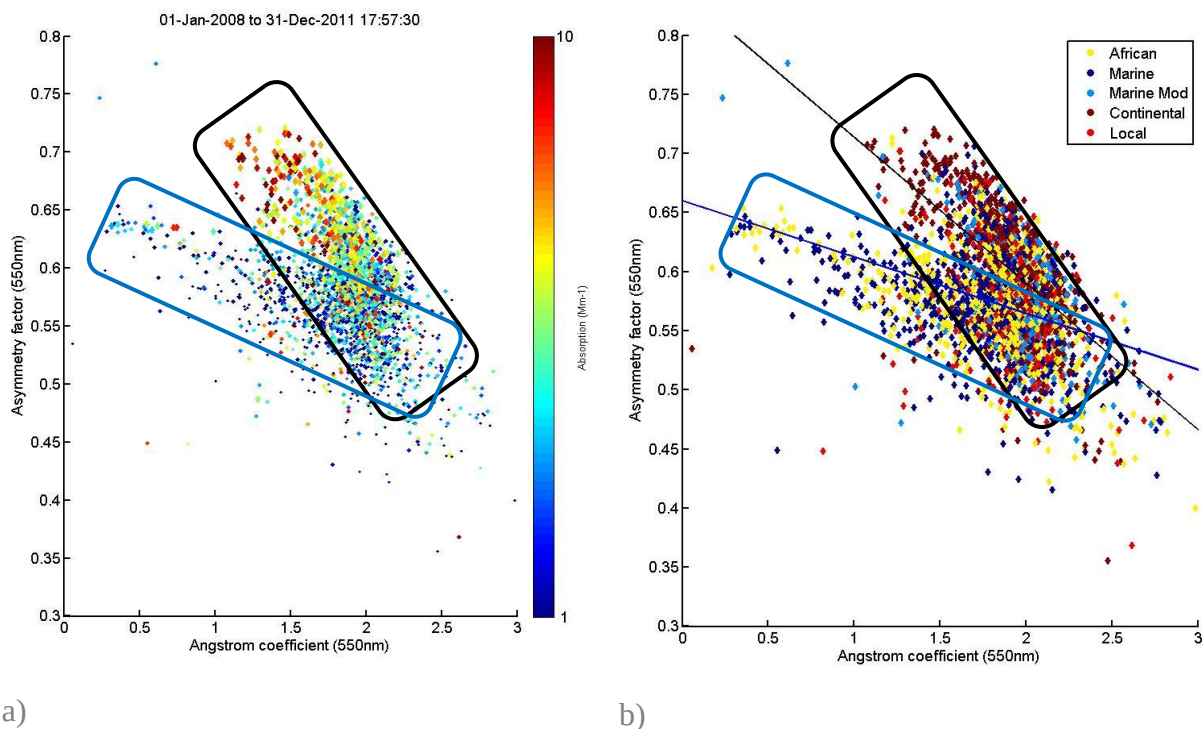


Figure 4-10: Facteur d'asymétrie en fonction du coefficient d'Ångström. a) La couleur représente le coefficient d'absorption et la taille le coefficient de diffusion. b) La couleur représente l'origine des masses d'air.

On constate que pour un même facteur d'asymétrie (par exemple 0.65), on peut avoir un coefficient d'Ångström complètement différent (de 0.5 à 2). La taille de ces particules est probablement différente mais leur facteur d'asymétrie est identique. Certaines de ces particules ont également des valeurs de σ_{sca} et de σ_{abs} similaires. Il existe donc une propriété

qui peut expliquer cette différence. Nous avons tout d'abord pensé à la forme des particules. Mais Dubovik et al. (2006) ont tracé les fonctions de phase calculées pour des particules sphériques et des sphéroïdes de 340nm. La diffusion avant change peu et les effets sur la rétrodiffusion semblent se compenser. La sphéricité ne peut donc pas expliquer cette variabilité. Cela renforce notre hypothèse de particules de tailles différentes mais avec le même coefficient d'asymétrie. D'autre part, plusieurs études ont montré que l'état de mélange n'a que peu d'impact sur le facteur d'asymétrie (Lesins et al., 2002; Mallet, 2003).

Nous avons donc utilisé un code de mie pour comprendre cette variabilité entre le coefficient d'Ångström et le facteur d'asymétrie. g et $\tilde{a}$ sont calculés pour des distributions lognormales avec un diamètre variant de 150 à 550nm. g est calculé pour une longueur d'onde de 550nm et $\tilde{a}$ entre 450 et 700nm. L'indice de réfraction réel, m_r , varie de 1.33 à 1.68 et l'imaginaire, m_i , de 0.01i à 0.2i. Le résultat est représenté Figure 4-11.

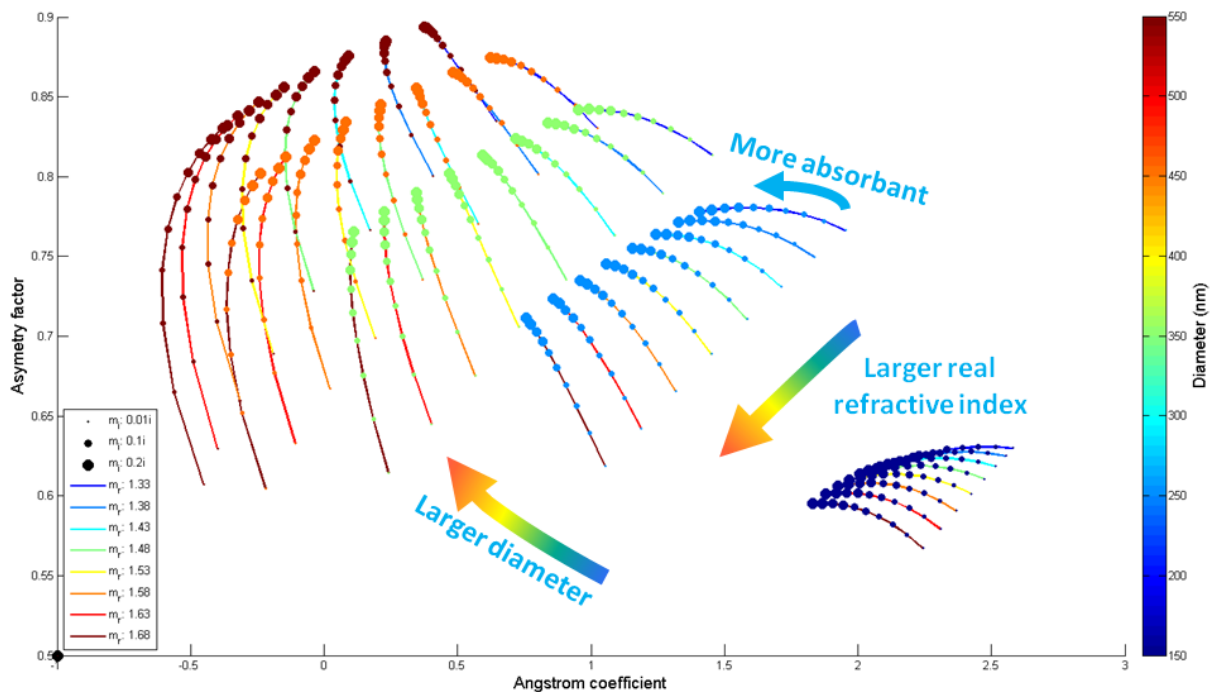


Figure 4-11: Etude théorique de la dépendance entre le coefficient d'Ångström et le facteur d'asymétrie. Les deux paramètres sont calculés avec un code de mie, pour des distributions lognormales de diamètres moyens variant de 150 à 550nm. L'indice de réfraction réel varie de 1.33 à 1.68 et l'imaginaire de 0.01i à 0.2i. La couleur des points représente le diamètre, leur taille l'indice de réfraction imaginaire. La couleur des lignes correspond à l'indice de réfraction réel.

La Figure 4-11 confirme bien l'importance du diamètre des particules dans les valeurs de $\tilde{a}$ et g . Plus le diamètre est élevé, plus le coefficient d'Ångström diminue et plus le facteur d'asymétrie se rapproche de 1. Cependant l'impact de la composition chimique, et donc de l'indice de réfraction est clairement visible sur la Figure 4-11. Utilisés seuls, $\tilde{a}$ et g ne permettent donc pas de conclure clairement sur la taille des particules mesurées.

Lorsque l'indice réel m_r augmente, α et g diminuent. De même, lorsque m_i augmente, α a tendance à diminuer. En revanche g augmente avec l'indice de réfraction imaginaire (sauf pour les plus petites particules). En conséquence, pour un diamètre égal, une particule fortement absorbante aura un coefficient d'Ångström plus bas, et un facteur d'asymétrie plus haut. Cela explique la différence de comportement entre α et g , montrés sur la Figure 4-10. Les particules marines et africaines ont vraisemblablement un indice imaginaire plus bas que celles provenant des autres masses d'air et donc un g plus bas que les autres masses d'air. La corrélation entre ω_0 et g obtenue dans les paragraphes précédents confirme cette hypothèse. D'autres études montrent la corrélation entre g et ω_0 (Andrews et al., 2006, 2011; Liu et al., 2008).

Cette étude nous permet donc de conclure que la composition chimique des particules, et en particulier la capacité à absorber la lumière, a un impact important sur la relation entre g et α . Contrairement à l'étude réalisée par Liu et al. (2008), au PdD il n'existe pas de relation monotone permettant de calculer g à partir de α . Pour calculer g à partir de α , il faut tenir compte du type d'aérosol. Cela est particulièrement nécessaire pour des aérosols marins et désertiques, quand des particules supermicroniques sont présentes et que la valeur de α est inférieur à 1. En première approximation on peut utiliser la relation $g = -0.05\alpha + 0.66$ pour les aérosols désertiques et marins et la relation $g = -0.14\alpha + 0.87$ pour des aérosols de masses d'air anthropiques. Ce comportement différent en fonction des masses d'air souligne l'importance de caractériser les propriétés optiques en fonction des masses d'air. Nous allons à présent étudier la dépendance des autres paramètres optiques de l'aérosol.

4.2.7 Carte des propriétés optiques.

Nous avons, dans ce paragraphe, couplé les valeurs de propriétés optiques mesurées au Puy de Dôme avec les rétrotrajectoires calculées de 2008 à 2011 quand l'ensemble des instruments optiques fonctionnait, afin de déterminer des propriétés propres à chaque type de masse d'air. Des cartes de propriétés optiques ont été obtenues selon la méthodologie présentée chapitre 3, et sont représentées Figure 4-12.

Tant pour les paramètres extensifs qu'intensifs, les paramètres optiques ont des valeurs plus élevées dans les masses d'air venant de l'Est comparées à celles venant de l'Ouest. Les masses d'air venant de l'Est de l'Europe sont très contrastées avec les autres, en termes de concentrations en aérosol absorbant et diffusant (Figure 4-11a et 4-11b), et l'on observe également des coefficients élevés dans les masses d'air venant de méditerranée orientale. On trouve une augmentation Est-Ouest plus graduelle en ce qui concerne l'albedo de simple diffusion, avec un aérosol plus absorbant à l'Ouest qu'à l'Est. Ce résultat peut sembler contre-intuitif, car les aérosols de combustions, fortement absorbants, sont attendus à l'Est, et les aérosols marins, peu absorbants, à l'Ouest. Cette augmentation Est-ouest peut s'expliquer si on regarde les valeurs absolues d'absorption et de diffusion. Les aérosols d'Europe continentale sont bien plus absorbants ($\sigma_{abs} \approx 3 \text{ Mm}^{-1}$) que ceux provenant de

l'océan atlantique ($\sigma_{abs} \approx 1 \text{ Mm}^{-1}$). Mais la différence est encore plus marquée entre la diffusion des masses d'air continentales ($\sigma_{sca} \approx 25 \text{ Mm}^{-1}$) et océaniques ($\sigma_{sca} \approx 5 \text{ Mm}^{-1}$).

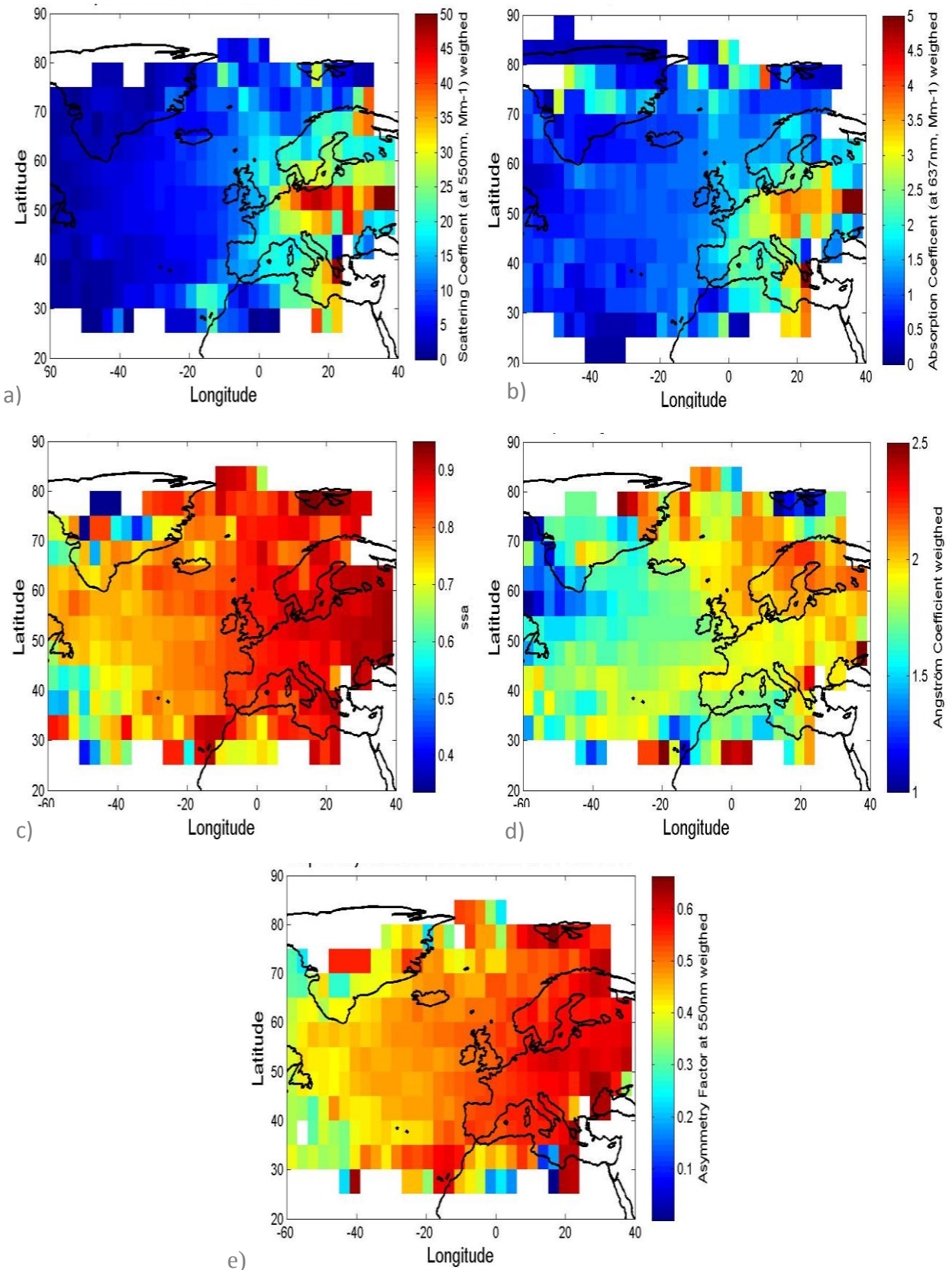


Figure 4-12: Carte des propriétés optiques: a) Coefficient de diffusion. b) Coefficient d'absorption. c) Albedo de simple diffusion. d) Coefficient d'Ångström. e) Facteur d'asymétrie.

L'albedo de simple diffusion est donc plus élevé pour des masses d'air continentales mais cela ne signifie pas que les particules sont moins absorbantes. ω_0 est juste plus faible en raison de la forte diffusion des aérosols. De plus, les aérosols en provenance de l'Est de l'Europe ont voyagé sur une longue distance avant d'être mesurés au Puy de Dôme. Les particules de suie, très fortement absorbantes ont pu être recouvertes avec d'autres matériaux (effet de coating). Cela peut expliquer la différence avec des mesures réalisées directement en zone urbaine (0.68 ± 0.07 , Lyamani et al., 2010), mais est cohérent avec les valeurs retrouvées par les modèles globaux pour des régions industrialisées (0.9, Takemura et al., 2002). C'est également cohérent avec des mesures in situ comme par exemple à Marseille, où la valeur retrouvée sur notre carte est de 0.87 contre 0.85 ± 0.05 mesuré directement sur le site (Mallet et al., 2003).

En ce qui concerne le coefficient d'Ångström, les fortes valeurs sont ciblées sur la Scandinavie, et les régions polaires. Un aérosol plus petit serait originaire de ces régions, connues pour être propices à la formation de nouvelles particules par nucléation. Les valeurs les plus basses du coefficient d'Ångström sont mesurées pour la partie Nord Ouest de l'océan Atlantique et à la pointe Nord Ouest de l'Afrique. Le diamètre des particules provenant des ces régions est donc plus élevé, en accord avec la présence de sel marin supermicronique au dessus de l'océan et de particules désertiques en Afrique du Nord.

Le facteur d'asymétrie, comme ω_0 , montre une diminution Est Ouest. Dans le paragraphe 4.2.6, nous avons vu que g , dépend principalement de la taille des particules, mais aussi de leur indice de réfraction. Une première approche peut suggérer que les particules sont de plus en plus petites selon l'axe Est-Ouest. Ce n'est pas cohérent avec les mesures du coefficient d'Ångström ni avec les conclusions de Bourcier et al. (2012). De plus, α est une mesure directe entre deux longueurs d'ondes, alors que g est calculé à partir d'une relation empirique entre le rapport de rétrodiffusion b , et g . Comme nous l'avons suggéré au paragraphe 4.2.6, la variation du facteur d'asymétrie serait principalement provoquée par les changements des propriétés absorbantes des particules et donc de leur indice de réfraction imaginaire. C'est ce que nous avons déjà suggéré en étudiant les variations de l'albedo de simple diffusion. La encore, la valeur retrouvée est cohérente avec la littérature. Toujours pour Marseille, g est de 0.55 avec notre méthode contre 0.59 ± 0.05 (Mallet et al., 2003)

Afin de comparer de façon plus globale avec la littérature existante, et pour une utilisation plus facile de nos résultats, nous les avons résumés sous forme de tableau dans le paragraphe suivant.

4.2.8 Tableau récapitulatif

Les figures du paragraphe précédent montrent une forte variabilité des paramètres optiques en fonction de l'origine des masses d'air. Afin de mieux caractériser l'aérosol en fonction des paramètres les plus judicieux, il nous paraît utile de calculer des propriétés moyennes par

type de masse d'air. Ce classement est expliqué au paragraphe 3.4. et présenté dans le Tableau 4-1. On retrouve dans ce tableau les mêmes conclusions qu'avec les cartes du paragraphe précédent et les variations journalières:

La masse d'air la plus diffusante est la masse d'air continentale. L'absorption y est également élevée. C'est une masse d'air fortement polluée. Cependant ω_0 reste élevée car la diffusion est proportionnellement plus importante que l'absorption. Le facteur d'asymétrie y est le plus élevé, mais pas le coefficient d'Ångström. Cela implique que les particules diffusent plus vers l'avant mais que la dépendance de la diffusion avec la longueur d'onde n'est pas la même. Nous avons vu au paragraphe 4.2.7 que la variation de g est corrélée avec ω_0 , indiquant que la valeur de g retrouvée est principalement dépendante des propriétés absorbantes des particules. Comme g dépend d'une paramétrisation empirique et est à une mesure directe, nous avons considérée que Å est plus représentatif de la taille des particules. La forte valeur de g serait induite par la forte absorption des particules continentales. Il n'y a pas de variation journalière significative des paramètres intensifs. En revanche, les paramètres extensifs, σ_{abs} et σ_{sca} augmente pendant la journée.

	Night (00-06h)				
Origin	$\sigma_{\text{sca}} (\text{Mm}^{-1})$	$\sigma_{\text{abs}} (\text{Mm}^{-1})$	ω_0	Å	g
African	12,04 +/- 14,78	0,76 +/- 1,37	0,91 +/- 0,08	1,91 +/- 0,37	0,57 +/- 0,10
Oceanic	5,32 +/- 10,31	0,39 +/- 0,69	0,92 +/- 0,08	1,81 +/- 0,49	0,55 +/- 0,12
Oceanic Mod	12,93 +/- 16,91	0,84 +/- 0,94	0,93 +/- 0,04	2,00 +/- 0,34	0,57 +/- 0,13
Continental	21,92 +/- 36,82	1,60 +/- 1,79	0,92 +/- 0,04	1,92 +/- 0,31	0,60 +/- 0,09
Local	20,25 +/- 13,77	1,72 +/- 1,07	0,90 +/- 0,03	1,95 +/- 0,24	0,58 +/- 0,07
Mean	11,59 +/- 21,61	0,80 +/- 1,31	0,92 +/- 0,06	1,90 +/- 0,41	0,57 +/- 0,11
	Day (12-18h)				
Origin	$\sigma_{\text{sca}} (\text{Mm}^{-1})$	$\sigma_{\text{abs}} (\text{Mm}^{-1})$	ω_0	Å	g
African	15,83 +/- 14,38	1,43 +/- 1,43	0,89 +/- 0,06	1,90 +/- 0,28	0,56 +/- 0,06
Oceanic	8,14 +/- 20,79	0,72 +/- 1,06	0,90 +/- 0,06	1,80 +/- 0,44	0,55 +/- 0,10
Oceanic Mod	16,86 +/- 13,04	1,12 +/- 1,07	0,91 +/- 0,07	1,94 +/- 0,30	0,56 +/- 0,09
Continental	26,47 +/- 44,07	2,11 +/- 3,49	0,92 +/- 0,06	1,90 +/- 0,27	0,60 +/- 0,09
Local	20,56 +/- 16,04	2,75 +/- 4,90	0,87 +/- 0,07	1,95 +/- 0,20	0,55 +/- 0,05
Mean	14,94 +/- 26,70	1,28 +/- 2,48	0,90 +/- 0,06	1,89 +/- 0,36	0,56 +/- 0,09

Tableau 4-1: Evolutions des paramètres optiques à 550nm et en fonction de l'origine des masses d'air sur 2010 2011. Pour chaque paramètre, une barre colorée permet de visualiser son intensité.

Les masses d'air locales présentent des coefficients d'absorption et de diffusion proches des masses d'air continentales, indiquant également une pollution élevée. Cependant, σ_{abs} est plus fort pour les masses d'air locales que continentales alors que c'est l'inverse pour σ_{sca} . Les particules locales sont donc plus absorbantes que les continentales. Les particules locales ayant voyagé sur une distance plus faible que les continentales, leur vieillissement et donc l'effet de *coating* sont moins importants. Ceci est confirmé par l'albédo de simple diffusion, qui est le plus faible pour les masses d'air locales. Å est également élevé confirmant la présence de particules moins âgées, avec un diamètre réduit. La variation de σ_{sca} entre le jour et la nuit est minime tandis que le coefficient d'absorption augmente largement pendant la journée. ω_0 est donc encore plus faible, indiquant des particules encore moins

âgées le jour que la nuit. Ceci est toujours cohérent avec l'hypothèse de particules émises récemment et apportées avec la dynamique de couche limite

Les coefficients de diffusion et d'absorptions sont les plus faibles pour les masses d'air marines. La quantité d'aérosol en provenance de ces masses d'air est peu élevée en raison des émissions limitées au dessus de l'océan Atlantique. Cependant ω_0 est presque aussi élevée que pour les masses d'air continentales. Cela n'implique pas que les particules marines sont aussi absorbantes que les particules continentales mais que leur coefficient de diffusion est peu élevé. Les particules d'origine marines présentent le plus petit coefficient d'Ångström: ce n'est pas cohérent avec Venzac et al. (2009) qui a montré que les particules marines au Puy de Dôme sont celles avec le diamètre le plus faible. Mais dans cette étude, les particules supermicroniques ne sont pas mesurées, la distribution en taille n'étant calculée qu'avec le SMPS. Bourcier et al. (2012) en revanche montre bien la présence d'un mode supermicronique, avec une forte proportion de sel, pour les particules d'origine marine. Cette valeur de α faible confirme bien la présence d'aérosols supermicroniques. Comme pour les masses d'air continentales, σ_{sca} et σ_{abs} augmentent pendant la journée, mais α et g varient peu. En revanche, ω_0 diminue légèrement, ce qui implique des particules relativement plus absorbantes.

Les masses d'air océaniques modifiées se démarquent avec une valeur de α élevées. Comme nous l'avons déjà souligné ces masses d'air sont particulièrement favorables pour la nucléation. α est plus élevée la nuit que le jour. La nucléation se produisant principalement au cours de la journée, à midi, les particules viennent de se former. Elles sont de l'ordre de quelques nanomètres et ne sont pas optiquement actives. En revanche, à minuit, leur croissance s'est poursuivie, les particules sont détectées par le néphélomètre et peuvent expliquer la valeur de α plus haute la nuit que le jour. Les autres propriétés optiques suivent le schéma déjà décrit: augmentation des coefficients de diffusion et d'absorption entre le jour et la nuit et baisse de ω_0 en raison de la montée de la couche limite.

Les propriétés optiques des particules d'origine africaine affichent des valeurs proches de la moyenne des autres masses d'air. L'augmentation des propriétés extensives au cours de la journée est visible ainsi que la légère baisse de ω_0 et α avec la montée de la couche limite.

4.3 Efficacité Radiative ΔE

Dans le paragraphe précédent, nous avons montré qu'il existe variations significatives des propriétés optiques des aérosols, en fonction de la masse d'air à laquelle ils appartenaient. Ces propriétés optiques propres à chaque masse d'air peuvent à présent être utilisées pour quantifier l'impact radiatif qui en résulte. En calculant l'efficacité radiative à l'aide de l'équation 1.15 et des propriétés optiques mesurées au Puy de dôme, il est possible de calculer une valeur moyenne de l'efficacité radiative en fonction de l'origine des masses d'air (Tableau 4-2). Cette efficacité radiative est donnée pour un ciel clair et au sommet de l'atmosphère. Elle est calculée sur plus de 2000 points en 2010 et 2011.

	ΔE ($\text{W.m}^{-2}.\tau^{-1}$)
African	-40.2 +/- 10.9
Oceanic	-40.4 +/- 13.4
Oceanic Mod	-47.5 +/- 8.4
Continental	-44.7 +/- 10.7
Local	-41.3 +/- 7.1
All	-42.4 +/- 11.4

Tableau 4-2: Climatologie (2008-2011) de l'efficacité radiative ΔE , mesuré à 550nm au Puy de Dôme en fonction des masses d'air.

La valeur médiane de l'efficacité radiative au PdD est $-42.3 \pm 11.3 \text{ W.m}^{-2}.\tau^{-1}$. L'intervalle entre le 5^{ème} percentile et le 95^{ème} est $[-53.2 -18.1 \text{ W.m}^{-2}.\tau^{-1}]$. C'est légèrement supérieur aux valeurs issues de modélisation en Europe $[-26 -13 \text{ W.m}^{-2}.\tau^{-1}]$ (Yu et al., 2006). Le Tableau 4-2 met en évidence des médianes sensiblement différentes en fonction des masses d'air. Les efficacités radiatives les plus fortement négatives sont calculées pour les masses d'air d'origine océanique modifiée et continentale, qui correspondent à des masses d'air avec la plus forte proportion d'aérosols anthropiques. Les masses d'air locales sont plus proches de la médiane. Les efficacités radiatives les plus faibles sont observées pour des aérosols de masses d'air océaniques et africaines.

García et al., (2012) présentent des efficacités radiatives à 550nm à la surface mesurés pour différents sites AERONET dans le monde. Les efficacités radiatives retrouvées sont très variables. Ils montrent l'importance de quantifier l'efficacité radiative des aérosols car l'intensité de ΔE peuvent être très différents selon les régions du globe et le type d'aérosol.

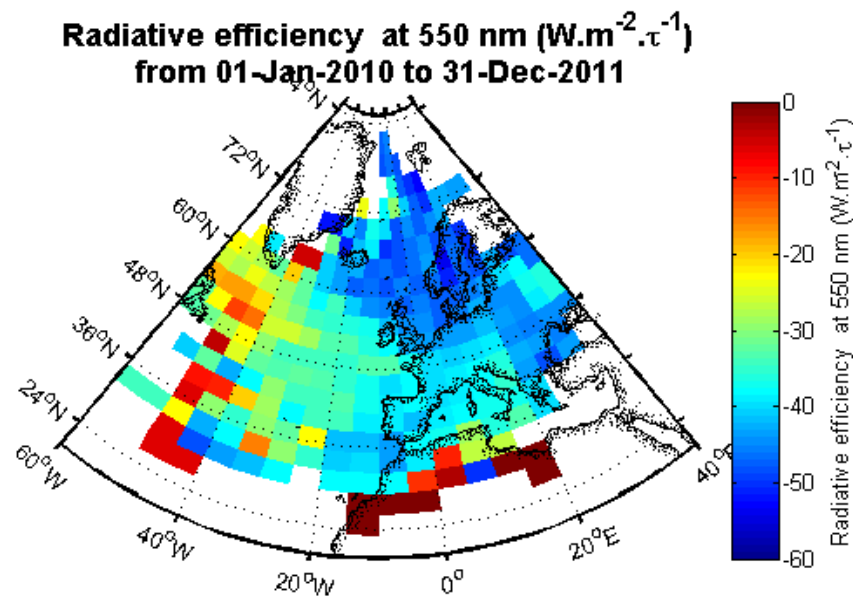


Figure 4-13: Cartographie (2010-2011) de l'efficacité radiative ΔE au sommet de l'atmosphère et à 550m. Cette cartographie est réalisée à l'aide des mesures in situ du PdD et des rétrotrajectoires.

Afin de mieux analyser ces résultats, la cartographie de l'efficacité radiative est calculée et présentée Figure 4-13. Cette cartographie montre une forte différence entre les aérosols

d'origine anthropique présentant une efficacité radiative fortement négative et les aérosols primaires qui possèdent une efficacité radiative plus faible.

La combinaison des différentes propriétés optiques et microphysiques des aérosols mesurées au PdD permet donc de mettre en évidence et de quantifier les différences d'efficacité radiative en fonction de l'origine des aérosols. Après avoir étudié les propriétés radiatives intensives des aérosols nous allons calculer l'impact radiatif en fonction de la concentration en aérosols.

4.4 Forçage radiatif ΔF

Le photomètre permet de calculer le forçage radiatif direct des aérosols. Il est aussi possible, après avoir calculé l'efficacité radiative avec les mesures in situ, d'estimer le forçage radiatif direct des aérosols en synergie avec l'épaisseur optique mesurée par le photomètre. Cependant il faut noter que ces valeurs sont calculées avec de nombreuses hypothèses comme un profil vertical des aérosols homogène, une forme sphérique et une l'hygroscopicité des particules nulle. Les résultats sont donnés dans le Tableau 4-3.

	$\Delta F_{\text{photo}} (\text{W.m}^{-2})$			$\Delta F_{\text{insitu}} (\text{W.m}^{-2})$		
African	-8.4	+/-	5.5	-4.4	+/-	10.8
Oceanic	-5.6	+/-	2.7	-3.3	+/-	9.8
Oceanic Mod	-5.4	+/-	3.2	-3.7	+/-	2.2
Continental	-9.5	+/-	10.6	-6.2	+/-	7.6
Local	-7.6	+/-	6.4	-4.5	+/-	4.1
All	-7.2	+/-	7.2	-4.3	+/-	8.8

Tableau 4-3: Climatologie (2009-2011) du Forçage radiatif ΔF au PdD. ΔF est calculé à 550nm en fonction des masses d'air.

La valeur médiane du forçage effectif calculé avec la combinaison photomètre/in situ est de $-4.3 \text{ W.m}^{-2} \pm 8.8 \text{ W.m}^{-2}$. L'intervalle entre le 5^{ème} percentile et le 95^{ème} est $[-20.2 -1.0 \text{ W.m}^{-2}]$. Celle mesurée par le photomètre est $-7.2 \text{ W.m}^{-2} \pm 7.2 \text{ W.m}^{-2} [-23.1 -2.4 \text{ W.m}^{-2}]$. Le forçage radiatif des aérosols au Puy de Dôme est donc négatif, induisant un refroidissement au sommet de l'atmosphère. Quelque soit la méthode de calcul (in situ ou photomètre), le forçage radiatif est plus fort pour les masses d'air fortement influencée par des aérosols anthropiques (masses d'air continentales et locales). Les masses d'air africaines, habituellement associées à de fortes épaisseurs optiques sont également au dessus de la médiane. Les masses d'air océaniques modifiées puis océaniques présentent un forçage moins fortement négatif.

On retrouve les mêmes conclusions si on réalise la cartographie du forçage radiatif en fonction de l'origine des masses d'air (Figure 4-14). Le forçage radiatif est fortement négatif pour les masses d'air continentales provenant de l'Europe de l'est. Les masses d'air sahariennes provoquent également l'intensification de ΔF .

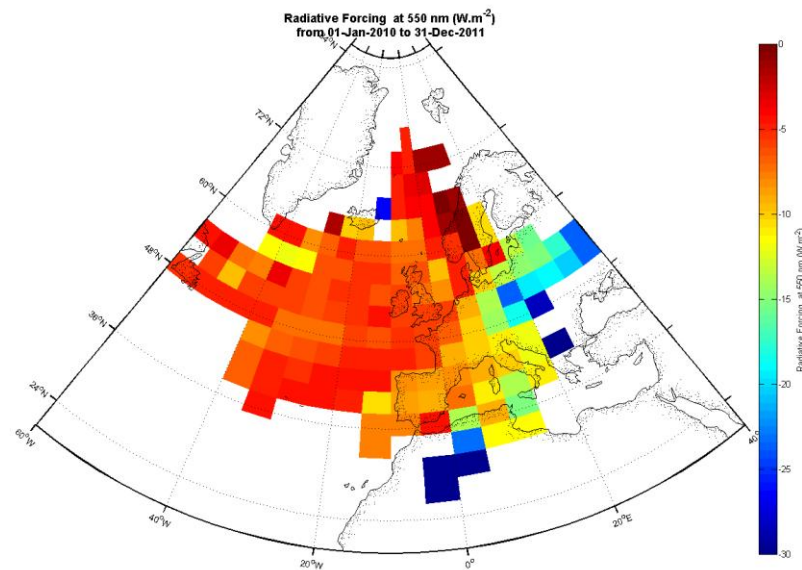


Figure 4-14: Cartographie (2010-2011) du forçage radiatif ΔF au sommet de l'atmosphère et à 550 nm. Cette cartographie est réalisée à l'aide des mesures photomètre et des rétrotrajectoires.

On peut noter que ces valeurs sont du même ordre de grandeur que celle disponibles dans la littérature. Par exemple Yu et al. (2006) calcule des valeurs de forçage radiatif au sommet de l'atmosphère entre -0.1 et -11.1 W.m^{-2} . Comme il existe de nombreuses études dans la littérature traitant de mesures de l'impact direct global des aérosols (IPCC, 2007; Yu et al., 2006 et références incluses) et comme ce calcul comporte de fortes approximations nous choisirons de ne pas approfondir l'analyse. Nous reviendrons sur l'impact de l'hygroscopicité sur le forçage radiatif au paragraphe 6.6.

4.5 Rapport Masse extinction η

Afin de pouvoir déterminer un profil de masse à l'aide de l'extinction Lidar, il est nécessaire de connaître le rapport masse-extinction η . Ce rapport est déterminé à l'aide d'une synergie de 3 instruments in situ, le néphélomètre, le MAAP et le TEOM (voir paragraphe 2.2.7). η est une propriété intensive qui dépend principalement du type d'aérosol (Mallet et al., 2011). Le Tableau 4-4 représente la valeur moyenne de η calculé en fonction de la masse d'air selon la méthode présentée paragraphe 3.5.1.

	$\eta_{(355)} (\text{g.m}^{-2})$
African	0.33 (+/-1.39)
Oceanic	0.70 (+/-2.07)
Oceanic Mod	0.56 (+/-1.92)
Continental	0.23 (+/-0.43)
Local	0.42 (+/-0.37)
All	0.44 (+/-1.55)

Tableau 4-4: Climatologie (2009-2011) du rapport masse extinction η à 355 nm en fonction des masses d'air.

Le Tableau 4-4 met en évidence la forte variabilité du rapport masse extinction en fonction des masses d'air. En effet il existe un facteur 3 entre le η caractéristique des masses d'air continentales et celui propre aux masses d'air océaniques.

Ces valeurs moyennes de η , pourront être utilisées, en première approximation, pour retrouver le profil vertical de la masse d'aérosol à partir de l'extinction Lidar. Pour une étude approfondie, η devra être calculée pour chaque étude de cas. C'est ce que nous verrons dans le chapitre 5 lors du passage du nuage d'aérosol volcanique.

4.6 Rapport Lidar L

Bien que des climatologies de rapport Lidar existent, le rapport Lidar est très variable spatialement. Il est donc nécessaire de réaliser une climatologie pour chaque station. En effet, dans de nombreux cas il n'est pas possible de déterminer le rapport Lidar à un instant donné. Pour notre station, les voies Raman n'ont été opérationnelles que récemment pour des mesures des basses couches de l'atmosphère (septembre 2012). Auparavant, la fonction de recouvrement était différente pour les voies élastiques et inélastiques, ce qui ne permettait pas l'inversion Raman avec une incertitude raisonnable. L'entrée de notre groupe dans EARLINET (mi 2012) a permis d'identifier et de corriger ce problème (notamment à l'aide de contrôles qualités comme le *telecover*). Le rapport lidar L_i est disponible uniquement le jour et est intégré sur toute la colonne atmosphérique. De plus l'incertitude associée peut être grande si la fonction de recouvrement est mal déterminée. Nous avons donc réalisé une climatologie en utilisant L_i , le rapport Lidar déterminé à l'aide des mesures in situ et celles calculées par le photomètre L_p . Ces résultats sont présentés dans le Tableau 4-5. Ils sont calculés sur 263 intervalles de 6h pour L_p , et 1116 pour L_i en 2010 et 2011.

Bien que les périodes de mesures des instruments soient différentes (par exemple le photomètre ne mesure que pendant les journées sans nuages), on note que les valeurs de rapport lidar calculées avec les deux méthodes sont très similaires. Pour le rapport Lidar L_i calculés avec les mesures in situ, trois intervalles se détachent en fonction des masses d'air. Pour des particules venant des masses d'air continentales et locales, le rapport Lidar est plus élevé (84-85 Sr). Il est intermédiaire pour les masses d'air africaines (83 Sr). La médiane la plus faible est obtenue pour les masses d'air océaniques et océaniques modifiées. Ceci est cohérent avec les valeurs de références données dans le tableau 3-1: le rapport Lidar est le plus faible pour des aérosols marins et plus élevé pour des aérosols fortement absorbants. Il faut noter qu'en général le rapport Lidar est plus élevé à 355 qu'à 532nm ce qui peut expliquer cet écart entre les valeurs du tableau 3-1 et celles calculées au PdD. On retrouve des conclusions similaires pour les masses d'air Africaines, océaniques et locales avec le rapport Lidar L_p calculé par le photomètre. Pour les masses d'air océaniques modifiées, le nombre d'occurrence est très faible avec le photomètre (12) et ne permet pas de conclure sur la représentativité de ces mesures. La valeur médiane de L_p , pour les masses d'air continentales, est calculée sur 71 occurrences contre 272 pour L_i . Il est difficile d'expliquer cette différence en utilisant simplement des valeurs médianes. Le Tableau 4-3 souligne

également la grande variabilité du rapport Lidar, même au sein d'une masse d'air. On notera également qu'aucune variation saisonnière, journalière n'a été remarquée, tant pour L_i que pour L_p .

	$L_p(355)$	$L_i(355)$
African	84+/-20	83+/-13
Oceanic	78+/-19	78+/-18
Oceanic Mod	--	77+/-12
Continental	79+/-19	84+/-13
Local	88+/-19	85+/-11
All	82+/-19	82+/-15

Tableau 4-5: Valeurs médianes et écart-type du rapport Lidar à 355nm en fonction des masses d'air (2010-2011). L_i est déterminé avec les mesures in situ et L_p est calculé avec le photomètre.

Pour aller plus loin dans l'analyse de la variabilité du rapport Lidar, ce paramètre est représenté, dans la Figure 4-15, sous forme de carte (de façon analogue au paragraphe 4.2.7).

On retrouve sur la Figure 4-15 a) et b) les tendances de la climatologie obtenue ci-dessus. En effet, pour des masses d'air océaniques, le rapport Lidar est plus bas que pour les masses d'air continentales. Les masses d'air en provenance du Sahara présentent également un rapport Lidar plus faible. Ceci est toujours cohérent avec les valeurs typiques données par Weitkamp, (2005) et résumé dans le tableau 3-1. Cependant on note, qu'en cas de rapport Lidar faibles (<50Sr), les valeurs de L_i sont surestimées par rapport à L_p . Cela est expliqué facilement par le fait que le calcul de L_i ne prend pas en compte la non sphéricité des particules.

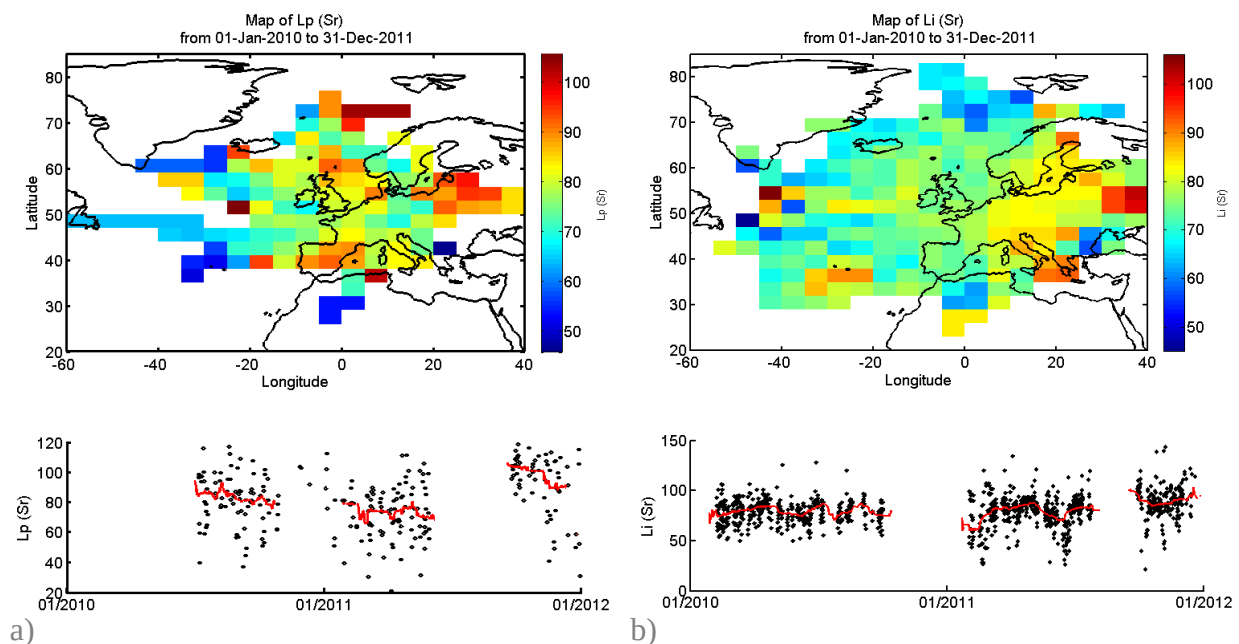


Figure 4-15: Carte du rapport Lidar à 355nm et sa variation temporelle en 2010-2011. a) Rapport Lidar déterminé avec le photomètre (L_p). b) rapport Lidar calculé à partir des mesures in situ (L_i).

Müller et al. (2007) résumant des valeurs de rapport Lidar reportées dans la littérature. Dans la couche limite, le rapport Lidar moyen en Europe de 58 ± 12 Sr. Giannakaki et al. (2010) ont également mesuré des rapports Lidar en Grèce et les ont classés en fonction des masses d'air. Le rapport Lidar le plus élevé obtenu est de 70 Sr pour des particules issues de combustion de biomasses. Pedros et al. (2010) ont également calculé des rapports Lidar par différentes méthodes (Photomètre, Photomètre+ Lidar, Modèle). Les rapports Lidar obtenus sont entre 75 et 35 Sr à 532nm. Ces différentes études montrent des valeurs du rapport Lidar inférieures à celles que nous avons obtenues. Toutefois Catrall et al. (2005) obtiennent des valeurs moyennes à 532nm comprises entre 74 et 76 Sr en France. Le rapport Lidar à 532 étant généralement plus élevé à 532nm qu'à 355, ces valeurs sont cohérentes avec les résultats obtenus au PdD.

Notre étude confirme la variabilité du rapport Lidar et montre l'importance de réaliser une climatologie adaptée au site de mesure.

4.7 Comparaison des mesures in situ et de télédétection

4.7.1 Comparaison satellite

L'utilisation des rétrotrajectoires permet de mieux comprendre les observations réalisées sur le site de mesure et d'associer des propriétés d'aérosol à un type d'aérosol spécifique d'une région géographique. Les mesures satellites permettent calculer les propriétés optiques à l'échelle globale (Goloub et al., 1999; Zhang and Reid, 2010). Pour en vérifier la représentativité, les résultats obtenus en 2010 à l'aide des rétrotrajectoires et des mesures au Puy de Dôme sont comparés avec les données du satellite MODIS (Figure 4-16)

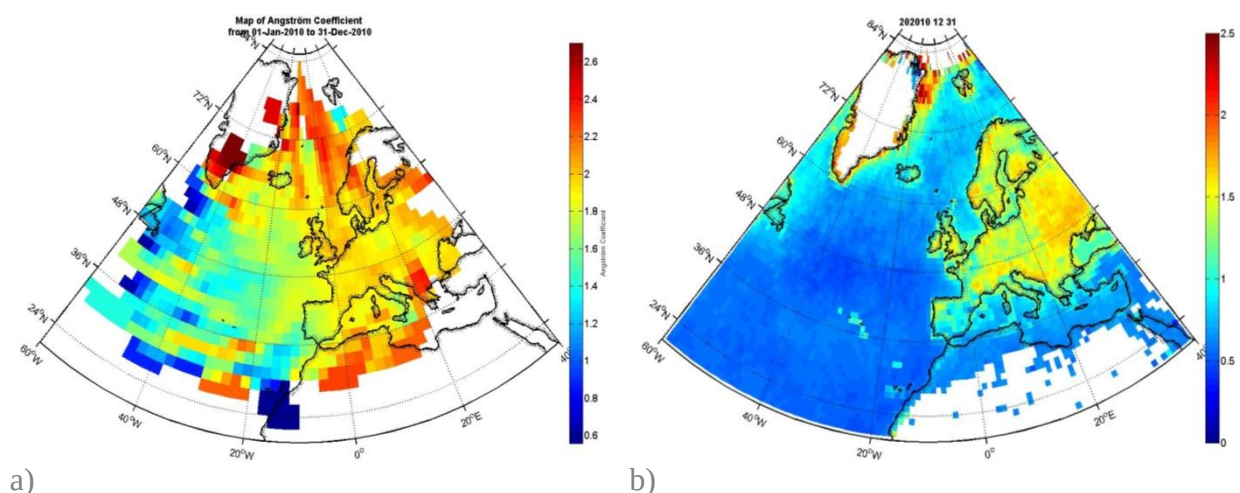


Figure 4-16 Cartes du coefficient d'Ångström(2010). a): avec les mesures in situ et les rétrotrajectoires. b): avec le satellite MODIS

Cette comparaison ne peut être que qualitative car 3 paramètres différents sont utilisés. Pour la figure de gauche on utilise le coefficient d'Ångström comme défini au Chapitre 2. Pour celle de droite, les mesures MODIS calculées au-dessus des terres et celles au-dessus des mers sont utilisées. Au-dessus des terres, le coefficient d'Ångström est calculé entre 470 et 660 nm alors qu'au-dessus de l'océan les longueurs d'ondes utilisées sont 550 et 865nm.

La cohérence de ces deux mesures est toutefois démontrée par la continuité des mesures terres/mers autour de la Méditerranée.

La corrélation entre la Figure 4-16 a) et b) semble élevée pour l'Europe et l'Atlantique. Le coefficient d'Ångström est plus important sur le continent. Il met donc en évidence que les propriétés optiques sont dominées par des particules plus fines sur le continent. C'est expliqué naturellement par la provenance de ces particules: océaniques ou anthropiques.

En revanche on remarque un désaccord pour l'Afrique du Nord. Le coefficient d'Ångström retrouvé au Puy de Dôme est plus faible que celui mesuré par MODIS. La quantité de poussière désertique transportée au PdD est donc plus faible que celle mesurée directement au dessus de l'Afrique. Le diamètre important de ces particules implique une forte sédimentation qui peut expliquer cette différence. Une deuxième hypothèse permet d'expliquer cette différence. Les mesures de MODIS sont intégrées sur toute la colonne alors que les mesures in situ se font à une seule altitude. Si les particules désertiques ne se mélangent pas avec les basses couches elles ne seront pas détectées au PdD et cela contribue à sur estimer $\text{\AA}$.

Pour le Groenland et la Norvège on remarque également une disparité importante. Nous avons émis l'hypothèse dans le paragraphe 4.2.4 que la forte valeur de $\text{\AA}$ était expliqué par la nucléation. Lors de la nucléation, le diamètre des particules est peu élevé et est très peu active optiquement et ne pourra pas être détecté par MODIS. Lors du transport jusqu'au PdD, le diamètre de ces particules va augmenter, par des processus de condensation et coagulation, et elles pourront être détectées. Il faut également noter que la valeur de $\text{\AA}$ la plus élevée est observée par MODIS sur la côte du Groenland. Cette forte valeur est sans doute provoquée par le même phénomène de nucléation.

Les mesures satellites sont donc cohérentes avec les mesures du Puy de Dôme associée aux rétrotrajectoires. Cette méthode permet donc, à partir d'un seul site de mesure, d'avoir une représentativité plus grande des principales propriétés optiques des aérosols.

4.7.2 Distributions en taille de l'aérosol par mesures photométriques et in situ

Les mesures in situ de distribution en taille de l'aérosol obtenues sur le site du Puy de Dôme peuvent servir de mesures de validation pour cette même caractéristique obtenue par télédétection calculée à partir du photomètre. Même si la distribution en taille calculée par les photomètres du réseau AERONET sont largement utilisées (e.g. Dubovik et al., 2002; Haywood et al., 2003; Sinyuk et al., 2007) et les incertitude associées bien documentées (Dubovik and King, 2000; Dubovik et al., 2000), des études récentes ont démontré que les distribution en taille calculées par le photomètre peuvent être différentes de celles mesurées par des instruments in situ, obtenues lors de mesures aéroportées et au sol (McConnell et al., 2008; Müller et al., 2010a).

Le photomètre donnant une distribution en taille volumique intégrée sur toute la colonne ($dV(r)/d\ln(r)$ en $\mu\text{m}^3/\mu\text{m}^2$), la confrontation des mesures in situ avec les mesures photométriques n'est possible que lorsque la couche d'aérosol est homogène dans la couche de mélange. Il est alors possible d'intégrer la concentration en aérosol issue du photomètre sur la hauteur de la couche limite déterminée par le Lidar afin d'obtenir une distribution par unité de volume (en $\mu\text{m}^3/\text{cm}^3$). Un site en altitude comme le puy de Dôme, disposant à la fois de mesures photomètre Lidar et in situ, présente donc un intérêt majeur pour valider les mesures photométriques.

La distribution volumique in situ est calculée à partir des mesures du SMPS et de l'OPC. Les diamètres des modes supermicronique et submicronique sont ensuite calculés à l'aide d'une régression lognormale. La Figure 4-17 présente un exemple de comparaison entre les distributions en tailles mesurée in situ au PdD et celles restituées à partir du photomètre le 27/06/2011 le matin. La couleur représente l'heure de la journée. La hauteur de couche limite mesurée par Lidar pendant la période d'intercomparaison est $3096 \pm 77\text{m}$ au dessus du niveau de la mer.

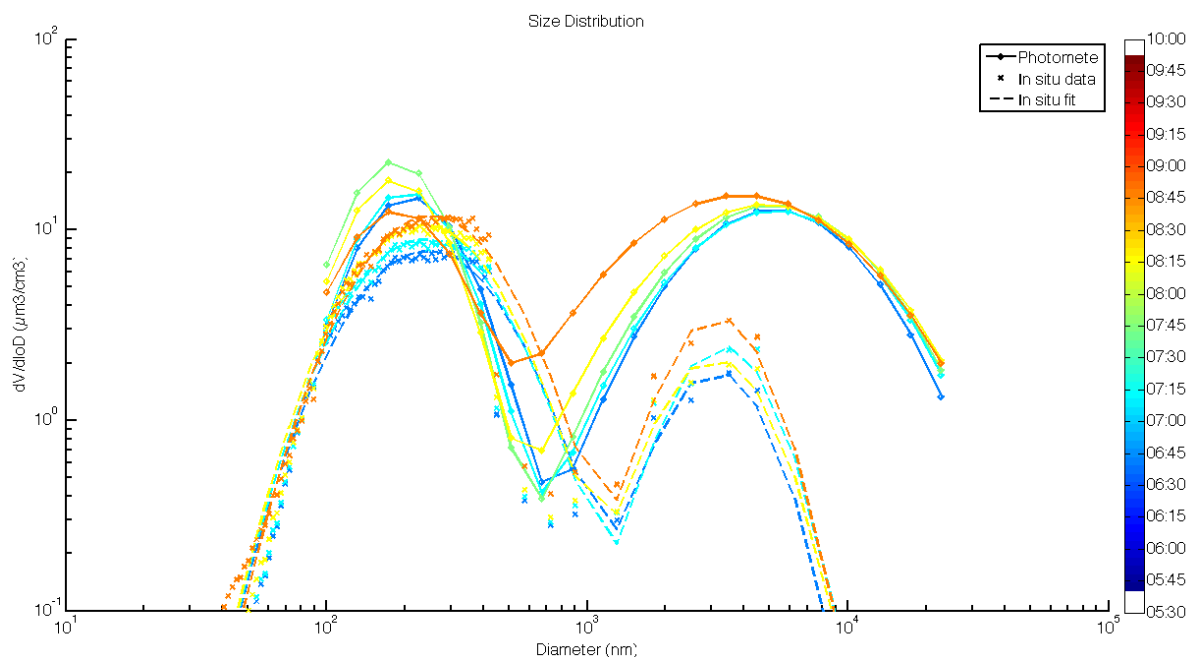


Figure 4-17 : Comparaison de la distribution en taille volumique, mesurée par les instruments In situ et par le photomètre le 27/06/2011. La couleur représente l'heure.

La Figure 4-17 montre assez bonne cohérence entre la distribution mesurée par le photomètre et celle mesurée par les instruments in situ. Dans les deux types de mesures, un mode grossier et un mode accumulation sont présents. L'évolution temporelle est également corrélée, dans les deux cas la concentration maximale est observée autour de 09:00. Cependant le diamètre du mode accumulation mesuré par le SMPS ($241 \pm 7\text{nm}$) est significativement plus élevé que celui du photomètre ($193 \pm 13\text{nm}$). A l'inverse, le diamètre du mode grossier est plus faible avec les mesures in situ ($3.1\mu\text{m} \pm 0.1\mu\text{m}$), qu'avec le photomètre ($4.9 \pm 0.6\mu\text{m}$).

Müller et al., (2010a) trouvent des résultats similaires de comparaison entre les mesures in situ et photomètre pendant la campagne SAMUM au Maroc: le diamètre effectif du mode grossier mesuré in situ est 2.5 fois inférieur à celui mesuré par le photomètre. Les auteurs expliquent cette différence par la présence d'un diamètre de coupure pour les instruments in situ. Comme dans le travail présent, Müller et al., (2010a) constatent également un diamètre deux fois plus faible pour le mode fin avec le photomètre qu'avec des mesures in situ (SMPS+APS). En revanche, Dubovik et al., (2006) présentent des distributions en taille concordante entre photomètre et mesures en laboratoire.

Pour étudier l'origine de cette divergence in situ/photomètre et la quantifier, nous avons choisi d'étudier la comparaison mesures in situ/photomètre sur la plus grande période de temps pendant laquelle le jeu de données in situ/photomètre/LIDAR est complet (février-juillet 2011) (Figure 4-18).

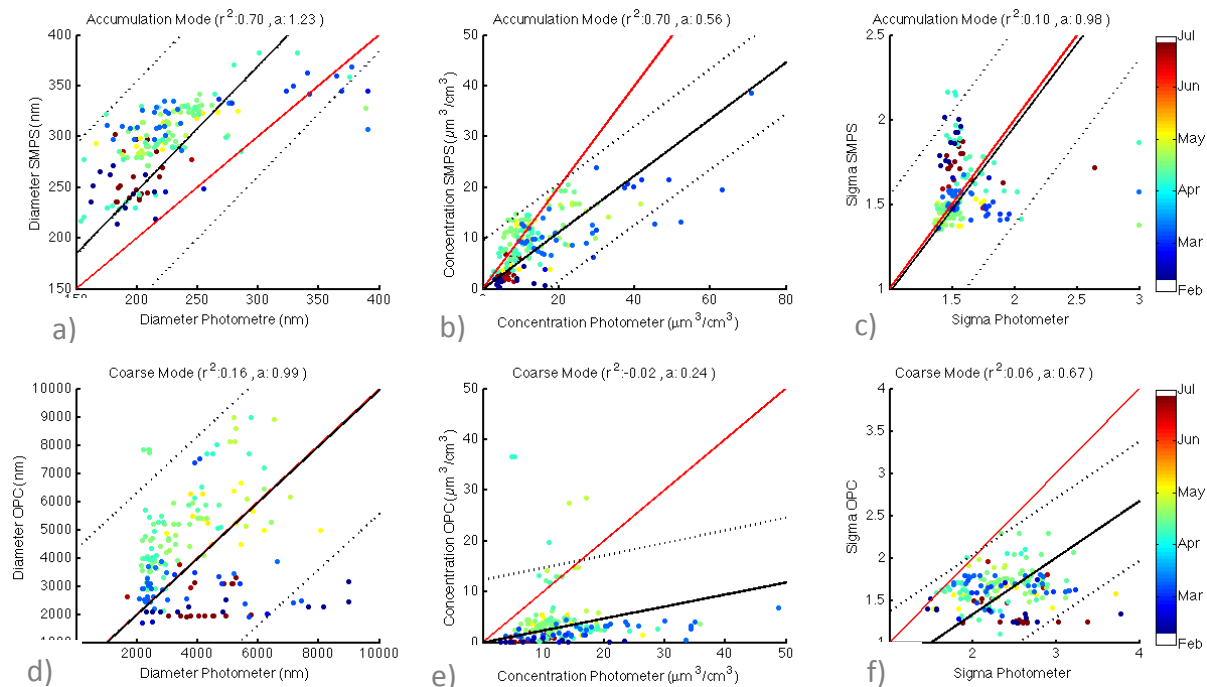


Figure 4-18: Comparaison des résultats de paramétrisation lognormale pour la distribution volumique in situ et celle du Photomètre de février à Juillet 2011. De gauche à droite: diamètre, concentration et sigma. Haut: mode accumulation. Bas: mode grossier. Les droites rouges représentent les droites 1:1, les droites noires continues la régression linéaire et les droites noires discontinues l'intervalle de confiance de 95% correspondant. La couleur des points indique la date de mesure.

Sur la Figure 4-18-a le diamètre du mode accumulation mesuré par le SMPS est tracé en fonction de celui calculé par le photomètre. Comme pour la Figure 4-17, il existe une corrélation entre SMPS et photomètre ($r^2=0.70$) mais le diamètre du photomètre est systématiquement sous estimé par rapport à celui du SMPS, sauf en cas de diamètre supérieur à 350nm. Les points où le photomètre surestime le diamètre des particules du mode accumulation par rapport au SMPS correspondent à des jours où l'atmosphère n'est pas homogène. A ces périodes, du 06 au 07/03/2011 et le 08/04/2011 principalement, le

Lidar montre l'existence de strates d'aérosols fortement dépolarisants à une altitude différente du Puy de Dôme (Figure 4-19).

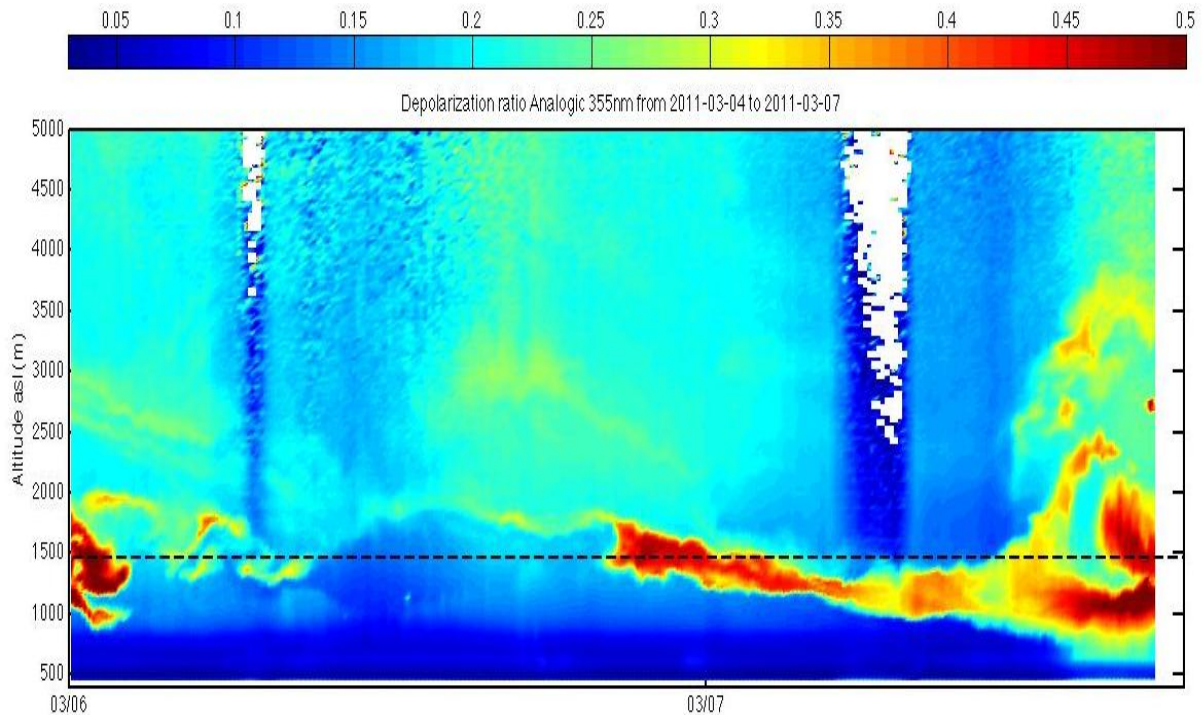


Figure 4-19: Rapport de dépolarisation mesuré par le Lidar le 06/03/2011 et le 07/03/2011. Le trait noir discontinu indique l'altitude du Pdd.

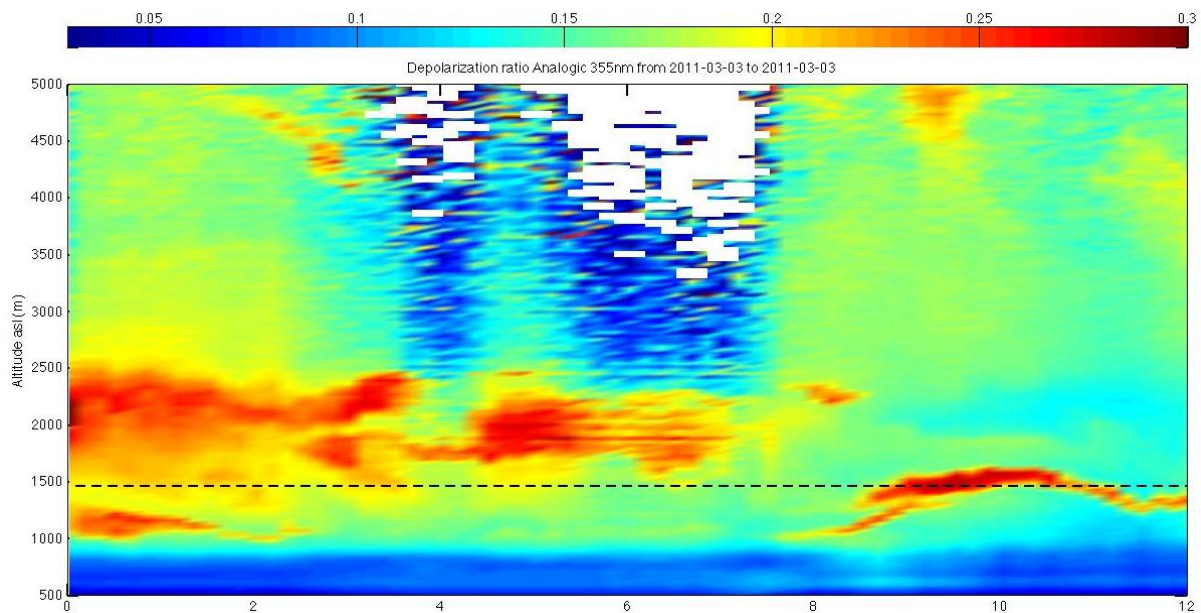


Figure 4-20 Rapport de dépolarisation mesuré par le Lidar le 03/03/2011 entre 00:00 et 12:00. Le trait noir discontinu indique l'altitude du Pdd.

Cette étude sur plusieurs mois permet de confirmer la sous estimation systématique, en cas d'atmosphère homogène, du diamètre du mode accumulation calculé par le photomètre par rapport à celui mesuré par le SMPS. Une régression linéaire de la forme $D_{SMPS} = a D_{photo}$ entraîne une pente a de 1.23 entre le diamètre mesuré par le photomètre et celui du SMPS,

indiquant une sous estimation de l'ordre de 20% du diamètre du mode accumulation par le photomètre. Le calcul d'inversion de la distribution en taille à partir des mesures photométriques n'utilise qu'un seul mode pour les particules submicroniques. Or, le mode Aitken et le mode accumulation sont souvent présent simultanément au Puy de Dôme (Venzac et al., 2009). La fusion de ces deux modes en un seul peut être à l'origine de cette erreur dans l'inversion photométrique. De plus il est possible que la sous estimation que nous avons calculée soit une valeur basse et que celle-ci soit en réalité plus importante. En effet, nous n'avons pas pris en compte l'hygroscopicité pour cette comparaison: le photomètre mesure une distribution à humidité ambiante alors que celle mesurée par le SMPS est sèche.

La concentration du mode accumulation calculée par le photomètre est cohérente avec celle mesurée par le SMPS (Figure 4-18-b). Compte tenue des hypothèses mises en jeu pour calculer la concentration de façon quantitative (hauteur de couche limite, atmosphère homogène...) l'adéquation peut être considérée comme bonne. Une régression linéaire indique une pente de 0.56, indiquant une tendance à la surestimation de la concentration des particules vues par le photomètre.

En revanche pour le mode grossier la corrélation entre mesures in situ et restitution photométrique est nettement plus faible que pour le mode accumulation, en particulier pour le diamètre mesuré (Figure 4-18-d). De plus, la concentration détectée par le photomètre est, en général, nettement supérieure par rapport à celle détectée par l'OPC du Puy de Dôme (Figure 4-18-e). Ce résultat résulterait en partie d'un biais du aux mesures in situ puisque pour les diamètres que le SMPS et l'OPC détectent conjointement, l'OPC sous estime la concentration. On notera cependant 4 périodes où l'OPC surestime la concentration par rapport au photomètre. Ces points sont mesurés le 3 mars 2011 entre 08:00 et 10:00, le 5 et le 6 mars 2011 à 15:00 et le 6 avril 2011 à 07:00. Le 3 mars 2011 entre 08:30 et 11:00, le Lidar détecte une couche d'aérosols fortement dépolarisants entre 1300 et 1600m (Figure 4-20). L'atmosphère n'est pas homogène, les aérosols supermicronique fortement dépolarisants sont présents uniquement à l'altitude du PdD ce qui explique la différence entre les mesures photomètres et in situ. Le même scénario se reproduit les autres jours où l'OPC du Puy de Dôme détecte des concentrations d'aérosols supermicroniques supérieures à celle calculées par le photomètre

4.8 Synthèse du chapitre

Dans ce chapitre nous avons, dans un premier temps, calculé les variations de la hauteur de la couche Limite grâce aux mesures Lidar. Nous avons également montré que la hauteur de la couche limite influence très fortement les propriétés optiques de l'aérosol au Puy de Dôme. Cette influence se traduit par des variations journalières et saisonnières des propriétés optiques marquées. En particulier pour les propriétés extensives (absorption et diffusion), l'augmentation est très nette pendant la journée et pendant les mois chauds où le sommet de la couche limite est souvent au dessus du PdD. Pour les propriétés intensives

cette variation est moins nette, Cela indique que les variations journalières et saisonnières des propriétés extensives sont principalement provoquées par la différence de quantité de matière entre la couche limite et la troposphère libre, que par les propriétés intrinsèques de l'aérosol. La variation saisonnière plus faible observée pour les propriétés intensives est attribuée à la variabilité des sources d'aérosols différentes en fonction de la saison, les particules émises en hiver apparaissent avec un diamètre plus faible (λ plus élevé) et proportionnellement plus absorbante (ω_0 plus bas). Les variations pluriannuelles ont également été étudiées à l'aide d'un test de Mann-Kendal. Il ne se dégage pas de tendances sur le coefficient d'absorption, de diffusion et sur l'albedo de simple diffusion. En revanche, des pentes négatives significatives sont observées pour le coefficient d'Ångström et le facteur d'asymétrie. Ces informations sont contradictoires car la taille des particules est généralement considérée comme le facteur dominant les variations de g et λ . Cela a été le point de départ d'une étude sur la relation entre la dépendance entre ces deux facteurs. Nous avons montré et paramétré que la relation entre g et λ est distincte en fonction des masses d'air. En particulier, les masses d'air océaniques et africaines se démarquent des masses d'air anthropique. Une étude théorique a permis de montrer que cette différence peut s'expliquer partiellement en raison des variations de l'indice de réfraction.

Ce chapitre présente également les conditions météorologiques et le type de masse d'air observés aux PdD. Il en ressort que le site est influencé principalement par des vents d'ouest amenant des masses d'air marines. Les masses d'air les plus représentées sont ensuite africaines, puis continentale, océanique modifiée puis locales. Chacune de ces masses d'air a une influence sur les propriétés optiques mesurée au Puy de Dôme. Une climatologie des principales propriétés optiques en fonction des masses d'air a été réalisée. Les masses d'air continentales affichent les valeurs médianes les plus élevées pour les coefficients de diffusion et d'absorption (26.5 et 20.5 Mm^{-1}). L'albedo de simple diffusion est le plus faible pour les masses d'air locales (0.87), pouvant indiquer qu'un vieillissement moindre engendre un aérosol moins diffusant et plus absorbant. Le coefficient d'Ångström le plus élevé (2.0) est observé pour les masses d'air océaniques modifiées au sein desquelles de nouvelles ont été formées par nucléation puis subit une croissance vers des tailles optiquement actives lors de leur transport au PdD. Le coefficient d'Ångström le plus faible est observé pour des masses d'air océaniques (1.8), qui contiennent de fortes proportions d'aérosols supermicroniques.

Une climatologie a également été réalisée pour le rapport masse extinction η et le rapport Lidar L . η est utile pour calculer la masses d'aérosols à partir des mesures Lidar ou pour connaître l'épaisseur optique à partir de la masse d'aérosols obtenue dans certaines modèles. Au Puy de Dôme, il existe un facteur 3 pour le rapport masse extinction, selon que la masse d'air soit continentale (0.23 g.m^{-2}) ou océanique (0.7 g.m^{-2}). La variabilité entre les différentes masses d'air est moindre pour le rapport Lidar. On notera cependant que le rapport Lidar est maximum pour les masses d'air locales (88 Sr) et minimum pour les masses d'air océaniques modifiées (77 Mm^{-1}). La cohérence entre deux méthodes indépendantes

de calcul du rapport Lidar est également soulignée: les valeurs médianes retrouvées par le photomètre et par la synergie des instruments in situ sont en parfait accord.

En plus de la climatologie, l'association des mesures du Puy de Dôme et des rétrotrajectoires a permis de réaliser des cartes des propriétés optiques. Ces cartographies confirment les valeurs et les conclusions détaillées ci-dessus et permet d'étendre la représentativité de nos mesures à l'échelle de l'Europe. Notre système de cartographie a été validé en comparant coefficient d'Ångström aux mesures du satellite MODIS.

La longue série de données du PdD a enfin permis de comparer les distributions en taille mesurées in situ avec celles calculées par le photomètre. En cas d'atmosphère homogène, les mesures montrent une sous-estimation systématique de l'ordre de 20% du diamètre du mode submicronique mesuré par le photomètre par rapport au SMPS. Cela est valable sans prendre en compte l'hygroscopicité. En cas de forte hygroscopicité des particules cette différence serait encore plus grande puisque que le SMPS mesure une distribution sèche alors que le photomètre calcule la distribution à humidité ambiante. En revanche, la concentration mesurée par le photomètre est plus grande que celle mesurée in situ, en particulier pour le mode grossier. Cela peut être expliqué partiellement par une efficacité d'échantillonnage de l'inlet inférieure à 100% ou par une sous-estimation de hauteur de la couche limite détectée par le Lidar.

Chapitre 5 : Etude de cas : Les cendres de l'éruption de l'Eyjafjallajökull

La première utilisation de la méthodologie utilisant la synergie instrumentale du site du PdD mise en place dans ce travail, a été appliquée au cours de l'éruption du volcan Islandais l'Eyjafjallajökull. Le nuage d'Aérosols volcanique a été transporté jusqu'en France où il a pu être observé à la station du Puy de Dôme, par le Lidar et au cours de mesures aéroportées. Nous avons mis en place une méthode multi instrumentale permettant d'obtenir les propriétés microphysiques et optiques de ce nuage volcanique. Cette méthode est la seule qui n'utilise pas d'hypothèse sur la densité des particules. Ces mesures ont été confrontées aux simulations du modèle FLEXPART. Nous avons également pu déterminer la masse d'aérosols volcaniques présents au dessus de Clermont Ferrand et en déduire que cette masse était en dessous des normes interdisant les avions de pouvoir circuler. Dans ce chapitre l'intégralité de l'article publié dans la revue Atmospheric Chemistry and Physics le 16/02/2012 est reprise.

« Physical and optical properties of 2010 l'Eyjafjallajökull volcanic eruption aerosol: ground-based, Lidar and airborne measurements in France »

Hervo Maxime¹, Quennehen Boris¹, Kristiansen Nina Iren³, Boulon Julien¹, Stohl Andreas³, Fréville Patrick¹, Pichon Jean-Marc¹, Picard David¹, Labazuy Philippe², Gouhier Mathieu², Roger Jean-Claude¹, Colomb Aurélie¹, Schwarzenboeck Alfons¹ and Sellegri Karine¹

¹ Laboratoire de Météorologie Physique, Observatoire de Physique du Globe de Clermont-Ferrand, Université Blaise Pascal – CNRS, 24 avenue des Landais, 63 177 Aubière cedex, France.

² Laboratoire Magma et Volcan, Observatoire de Physique du Globe de Clermont-Ferrand, Université Blaise Pascal – CNRS, Clermont-Ferrand, France.

³ Norwegian Institute for Air Research, Kjeller, Norway.

5.1 Abstract

During the Eyjafjallajökull eruption (14 April to 24 May 2010), the volcanic aerosol cloud was observed across Europe by several airborne in situ and ground-based remote-sensing instruments. On 18 and 19 May, layers of depolarizing particles (i.e. non-spherical particles) were detected in the free troposphere above the Puy de Dôme station, (PdD, France) with a Rayleigh-Mie LIDAR emitting at a wavelength of 355 nm, with parallel and crossed polarization channels. These layers in the free troposphere (FT) were also well captured by simulations with the Lagrangian particle dispersion model FLEXPART, which furthermore showed that the ash was eventually entrained into the planetary boundary layer (PBL). Indeed, the ash cloud was then detected and characterized with a comprehensive set of in situ instruments at the Puy de Dôme station (PdD). In agreement with the FLEXPART simulation, up to $65 \mu\text{g.m}^{-3}$ of particle mass and 2.2 ppb of SO_2 were measured at PdD, corresponding to concentrations higher than the 95 percentile of 2 years of measurements at PdD. Moreover, the number concentration of particles increased to 24000 cm^{-3} , mainly in the submicronic mode, but a supermicronic mode was also detected with a modal diameter of $2 \mu\text{m}$. The resulting optical properties of the ash aerosol were characterized by a low scattering Ångström exponent (0.98), showing the presence of supermicronic particles. For the first time to our knowledge, the combination of in situ optical and physical characterization of the volcanic ash allowed the calculation of the mass-to-extinction ratio (η) with no assumptions on the aerosol density. The mass-to-extinction ratio was found to be significantly different from the background boundary layer aerosol (max: 1.57 g.m^{-2} as opposed to $0.33 \pm 0.03 \text{ g.m}^{-2}$). Using this ratio, ash mass concentration in the volcanic plume derived from LIDAR measurements was found to be $655 \pm 23 \mu\text{g.m}^{-3}$ when the plume was located in the FT (3000 m above the sea level (a.s.l.)).

This ratio could also be used to retrieve an aerosol mass concentration of $579 \pm 60 \mu\text{g.m}^{-3}$ on 19 April, when LIDAR observations detected the ash cloud at 3000 m a.s.l. in correspondence with model simulations (FLEXPART). On 22 April, another ash plume entered the BL, and although it was more diluted than during the May episode, the French research aircraft ATR42 that passed over Clermont-Ferrand in the PBL confirmed the presence of particles with a supermicronic mode, again with a modal diameter at $2 \mu\text{m}$.

This data set combining airborne, ground-based and remote sensing observations with dispersion model simulations shows an overall very good coherence during the volcanic eruption period, which allows a good confidence in the characteristics of the ash particles that can be derived from this unique data set.

5.2 Introduction

On 20 March 2010, a volcanic eruption started in the Fimmvörduháls pass between two central volcanoes, Eyjafjallajökull and Katla, in the southern part of Iceland, about 150 km east of Reykjavik. Lava fountains up to 200 m height characterized this first eruption phase, but the activity at Fimmvörduháls eventually ceased on April 13, 2010. A few hours later, seismic unrest was detected 20-25 km beneath the summit crater of Eyjafjallajökull (63.63°N , 19.62°W , 1666 m above sea level (a.s.l.)), and a long eruptive fissure opened in the above glacier ejecting a more silicic magma than before, and leading to a large phreatomagmatic eruption (Sigmundsson et al., 2010). This type of eruption is characterized by highly explosive phases due to magma-water interaction increasing pyroclasts' fragmentation, which may partly explain the very large amount of fine ash released into the atmosphere. The eruption has been characterized by two main phases of intense ash and gas emissions spanning April 14-21 and May 1-18 (Stohl et al., 2011), with a maximum intensity recorded on May 6. The ash and gas emissions ceased on May 24, after about 6 weeks of intense ash emissions. Satellite-based measurements carried out with Meteosat Second Generation (MSG), Spin-stabilised Enhanced Visible and Infrared Imager (SEVIRI) and Aura-OMI sensors give a total fine ash mass estimate of 4.8 Mt centred on $4.3 \mu\text{m}$ and 0.2 Mt of sulphur dioxide (SO_2) (Gouhier et al., in review), whereas an inversion study using SEVIRI and IASI satellite data obtained a total fine ash mass of 8.3 Mt in the size range $2.8\text{--}28 \mu\text{m}$ (Stohl et al., 2011). Volcanic ash and gas clouds are a threat to aircraft operations (Casadevall, 1994; Prata and Tupper, 2009) and concerns about aviation safety led to repeated closure of large parts of the European airspace during periods of the Eyjafjallajökull eruption. This caused global travel chaos and the loss of billions of Euro and directly impacted millions of people.

The presence of volcanic ash in April-May 2011 has been demonstrated all over Europe through several studies. Different techniques were used aiming to determine the properties of ash particles/clouds. Airborne in situ measurements were performed in the ash cloud by the German Falcon research aircraft (Schumann et al., 2011), measuring ash volume size distribution with effective diameters between 0.2 and $3 \mu\text{m}$, while the Swiss Diamond

Aircraft HK36 (Bukowiecki et al., 2011) flew to track the ash plume over Switzerland and measured high particle concentrations over Zurich, up to 120 cm^{-3} for particle larger than 500 nm.

In the same study, Bukowiecki et al. present ground-based measurement at an elevated site in the Swiss Alps (Jungfrauoch). Unusual enhancements in SO_2 up to $25 \mu\text{g.m}^{-3}$, particulate matter (PM10) concentrations up to $70 \mu\text{g.m}^{-3}$ and a mean optical diameter around $3 \pm 0.3 \mu\text{m}$ were detected. Additionally, hygroscopicity was also investigated and reveals that ash uptakes water efficiently via adsorption (Latham et al., 2011). Other high-altitude stations recorded ash episodes combined with sulphuric dioxide and sulphuric acid enhancements in Germany (Flentje et al., 2010; Schäfer et al., 2011) while at sea-level, measurement stations also detected ashes (Lettino et al., 2012; Pitz et al., 2011).

While RADAR is intensely used close to the volcano to monitor the ash emissions, remote sensing by LIDAR is the most common technique used to detect aerosols in the atmosphere after transport far from the source. The largest ash particles settle close to the eruption site while micrometric particles can remain airborne longer and can be transported far downwind from the volcano. Most of LIDAR measurement stations are grouped in a dedicated network (European Aerosol Research Lidar Network to Establish an Aerosol Climatology: EARLINET) and their results are presented by Ansmann et al. (2011). They report an enhancement in the depolarization ratio, an indicator of the particle non-sphericity and in the extinction coefficient, which indicates important concentrations of large particles. Similar results are presented by several studies all over Europe (Emeis et al., 2011; Gasteiger et al., 2011; Miffre et al., 2012; Mona et al., 2011; Revuelta et al., 2012).

To convert the Lidar signal into mass concentration, a mass-to-extinction ratio (η) is needed. In the studies-cited above, η values could not be calculated directly because collocated in situ measurements were missing. For example, Miffre et al. assume an ash diameter of $10 \mu\text{m}$ and a density of 2.6 g.cm^{-3} (Miffre et al., 2012). Ansmann et al. derived a particle mass concentration from a Lidar-Photometer synergy with assumptions on density (Ansmann et al., 2011) and Gasteiger et al. from a Bayesian inference statistical method with assumptions on the particle shape or on the size distribution (Gasteiger et al., 2011).

In this study, we present a combination of in situ and collocated Lidar extinction measurements, operated by the OPGC (*Observatoire de Physique du Globe de Clermont-Ferrand*) on two different occasions during April and May 2010. The ash plume was further studied by analyzing the output from particle dispersion model simulations and airborne measurements. We present microphysical and optical properties of the volcanic ash after transport in the atmosphere and a quantitative study of the mass concentration derived from the synergy between these measurements.

5.3 Instrumentation and modelling

5.3.1 The Puy de Dôme research station

The Puy de Dôme (PdD) research station is located in the centre of France (45°46'N, 2°57'E) at 1465 m a.s.l.. The station is equipped with state of the art instrumentation operated continuously to characterise aerosol particles and trace gases including SO₂ concentrations. Results showing the seasonal variation of the aerosol number size distribution are discussed in (Venzac et al., 2009). All the in situ instruments presented in this paper measure the dry aerosol properties and are sample after the inlet with a cut-off diameter of 30µm.

Particle number concentrations with a diameter greater than 10 nm are measured with a butanol based CPC (model TSI 3010). Total mass concentrations of aerosol particles are measured with the commercial instrument: TEOM-FDMS 8500C (Tapered Element Oscillating Microbalance-Filter Dynamic Measurement System (Grover et al., 2005; Ruppecht et al., 1992)(Grover et al., 2005;Ruppecht et al., 1992). The TEOM-FDMS uses intermittent sampling through a filter to account for the mass of semi-volatile material lost due to volatilization. The resolution of the TEOM-FDMS given by the constructor is $2.5\mu\text{m}^{-3}\pm 1\%$ of the measurement. The aerosol absorption coefficient σ_{abs} is measured with a Multi Angle Absorption Photometer (MAAP 5012; with a central wavelengths at 637 nm(Petzold et al., 2005)), and the scattering (and backscattering) coefficient by a three wavelengths nephelometer (model TSI 3563 with central wavelengths of 450, 550, 700 nm) for which corrections for detection limits and truncation errors are applied (Anderson and Ogren, 1998).

The nephelometer data allow the calculation of the scattering Ångström exponent (α) between two wavelengths:

$$\alpha = - \frac{\log \sigma_{\text{sca}(700 \text{ nm})} - \log \sigma_{\text{sca}(450 \text{ nm})}}{\log 700 - \log 450}$$

A scattering Ångström exponent (α) value around 2 implies an aerosol volume size distribution with scattering (σ_{sca}) dominated by small particles (diameter < 1 µm), while a volume distribution dominated by coarse particles (Dm > 1 µm) has typically a smaller α , around 1(Dubovik et al., 2002).

The scattering properties are calculated at 355 nm using the scattering Ångström exponent (α). According to previous studies the uncertainties on the scattering coefficient can be consider of 7% (Anderson et al., 1999; Anderson and Ogren, 1998). After propagation (Wagner and Silva, 2008), the value of the error in the calculation of α was determined ($\Delta\alpha=0.32$). Extrapolating the scattering coefficient at 355nm, from measurements at 450nm and the Ångström exponent, generates an error of 19% with the following equation:

$$\frac{\Delta\sigma_{\text{sca}(355)}}{\sigma_{\text{sca}(355)}} = \ln\left(\frac{637}{450}\right)\Delta\alpha + \frac{\Delta\sigma_{\text{sca}(450)}}{\sigma_{\text{sca}(450)}}$$

The MAAP and nephelometer measurements enable to calculate the single scattering albedo ω_0 :

$$\omega_{0(\lambda)} = \frac{\sigma_{sca(\lambda)}}{\sigma_{sca(\lambda)} + \sigma_{abs(\lambda)}}$$

ω_0 indicates the relative absorptivity of the aerosol, with lower values indicating stronger absorption.

A combination of the TEOM, MAAP and nephelometer measurements can be used to calculate the mass-to-extinction conversion factor η at a specific wavelength λ ,

$$\eta_{(\lambda)} = \frac{M}{\sigma_{sca(\lambda)} + \sigma_{abs(\lambda)}}$$

where M is the total mass concentration measured by the TEOM. η is a key parameter to calculate vertically-resolved mass concentration from Lidar measurements.

The absorption coefficient is calculated at 355nm with an Absorption Ångström Exponent (AAE) equal to unity (i.e. the absorption is directly proportional to the wavelength variation: $\sigma_{abs(355)} \approx 637/355 * \sigma_{abs(637)}$). AAE is correlated with aerosol composition or type: for most urban industrial site, the AAE value is close to one but can increase until 2.5 for others kind of particle (Russell et al., 2010). Using an AAE of 1 ($\sigma_{abs(355)} = 1.79 * \sigma_{abs(637)}$) instead of 2.5 ($\sigma_{abs(355)} = 4.31 * \sigma_{abs(637)}$) implies an important error on the absorption coefficient by a factor of 2.41. Nevertheless, as the single scattering albedo is relatively high (0.97 ± 0.01) during the measurement period (i.e. the scattering coefficient is significantly higher than absorption coefficient) the absorption impact on the extinction is limited. Indeed the extinction was calculated for both AAE of 1 and 2.5 in order to estimate the error generated by such an approximation. When using the AAE of 1 instead of 2.5, the extinction was underestimated by only 4.2% on average with a 10.4% maximum on the period considered in this study. The same error will be propagated to the mass-to-extinction ratio η and to the Lidar mass concentration.

The supermicronic Particle Size Distributions (PSD) are recorded with an Optical Particle Counter (OPC, Grimm model 1.108) measuring particles in the size range $0.3 < D_m < 20 \mu m$ over 16 channels. Submicronic PSD are detected using a Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS, (Villani et al., 2008)), sizing particles in the range $10 < D_m < 500 \text{ nm}$

SO₂ concentrations are measured by a pulsed fluorescence gas analyzer (TEI 43CTL), while nitrogen dioxide (NO₂) and nitrogen monoxide (NO) are measured by ozone chemiluminescence (TEI 42CTL), O₃ with a UV analyser (TEI 49C) and CO with a IR analyser (TEI 42 TL). The chemical composition of the aerosol is determined 2 days a week by Teflon filter samples collected following GAW (Global Atmosphere Watch) recommendation (WMO, 2003) and analysed by ionic chromatography (DIONEX). Analytical procedures are described in Bourcier et al. (2012)

5.3.2 Lidar

We used a Raymetrics Rayleigh-Mie Lidar, based on a tripled Nd:YAG frequency laser, which emits pulses of 75 mJ output energy at 355 nm with a 10 Hz repetition rate, on parallel and orthogonal polarization channels. The optical receiver is a Cassegrainian reflecting telescope with a primary mirror of 300 mm diameter and a focal length of 600 mm, directly coupled, through an optical fibre, to the Lidar signal multi-channel detection box (Papayannis et al., 2005). The vertical resolution of the raw signals is 7.5 m. The Lidar is positioned on the roof of the OPGC, (45.76°N, 3.11°E) at 425m a.s.l. (located 11 km east of PdD).

As the Lidar measures both parallel and orthogonal polarization it allows us to calculate the volume depolarization ratio as a function of the distance r from the telescope $\delta(r)$ (Weitkamp, 2005). A large depolarization ratio indicates that the aerosol is strongly depolarizing and, thus, that particles are non-spherical. Non-spherical glass and mineral particles typical of volcanic ash generate strong laser depolarization (Sassen et al., 2007).

The Lidar signal inversion is based on the Klett method (Klett, 1985) to obtain the aerosol extinction α_{aer} from the measured backscatter β_{aer} . The inversion needs a particle free Lidar signal (typically between 6000 m and 8000 m) and therefore can only be realised during clear sky conditions. Typical statistical errors due to the signals detection are below 10% for backscatter coefficients at 355 nm (Bockmann et al., 2004; Giannakaki et al., 2010; Matthais et al., 2004). For each Lidar profile, an aerosol Lidar ratio (L_{aer}) can be calculated according to the following equation:

$$L_{aer} = \frac{4\pi}{\omega_0 P_{11}(180^\circ)} = \frac{\alpha_{aer}}{\beta_{aer}}$$

With ω_0 the single scattering albedo and $P_{11}(180^\circ)$ the phase function at 180° computed with a Mie code (Bond et al., 2006; Mätzler, 2002). The Mie code inputs are the size distribution and the refractive index. The size distribution is measured with the SMPS and OPC. The refractive index was obtained via an inversion of the dry scattering and absorption, using Mie theory and the measured size distribution.

5.3.3 Aircraft measurements.

During the Eyjafjalla eruption, the French research aircraft ATR-42 was deployed over France. In order to estimate concentrations of volcanic ash in the atmosphere, two microphysical probes were mounted on the aircraft: The Passive Cavity Aerosol Spectrometer Probe (PCASP 100-X, DMT) and the Forward Scattering Spectrometer Probe (FSSP-300, DMT) measuring in particle size ranges $0.1 \mu\text{m} < D_m < 3 \mu\text{m}$ and $0.3 \mu\text{m} < D_m < 20 \mu\text{m}$ over 30 and 31 channels, respectively. The instruments were operating outside the aircraft fuselage. From 19 to 22 April, four scientific flights were performed over France, and on 22 April, the ATR-42 flew over Clermont-Ferrand in the PBL.

5.3.4 FLEXPART simulations

We used the Lagrangian particle dispersion model FLEXPART (Stohl et al., 2005) to evaluate the presence of the volcanic ash cloud over our two measuring sites. FLEXPART was run in forward mode and driven with meteorological data from the European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF) analyses with $0.18^\circ \times 0.18^\circ$ horizontal resolution and 91 vertical model levels. The simulation accounted for gravitational particle settling as well as dry and wet deposition, but no ash aggregation processes. Formation of sulphate particles was also not simulated. The ash emission rates and heights were determined using an inversion scheme that couples a priori source information and FLEXPART model data with satellite data (Stohl et al., 2011). The ash particle size distribution included 25 particle size classes from 0.25-250 μm diameter. The model output had a spatial resolution of $0.25^\circ \times 0.25^\circ$ and a vertical resolution of 250 m.

5.3.5 Uncertainties discussion

All the variabilities given in the following results represent the standard deviation of the parameter during the considered period.

The uncertainties on the mass-to-extinction ratio have been calculated following this equation:

$$\eta = \frac{1}{\sigma_{abs} + \sigma_{sca}} (\Delta M + M \frac{\Delta\sigma_{abs} + \Delta\sigma_{sca}}{\sigma_{abs} + \sigma_{sca}})$$

where $\Delta\eta$ are the uncertainties on the mass-to-extinction ratio, ΔM the error on the mass measurements M given by the TEOM constructor, $\Delta\sigma_{sca}$ and $\Delta\sigma_{abs}$ respectively the uncertainties on the measured scattering and absorption coefficients at 355nm (σ_{sca} and σ_{abs}). During the volcanic event the mean relative uncertainties is 33%. Now the uncertainties are represent on Figure 5.

A sensitivity of the impact of non-sphericity on Lidar ratio has been done the 28/06/2011, when strongly depolarizing particle and photometer measurements were present ($\delta > 40\%$). The Lidar ratio retrieve with the synergy of Lidar and photometer (Cuesta et al., 2008; Raut and Chazette, 2007) was 75 Sr^{-1} . The difference with the Lidar ratio computed with the procedure described previously is lower than 18%. The same procedure was proceeded on the 11/07/2011 when no depolarizing particles were detected. The difference between both Lidar ratios was 5 %.

The estimations of the Lidar ratio derivate from Lidar/Sun photometer is expected in the range 15%-25% (Dubovik and King, 2000; Nehrir et al., 2011). Consequently we assume that using a Mie code instead of the most common method (Lidar/Photometer synergy) is not the main factor of uncertainties. A last the Lidar ratio retrieved with our procedure is close to the Lidar ratio retrieved with the most accurate methods describe previously.

When maximizing the uncertainties of all the parameters, the precision of the mass retrieved is better than 68%.

5.4 Results

5.4.1 Case 1: 18 and 19 May 2010

5.4.1.1 Simulated ash distribution

On 18 and 19 May, the Eyjafjalla volcanic cloud resided over Clermont-Ferrand. Figure 5-1 (upper panel) shows the FLEXPART simulated distribution of the ash clouds over Europe at 9:00 UTC on 18 May.

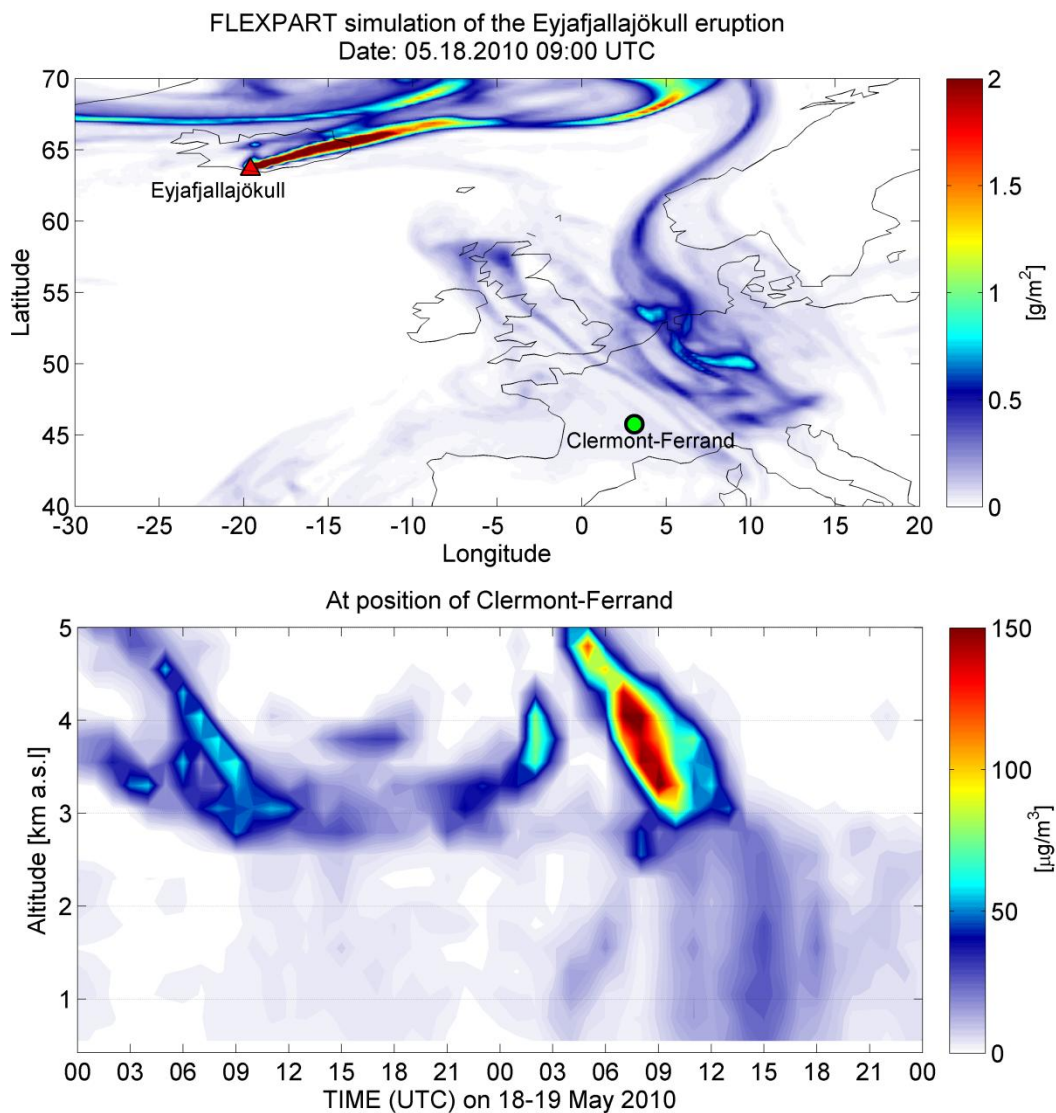


Figure 5-1 : FLEXPART simulated ash cloud. Total ash column load on 18 May 09:00 UTC (upper panel), and simulated vertical distribution of ash over Clermont-Ferrand for 18 and 19 May (lower panel).

The ash cloud arrived from the north and parts of the cloud were sampled previously on 17 May over the North Sea and on 18 May over Germany by a research aircraft (Schumann et al., 2011). High ash concentrations of up to $500 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ were found on 17 May and still high

concentrations were observed over Germany on 18 May, in relatively good agreement with the FLEXPART simulated concentrations along the aircraft flight tracks (Stohl et al., 2011). Figure 5-1 (lower panel) shows a time-height section of the FLEXPART simulated ash mass concentrations over Clermont-Ferrand. FLEXPART is simulating volcanic ash around 3000 m a.s.l. above Clermont-Ferrand from 00:00 UTC on 18 May to 13:00 on 19 May. The maximum ash mass concentration is $176 \mu\text{g.m}^{-3}$ at 8:00 UTC on 19 May at 4100m a.s.l. On two occasions (on 19 May from 03:00 UTC to 08:00 and from 10:00 to 20:00), FLEXPART simulates entrainment of volcanic ash into the boundary layer.

5.4.1.2 Lidar measurements

The Lidar observations (Figure 5-2 top pannel) highlight the presence of a depolarizing layer in the free troposphere (FT) at 3000 m a.s.l, from 4:00 to 10:00 on 18 May, with a maximum thickness of 500 m. At 10:00 UTC, cumulus clouds are formed at the same altitude as the volcanic cloud. The layer was observed again on 19 May from 06:00 (after the clouds have dissipated) to 24:00 UTC. The depolarization shows a maximum of around 19% for 18 May and 25% for 19 May. The Lidar observations of the Eyjafjalla's ash cloud mostly agree in time and relative intensity with the FLEXPART simulations. Nevertheless the altitude of the FLEXPART simulation is shifted by around 500 m towards higher altitudes compared to the Lidar observations. On 19 May, the maximum intensity of both Lidar observations and FLEXPART simulation is shown around 08:00. Moreover, the simulated cloud was dissipated when the intensity of the Lidar observation began to decrease (around 13:00) but the presence of less concentrated volcanic ash after this dissipation is not shown in FLEXPART.

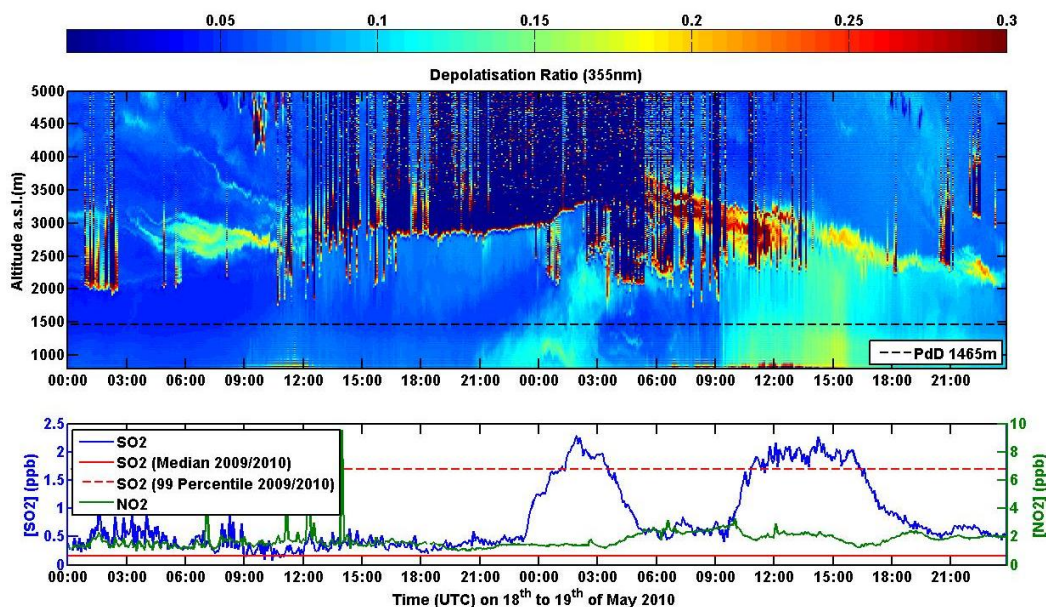


Figure 5-2 : Top panel: time series of volume depolarization ratio derived from the Lidar data. The black dashed line represents the height of the Puy de Dôme measurement station (1465m a.s.l.). Bottom: SO2 and NO2 concentrations at PdD for the same period. The red dash line indicates the 99-percentile of SO2 concentrations observed in 2009 and 2010 and the continuous red line the median.

The Lidar observations also revealed twice the presence of non-spherical particles in the boundary layer. The first observation occurred between 23:30 UTC on 18 May and 04:00 UTC on 19 May, and the second between 9:45 UTC and 22:00 UTC on 19 May. While FLEXPART simulated a nearly instantaneous mixing process in the PBL at 09:00 on 18 May, the non-spherical particle layer was bounded at an upper altitude of 1250 m. a.s.l. at 23:30 UTC, which increases gradually with time to reach 2500 m a.s.l. at 04:00 on 19 May. On the contrary, a perfect agreement was reached between simulations and observations for the cloud on 19 May with the maximum intensity of the cloud found between 15:00 and 16:00 UTC.

5.4.1.3 *In-situ measurements at PdD.*

The PdD site is located about 11 km to the west of the Lidar site, which could explain small differences in the timing and intensity of ash events at the two sites and higher topography makes the model simulation more difficult.

Figure 5-2b shows that SO₂ concentrations significantly increased on 18 and 19 May, reaching 2.2 ppb from 23:45 UTC on 18 May to 5:20 UTC on 19 May, and from 9:50 to 18:00 UTC on 19 May. This is above the 99th percentile calculated over the last 2 years (1.69 ppb). The enhancement of SO₂ concentration coincides exactly with the Lidar detection of depolarizing particles detected in the PBL. NO₂, NO, CO and O₃ concentrations did not show simultaneous variations, suggesting that the SO₂ did not come from local anthropogenic sources. The NO₂/NO_x ratio is close to 1 (0.94 ± 0.06), indicating again that the pollution was not related to local traffic emissions, which are rich in NO (Soltic and Weilenmann, 2003).

Moreover, the SO₄²⁻ concentration collected on the Teflon filter from 18-19 May, 1.83 µg.m⁻³, is six times higher than the median annual concentration (0.32 µg.m⁻³) and above the 90th percentile (1.73 µg.m⁻³). The volcanic SO₂ was transported jointly with the non-spherical particles (Figure 5-2.b) like suggest by (Thomas and Prata, 2011). The presence of ash particles was confirmed by two independent devices: the TEOM instrument showed an increase of the mass concentration from 20 up to 65 µg.m⁻³ (Figure 5-3b) and the nephelometer light scattering measurements allowed to calculate the scattering Ångström exponent (α), which decreased from 1.9±0.1 to 0.97 (Figure 5-3a). The single scattering albedo did not vary significantly with a value of 0.97±0.01. In addition, concentrations of the total number of particles (Diameter > 10 nm) measured by the CPC 3010 increased significantly. This was related to sulphuric acid droplet nucleation events as suggested by (Schumann et al., 2011) and shown by Boulon et al. (2011a). Altogether, these data clearly indicate that volcanic ash were present in the boundary layer at the PdD station.

The total aerosol mass concentrations detected at PdD are also compared to the ash mass concentrations simulated by FLEXPART (Figure 5-3b). Time variations of measured and simulated mass concentrations show the same pattern, although simulated ash mass concentrations are on average 4.5 times lower than the observations during the volcanic

event. Two factors can explain at least partly the difference: first the background aerosol is not considered in the FLEXPART simulation. Therefore, FLEXPART is expected to show lower mass concentrations than the measurements, especially when the ash mass contributions are low. When adding the background mass concentration to the FLEXPART results as a rough estimate of the mass contributions from non-volcanic sources, the agreement is improved substantially. Secondly, FLEXPART does not simulate the formation of sulphate aerosol, which contributes to the measured aerosol mass concentration in the volcanic cloud.

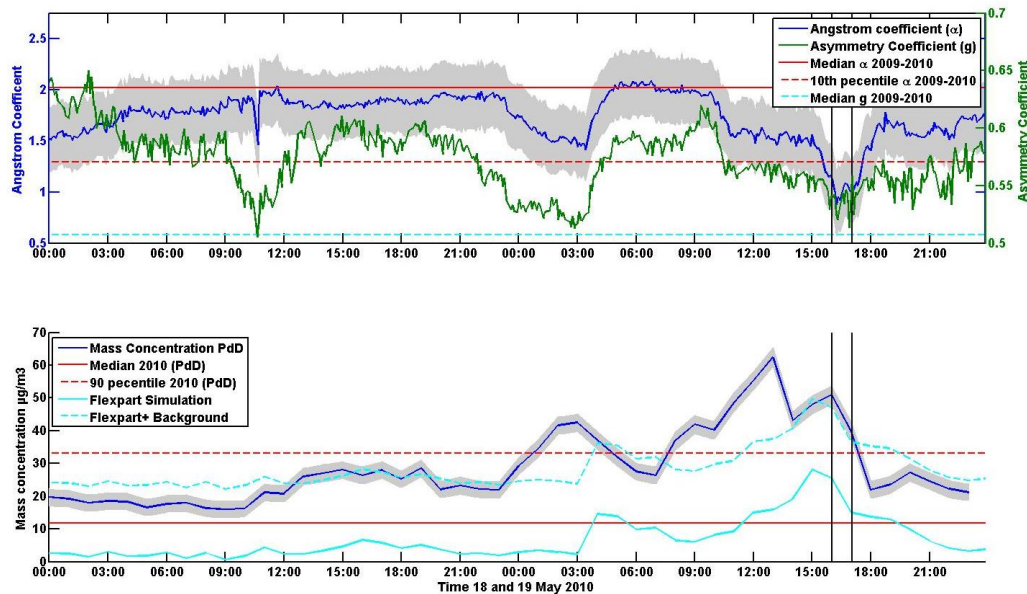


Figure 5-3: Top panel: Ångström coefficient for the 18 and 19 May. The continuous red line indicates the median observed in 2009 and 2010 and the dotted line represents the 10th percentile. Bottom panel: Mass concentration in $\mu\text{g.m}^{-3}$ measured by the TEOM in blue and simulated by FLEXPART at the Puy de Dôme height for the same date. The continuous red line indicates the median measured in 2010 and the dotted line represents the 90th percentile. The dotted cyan line represents the FLEXPART simulated mass plus the background measured before the volcanic event.

The OPC and SMPS were operating from 19 May at 12:00, the volume size distribution shown a clear maximum at $1.8\mu\text{m}$ until 15:45 with a maximum concentration of 2.15 cm^{-3} at 14:15 (Figure 5-4). It is higher than the 99th percentile (1.8 cm^{-3}) measured for this diameter in 2010 and more than 10 times larger than the median (0.2 cm^{-3}). The number size distribution measured at the PdD is centred on $2\mu\text{m}$, corresponding to the presence of volcanic ash as detected from the Lidar and other indicators such as the SO_2 concentrations. During this period, the total aerosol mass concentration derived from the size distribution (10nm to $20\mu\text{m}$), assuming an ash density of 2.6 g.cm^{-3} given by OPAC software for mineral (Hess et al., 1998), is $39.2\pm 3.7\text{ }\mu\text{g.m}^{-3}$. This is in good agreement, within the given variabilities, with the TEOM mass concentration of $52\pm 9\text{ }\mu\text{g.m}^{-3}$ reported above. These values can be compared to the $13\pm 4\text{ }\mu\text{g.m}^{-3}$ of ash simulated by FLEXPART, indicating that either the volcanic aerosol would contribute by roughly 30% of the total aerosol mass in the BL, or that the FLEXPART simulation underestimates the ash mass concentration. We may investigate the two options by considering the average aerosol mass which was measured

just before the ash plume entered the BL ($21.6 \pm 4.4 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ on 18 May). By using this value as a background concentration, we achieve a 60% contribution of the volcanic aerosol to the total mass during the plume intrusion, and a 33% underestimation of the FLEXPART ash simulations. Again, the FLEXPART underestimation can be partly explained by the fact that the model does not simulate the formation of secondary aerosols.

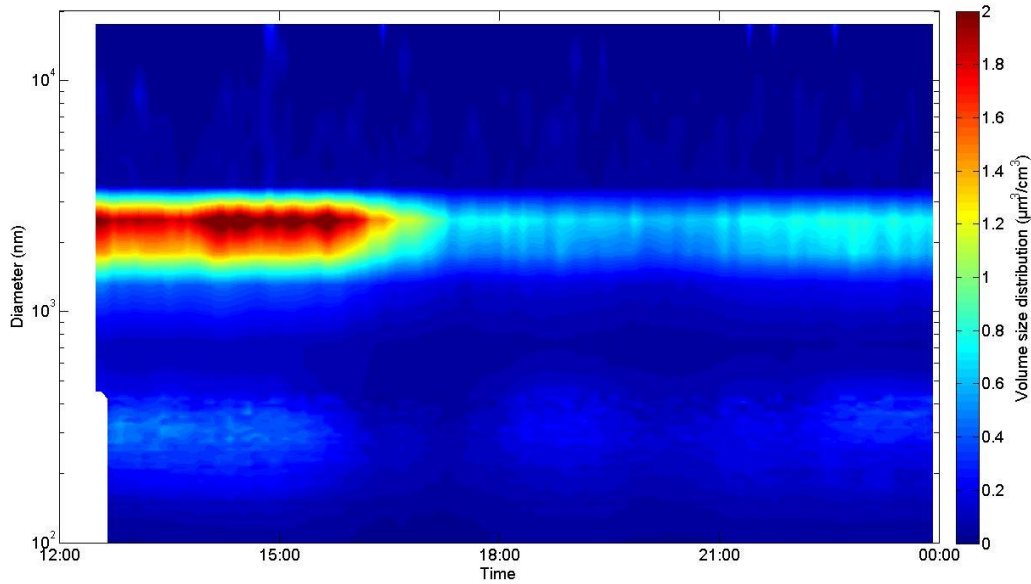


Figure 5-4: Particle volume size distribution measured by a SMPS and Grimm OPC on 19 May 2010 at the Puy de Dôme.

5.4.1.4 Mass extinction ratio calculation

Simultaneous in situ measurements of the aerosol total mass and of the aerosol optical properties are a unique chance to characterize the mass-extinction ratio (η , equation 4) usually used for retrieving the aerosol mass from Lidar observations. To our knowledge, in situ measurements are the only way to calculate η with no assumption on the density of individual particles.

Figure 5-5 shows the evolution of mass-to-extinction ratio η for 18 and 19 May. It clearly indicates a first enhancement from 0:00 to 04:00 on 19 May, and a second increase from 10:00 to 22:00 UTC with a maximum between 15:00 and 17:00 UTC on 19 May that corresponds to the volcanic measurements previously presented.

The mean η , before the presence of the volcanic eruption cloud was $0.33 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2}$ (± 0.03). It is slightly higher than the values measured by Raut and Chazette around Paris ($0.21 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2}$) (Raut and Chazette, 2009) but similar to the median calculated all over the year at PdD ($0.36 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2}$).

During the onset of the event, from 10:00 to 22:00 on 19 May, η increased to $0.61 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2}$ (± 0.31) and further to a maximum of $1.57 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2}$ during the main event. Those values have

the same order of magnitude than those inverted from the multi wavelength Lidar sounding over Maisach, Germany, during the Eyjafjalla ash observations on 17 April (1.45 g.m^{-2} ($0.9..2.3$) (Gasteiger et al., 2011). The inversion using combined photometer and Lidar data (Ansmann et al., 2011) gave a value of 1.57 g.m^{-2} for the ashes and 0.265 g.m^{-2} for the fine particles. Hence, the maximum value of the mass-to-extinction ratio measured at the PdD will be considered as representative of the volcanic particles and will be called η_{volcano} in further calculations.

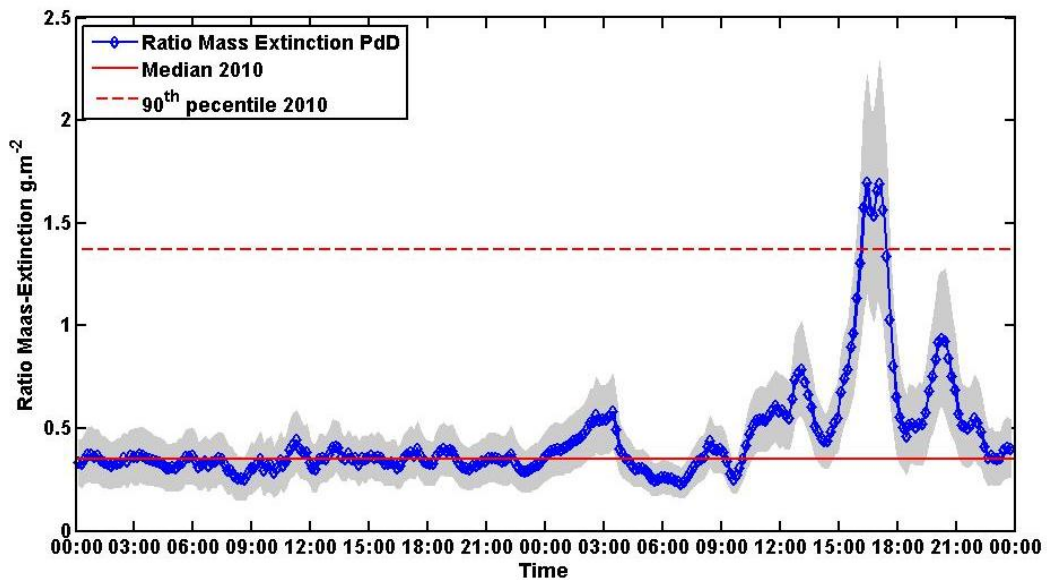


Figure 5-5: Mass extinction ratio η calculated at 355nm for the 18 to 19 May 2010. The continuous red line represents the median and the dashed red line the 90th percentile calculated using all data for the year 2010.

The large differences between η outside and inside the ash plume demonstrates that η is highly dependent on the aerosol properties and sensitive to varying mixtures between background aerosols and volcanic ash.

The η values that we calculated from in situ measurements are for dry conditions (sampling relative humidity (RH) lower than 30%). In order to apply η to the Lidar extinction measurements, we would need to know η for humid (ambient) conditions. A simplified theoretical study of the variation of η with humidity can be performed. For an aerosol population with a mean diameter of 100 nm and a hygroscopic growth factor similar to the one of ammonium sulphate (i.e. as close as possible to the characteristics of the plume as it was detected at the Jungfraujoch (Bukowiecki et al., 2011) and at Mace head (O'Dowd et al., 2011), η only increases by 30% when going from the dry state to a RH of 90%. Consequently, η calculated through the PdD dry measurements can be applied to the Lidar inversion.

We did not applied any altitude dependence on the mass-to-extinction ratio. We are aware that the in situ volcanic ashes detected at the PdD are an approximation of the ashes located at 3000m. As η depends only of the aerosol properties, we believe that it is good approximation.

If η_{volcano} had not been appropriately estimated in the volcanic ash cloud, and instead the average value of 0.33g.m^{-2} had been used, the total particle mass retrieved would have been underestimated by roughly 80%.

5.4.1.5 Mass retrievals

The retrieval of the particle mass was computed as described in Figure 5-6.

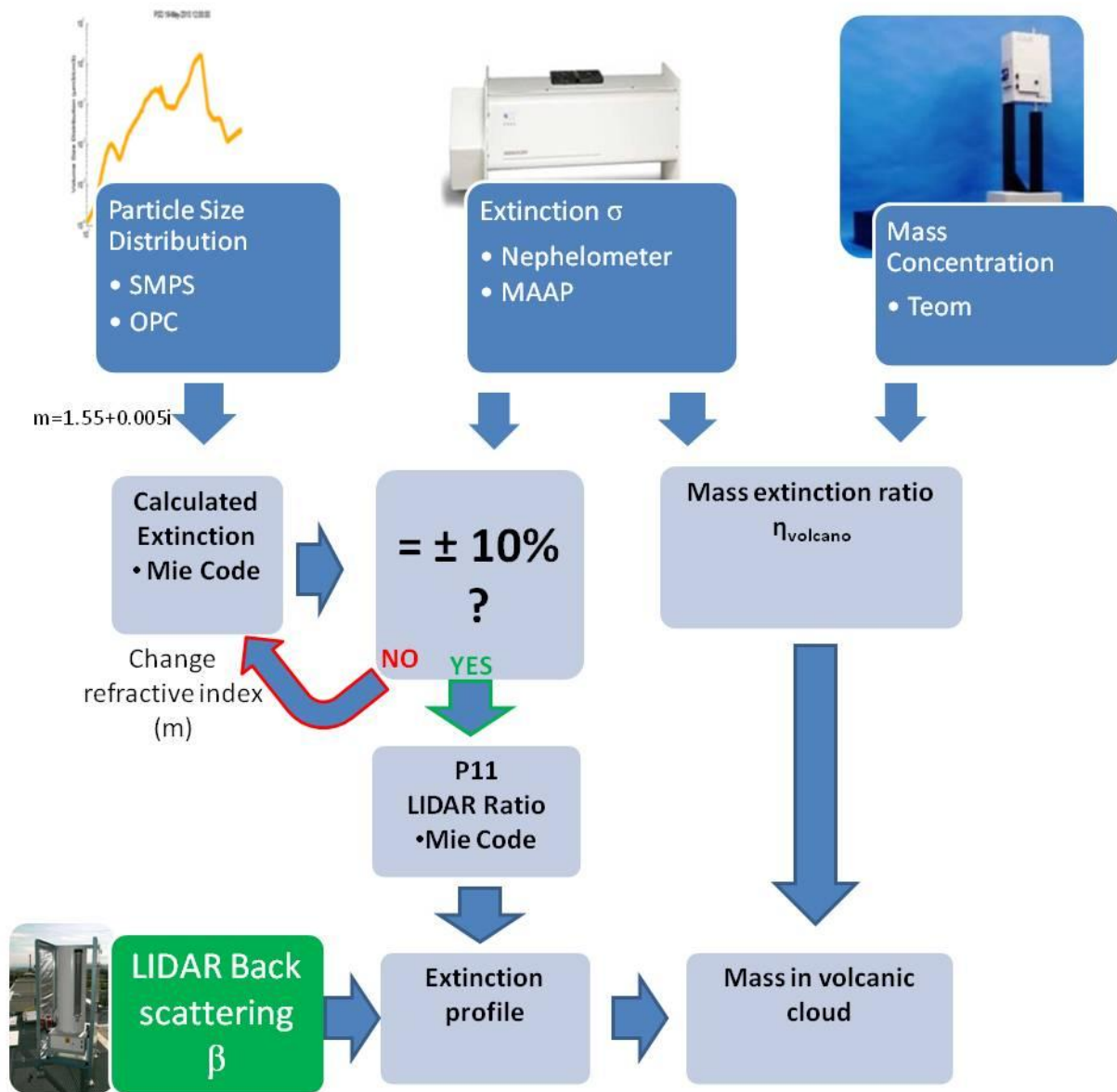


Figure 5-6: Diagram of the volcanic mass retrieval. Dark-blue squares correspond to Puy de Dôme in situ measurements during the volcanic event, green to ground-based measurements, and light blue to calculated products.

η_{volcano} can be further used for particle mass retrievals in volcanic clouds when in situ measurements are not available (typically when the ash cloud is too high for even high altitude stations to sample it, and no airborne measurements are available). Inversions of the Lidar signal to compute the extinction was conducted under clear sky conditions

following the procedure described in section 2.2. The refractive index was calculated to be $1.52+0.008i$ and the Lidar ratio $52\pm6 \text{ Sr}^1$.

For the volcanic cloud at 3000 m a.s.l., during the 19 May major event in clear sky condition from 12:00 to 16:00 UTC, the mass-to-extinction ratio for volcanic particles described in previous section was used ($\eta_{\text{volcano}} = 1.57 \text{ g.m}^{-2}$). The computed extinction was found to be $474\pm18 \text{ Mm}^{-1}$ at 3000 m a.s.l. which corresponds to an ash mass of $744\pm29 \mu\text{g.m}^{-3}$. Those values have the same order of magnitude as the mass and the extinction calculated by Ansmann and Gasteiger in Maisach, Germany, which are respectively $400\text{--}600 \text{ Mm}^{-1}$ and $\sim 1000 \mu\text{g.m}^{-3}$ (Ansmann et al., 2010; Gasteiger et al., 2011).

To validate this inversion, the Lidar value obtained at the PdD height are compared with the in situ measurement: the extinction calculated from Lidar measurements at 1465 m, between 12:00 and 16:00 UTC on 19 May is $927\pm153 \text{ Mm}^{-1}$ which correspond to a mass of $608\pm202 \mu\text{g.m}^{-3}$ with the corresponding η . It is 10 times higher than the ash mass derived from TEOM measurements for the same period of time.

The difference between in situ and Lidar measurements can mostly be explained by the hygroscopic effect on the particle light extinction. Indeed, the simulated extinction calculated for the dry Particle Size Distribution (PSD) measured with SMPS and GRIMM was $103\pm17 \text{ Mm}^{-1}$. The hygroscopic growth factor during volcanic events was found to be similar to the one of ammonium sulphate (Bukowiecki et al., 2011; O'Dowd et al., 2011; Wise et al., 2003). However pure ash particles are less hygroscopic (Lathem et al., 2011). Therefore we conducted the extinction calculation after performing a virtual hygroscopic growth of the measured PSD with a growth factor of 1.7 for the submicronic mode and 1.1 for the supermicronic. We found that the extinction of the hydrated PSD was $565\pm141 \text{ Mm}^{-1}$. Using this procedure we are able to explain 65% of the measured extinction instead of 17% for dry aerosol.

Similarly, the Lidar mass retrieval gives a much higher mass concentration than the FLEXPART simulation (Figure 5-1), $655 \mu\text{g.m}^{-3}$ compared to $176 \mu\text{g.m}^{-3}$, which can be partly explained by the difference between dry and wet mass, and partly by the likely underestimation of the volcanic aerosol mass concentration simulations (cf. 3.1.3.). Moreover in-cloud sulphate production can contribute to difference between measurement and simulation. O'Dowd et al. (2011), measured of the order of $10 \mu\text{g.m}^{-3}$ sulphate in the plume.

On the 18 May ashes were detected at 2300 to 3100m a.s.l. From 6:00 to 7:00 UTC with a Lidar extinction of $502\pm46 \text{ Mm}^{-1}$. The mass concentration retrieved was $788\pm79 \mu\text{g.m}^{-3}$. It leads to an integrated total mass of $630400 \mu\text{g.m}^{-2}$ in the plume. On the 19 May ashes were detected in the boundary layer. The mass retrieved was $608 \mu\text{g.m}^{-3}$. If we consider a boundary layer thickness of 1800m (from the ground to 2200m a.s.l.), the total mass retrieved is $1094400 \mu\text{g.m}^{-2}$. Corresponding to 57% of the mass measured previously. This

mass is coherent with the in situ measurements presented in section 3.1.3, where we show that the ashes represent roughly 60% of the total mass.

It is also consistent with the entrainment of volcanic ash into the boundary layer simulated by FLEXPART. However it is highly dependent of the heterogeneity of the ash layer and it cannot explain the mass concentration difference between Lidar and in situ measurements.

5.4.2 Case 2: 18, 19 and 22 April 2010

5.4.2.1 Flexpart Simulation

On 18 and 19 April, FLEXPART predicted an ash cloud over Clermont-Ferrand as shown in Figure 5-7 and observed with the Lidar (Figure 5-9). Figure 5-7 top panel presents the situation on 18 April simulated by FLEXPART. The ash was emitted mainly on 14-16 April, reached Central Europe on 16 April and was subsequently slowly transported to Western Europe and resided mainly over France on 18 and 19 April (Stohl et al., 2011). The bottom panel presents the time series of the simulated ash mass over Clermont-Ferrand as function of altitude and time.

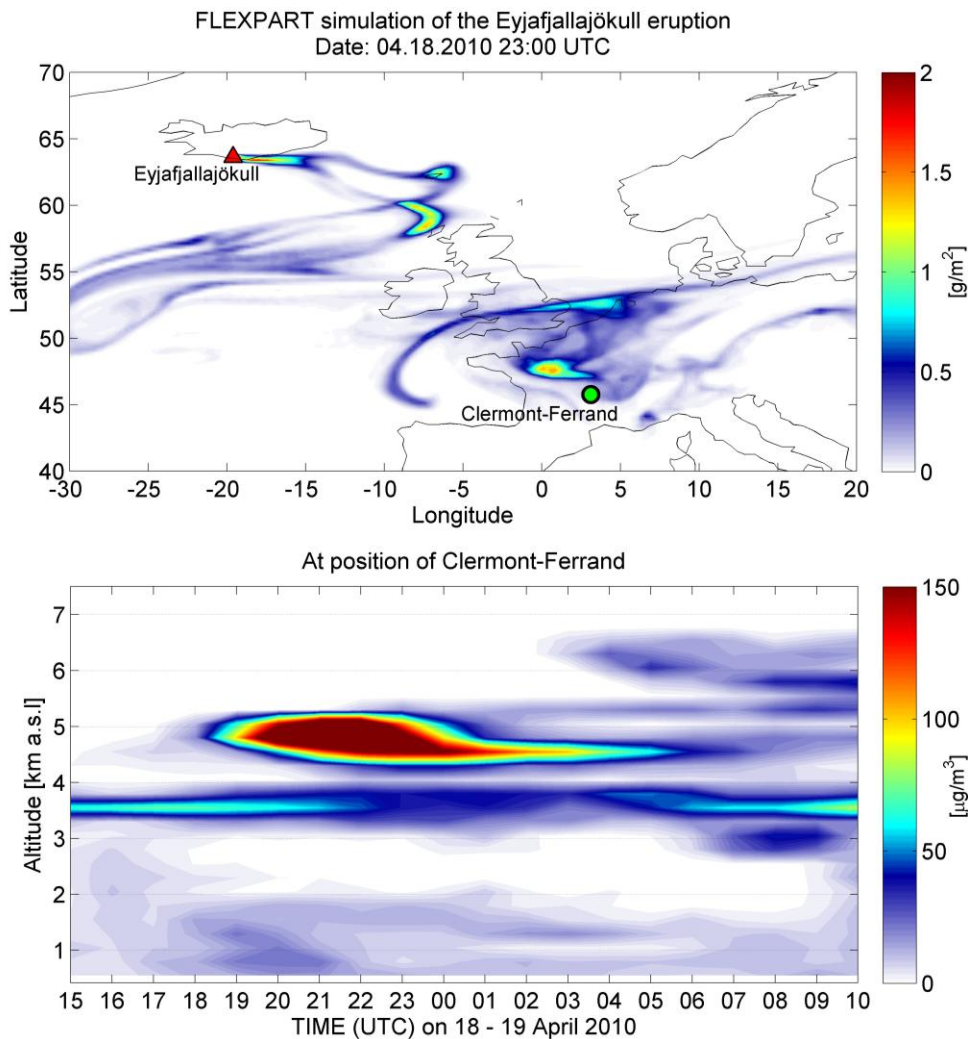


Figure 5-7 : FLEXPART simulated ash cloud. Total ash column load on 18 April 23:00 UTC (upper panel), and simulated vertical distribution of ash over Clermont-Ferrand for 18-19 April (lower panel).

Two layers at 3500 m and 4700 m a.s.l. are predicted. The 3500 m layer was simulated from 18 April at 15:00 UTC to 19 April at 09:00 UTC with mass concentrations around $50 \mu\text{g.m}^{-3}$. This layer progressively became thicker with time, from a few hundred metres until a width of around 1 km. The 4700 m layer was observed with a stronger intensity from 20:00 UTC on 18 April to 06:00 UTC on 19 April. At a maximum concentration of $247 \mu\text{g.m}^{-3}$, it was simulated with a thickness of 1 km. The simulation shows a layer of lower concentration in the planetary boundary layer with a maximum concentration of $40 \mu\text{g.m}^{-3}$.

Figure 5-8 represents the dispersion of ashes simulated by FLEXPART for 22 April. Ashes were simulated only in the PBL. The concentrations predicted are significantly lower than on 18 April with a maximum concentration of $18 \mu\text{g.m}^{-3}$ at 06:00.

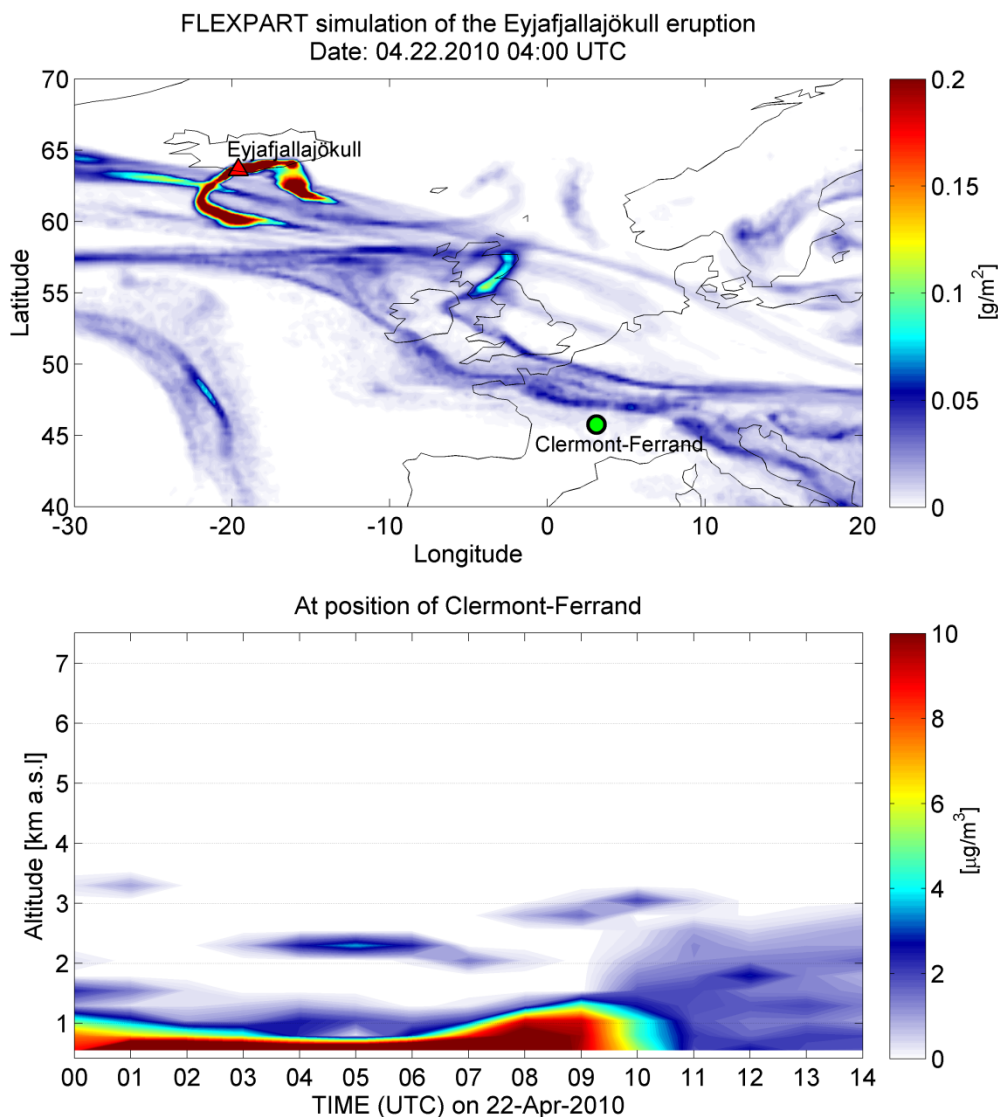


Figure 5-8: FLEXPART simulated ash cloud. Total ash column load on 22 April 04:00 UTC (upper panel), and simulated vertical distribution of ash over Clermont-Ferrand for 22 April (lower panel).

Lidar observations figure 5-9 shows the depolarization ratio time series for 18-19 April where two highly depolarizing aerosol layers, indicating non-spherical particles, were detected at 4700 m and 3000 m above sea level. The most depolarizing layer at 4700 m appears at 16:00 UTC, and was progressively dissipated in the morning of 19 April and had a maximum depolarization ratio of 17%, while the layer at 3000 m reached a maximum depolarization ratio of 16% between 5am and noon of 19 April. A low depolarizing layer observed at 1100 m is also visible.

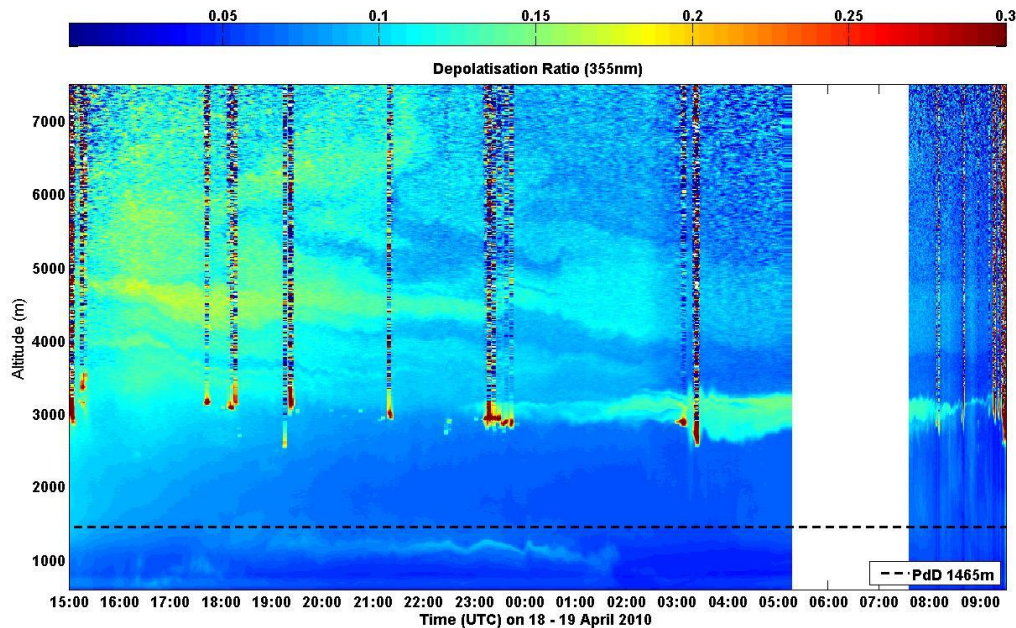


Figure 5-9 : Time series of the colour-coded volume depolarization ratio as a function of altitude for 18 to 19 April 2010. The black dotted line corresponds to the altitude of Puy de Dôme.

The FLEXPART simulation (Figure 5-7) shows high similarities with the Lidar measurements, but also some discrepancies. The layer detected at 3000 m was simulated by FLEXPART with the same thickness and time of occurrence. The appearance of the 4700 m layer is however observed about 5 hours earlier with the Lidar than simulated by FLEXPART. Still, the altitude of the layer is well simulated. The layer detected at 1000 m a.s.l. by the Lidar has also been simulated at the same time but with a greater thickness. The simulation shows that the ash particles were mixed in the planetary boundary layer by the model but the Lidar observations show a strong stratification during the night and the presence of the depolarizing particles at a well delimited altitude. In-situ measurements at the PdD station did not show any strong signal that could indicate that the cloud entered the PBL, in agreement with the Lidar observations, and contrarily to the FLEXPART simulation. Some of the discrepancy between observations and simulation can be explained partly by the complex transport of the ash cloud. The ash was emitted 3-5 days earlier and transported slowly to Western Europe where it resided over France for a few days. This complicated and long-range transport of the emissions makes it difficult for the model to accurately simulate the ash distribution and can explain the 5 hour time delay as well as the ash layer in the PBL

not in accordance with the observations. In comparison, for the May event previously shown, the ash transport was quicker and more directly towards the observation sites. This demonstrates the uncertainties in the model simulations, which increase with time during the ash transport from its source.

The Lidar depolarization ratio on 22 April in the early morning highlights the presence of altocumulus clouds between 4000 m and 7500 m (Figure 5-10). After dissipation of the clouds at 06:30 UTC, a depolarizing signature was still present, at 5500 m and 4000 m, probably ash from the Eyjafjalla eruption. However FLEXPART does not show any ash at this altitude hence, they might be other non-spherical particles such as dust particles transported during this period from Asian deserts (Uno et al., 2011).

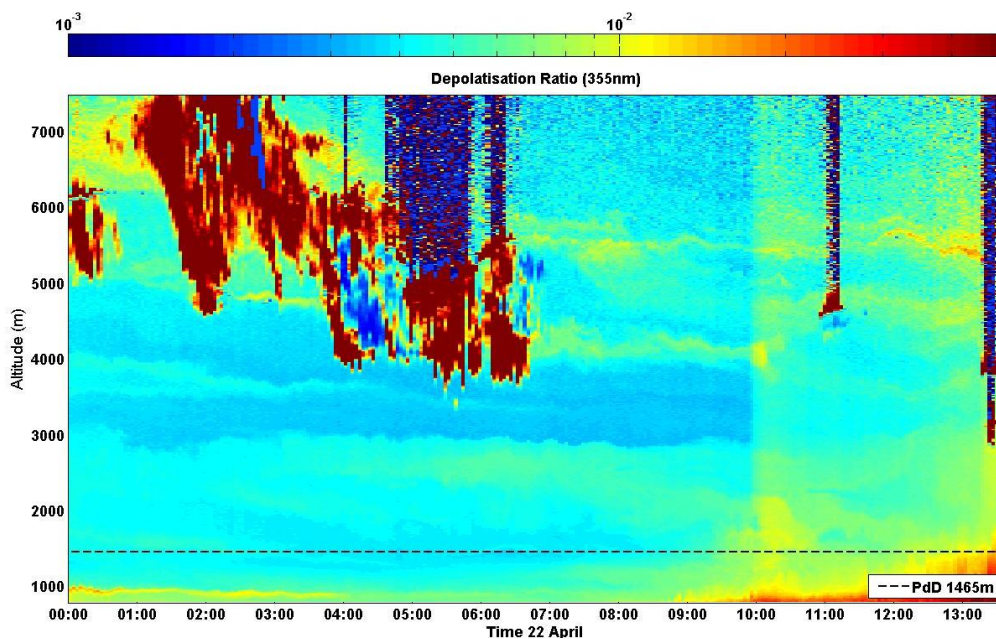


Figure 5-10: Lidar volume depolarisation ratio on 22 April 00:00 to 13:30 UTC.

At the top of the nocturnal boundary layer at 1000 m, another ash layer was present from midnight to 04:00 UTC. At 09:00, non-spherical particles rose in the convective boundary layer and progressively reached 3000 m. These non-spherical particles show a depolarization ratio which is lower (7%) than the one measured directly in the ash cloud on 18 and 19 April (16%). However, their presence corroborate the FLEXPART results showing ash traces in the PBL, and a low depolarization ratio might just indicate that ash particles are highly diluted and mixed with other background aerosol particles in the BL .

5.4.2.2 Aircraft and ground-based measurements

Four scientific flights were performed over France between 19 and 22 April mainly over Paris and Toulouse. On 22 April, the ATR-42 flew between Rouen and Toulouse. Only during this flight, the ATR-42 passed over Clermont-Ferrand between 700 m and 1700 m, measuring in situ particle size distributions. The aircraft trajectory is presented in Figure 5-11, with boundary layer measurement periods highlighted in red.

The FSSP 300 number size distribution measurements obtained along the flight track on 22 April are presented in Figure 5-12a as a function of time. High particle concentrations both in the submicronic (~ 100 nm) and in the supermicronic (~ 2 μ m) modes are detected in the planetary boundary layer (PBL). While this is expected for the submicronic particles, coarse particles around 2 μ m are not usually found in the PBL to that extent (1 cm^{-3}). This unusual mode was also measured during the previous flights performed over France and is suspected to be volcanic ash externally mixed in the PBL with pollution or sulphate particles formed from volcanic SO_2 , as also shown by the FLEXPART simulation at that time (Figure 5-8). Figure 5-12b shows the mean aerosol number size distributions measured in the PBL over Clermont-Ferrand by PCASP (blue curve) and FSSP 300 (green curve) probes and by the OPC at the PdD station (red curve). FSSP and OPC measurements highlight the coarse mode mentioned above. Unlike on 18 and 19 April, a coarse mode aerosol was detected by OPC measurements at the PdD during the period from 20-22 April, when the volcanic ash had descended into the PBL.

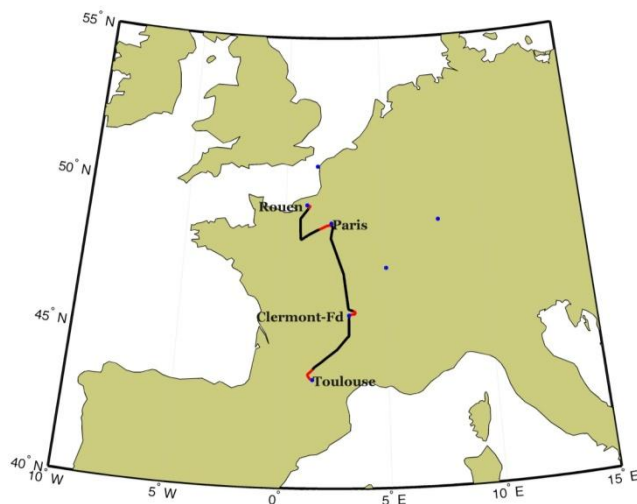


Figure 5-11 - ATR-42 trajectory on 22 April. Boundary layer measurement periods are highlighted in red.

The volume size distribution measurements at the OPC 2.5 μ m channel (Figure 5-13) give a concentration of 0.8 cm^{-3} at 11:30 UTC on 22 April, when the airplane was over Clermont-Ferrand. This concentration exceeds the 90th percentile measured at the station in the year 2010 (0.68 cm^{-3}) and is substantially higher than the annual median (0.19 cm^{-3}). This 2 μ m mode was observed from 20 April to 22 April, with still concentrations substantially higher than the annual median but lower than concentrations observed during the main volcanic events on 19 May (Figure 5-4).

However the effective diameter is 280 ± 20 nm from 18 to 22 April. It suggests that the volume size distribution is not dominated by the ashes but by the accumulation mode centred on 350nm. Correspondingly, as already mentioned, the Lidar measured rather low depolarization ratio (7%) on 22 April, compared to the ratio detected in the ash clouds on 18 and 19 April (16%). This indicates that the ash concentrations were substantially lower on 22 April than on 18 and 19 April. It appears that volcanic ash transported to Europe at rather

high altitudes subsided and eventually reached the PBL where it mixed with particles already present. During the four flights performed over France from 19 to 22 April, this coarse mode was always measured in the PBL but never in the FT.

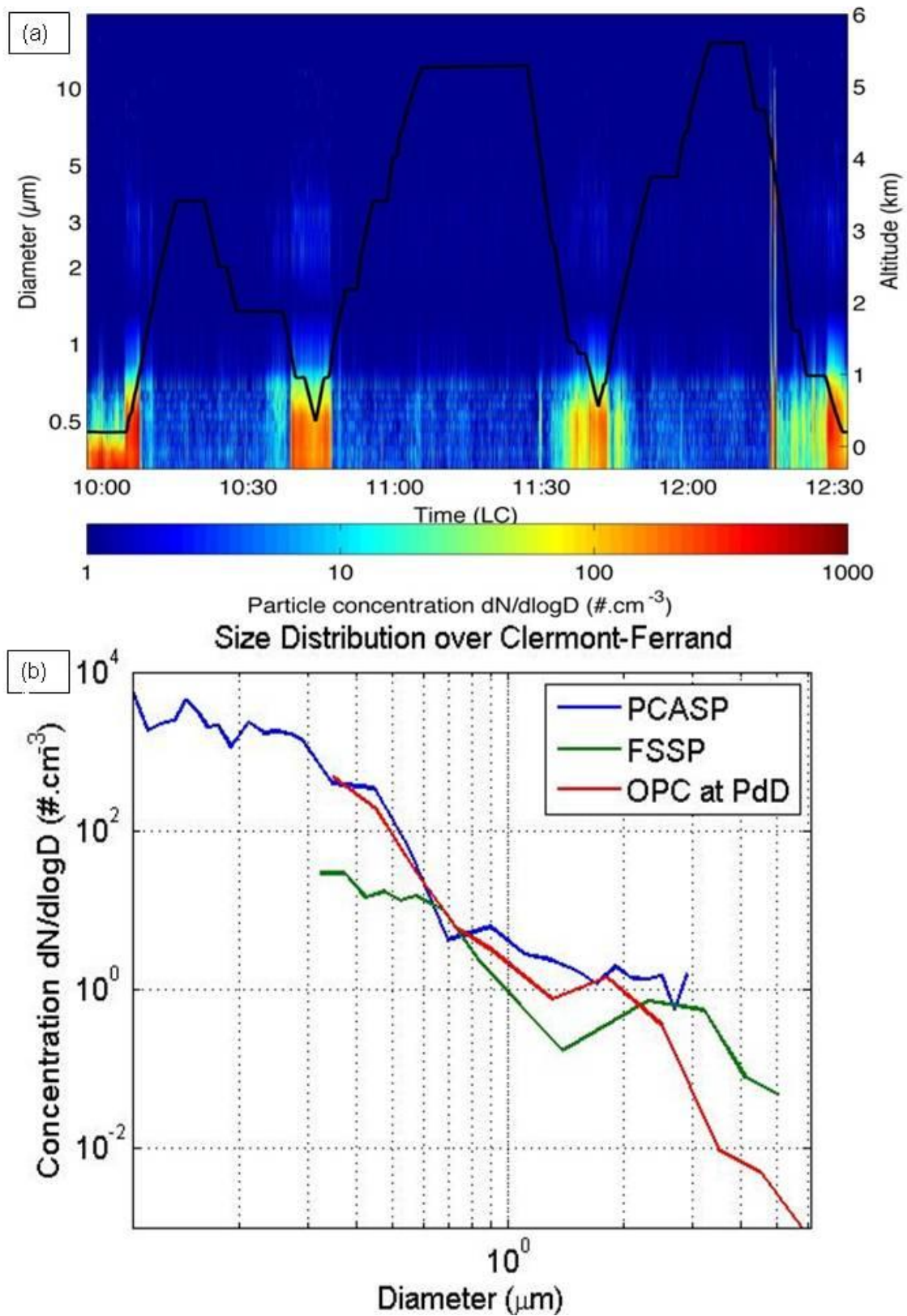


Figure 5-12: Aircraft measurements on 22 April. Panel (a) presents the FSSP aerosol size distributions as a function of time. Particle number concentrations are colour-coded and the flight altitude is added in

black. Plot (b) shows the mean aerosol size distributions in the PBL of Clermont-Ferrand measured during the overpass by the PCASP (in blue) and the FSSP (in green) and the ground-based OPC (in red).

The effective diameter calculated from FSSP airborne measurements is $0.6 \mu\text{m}$. This is consistent with the airborne measurements in the Eyjafjalla cloud by the German DLR aircraft, which observed an effective diameter between 0.2 and $3 \mu\text{m}$ (Schumann et al., 2011). This can be explained by the preferential removal of larger particles by gravitational settling. The ash cloud sampled on 22 April was particularly aged and mixed with ambient aerosol, thus, a small effective diameter is expected. Airborne PSD measurements lead to a mass of $21 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ with the OPAC density for transported mineral of $2.6 \text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ (Hess et al., 1998). This might be an underestimation as the smallest measured particle size was $0.1 \mu\text{m}$.

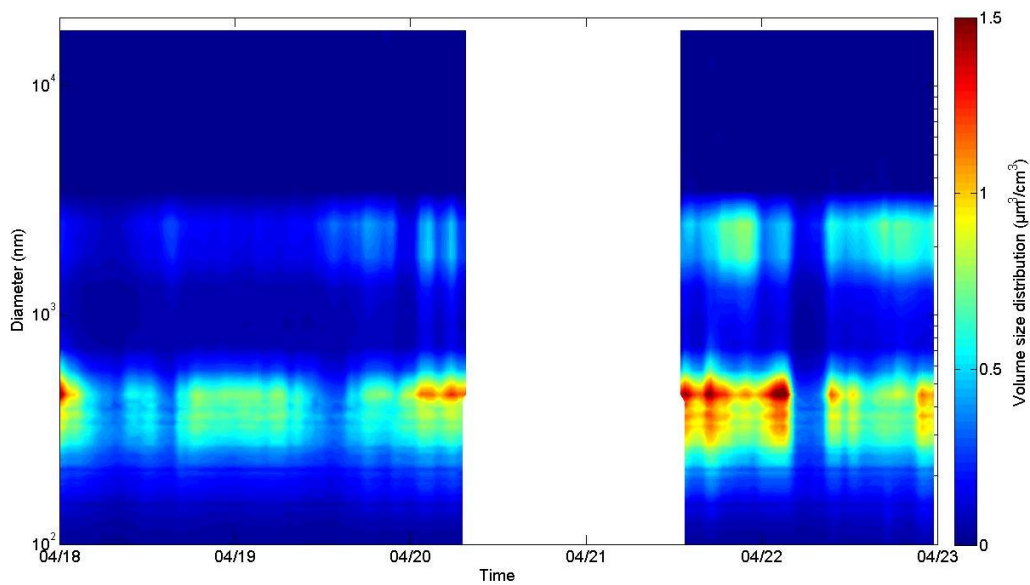


Figure 5-13: Particle volume size distribution measured by a SMPS and Grimm OPC on 18-22 April 2010 at the Puy de Dôme.

The simultaneous in situ measurements at PdD, give a particle size distribution centred at $2.5 \mu\text{m}$ with a mass concentration measured by the TEOM of $40 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ on 22 April at 11h30. Flentje et al (2010) observed similar enhancement in Germany. The mass concentration did not show an important variation on 22 April, when the volcanic plume was observed, and thus does not allow us to calculate the fraction of volcanic ashes. The mean scattering Ångström exponent (α) on 22 April was 1.99 ± 0.09 . Thus the scattering was not dominated by the ash but by smaller particles. Consequently the calculated mass-to-extinction ratio η was low compared to η_{volcano} : $0.21 \pm 0.06 \text{g}\cdot\text{m}^{-2}$ instead of $1.42 \text{g}\cdot\text{m}^{-2}$.

5.4.2.3 Mass retrievals

The mass retrieval in the volcanic cloud on 19 April, from Lidar measurements (as described in section 5.4.1.5) lead to a mean extinction of $369 \pm 38 \text{Mm}^{-1}$ and a mass of $579 \pm 60 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ at 3000 m a.s.l from 03:30 to 05:00 UTC.

Miffre et al., through a slightly different Lidar inversion retrieved an extinction of $187 \pm 34 \text{ Mm}^{-1}$ and a mass concentration of $270 \pm 70 \mu\text{g.m}^{-3}$ on 17 April over Lyon, 140 km east from Clermont-Ferrand (Miffre et al., 2011). On 19 April the mass concentration inverted was around $100 \mu\text{g.m}^{-3}$ at 5000m. The difference between the mass concentration calculated by Miffre et al.; and the one found in this study is mainly induced by a different Lidar backscatter measured: the Lidar ratio and the mass-to-extinction ratio are nearly equal (55 against 52 Sr^{-1} and 1.44 against 1.57 g.m^{-2}). This backscatter difference might be simply due to the inhomogeneity of the volcanic plume. On 22 April at 12:00, the extinction was $275 \pm 56 \text{ Mm}^{-1}$ at the height of PdD. The volcanic mass-to-extinction ratio η_{volcano} cannot be applied in this case since ash was very diluted in the PBL. Moreover, both the low depolarization ratio, effective diameter and the high scattering Ångström exponent confirm the hypothesis that non-volcanic particles were dominant. Thus we used the mass-to-extinction ratio calculated at the same time. The mass retrieved is $54 \pm 9 \mu\text{g.m}^{-3}$. It is slightly higher than the in situ measurements and can be explained by the hygroscopic growth of the particles.

FLEXPART concentrations are still lower than the mass derived from Lidar measurements and can be explained by both the presence of non-volcanic aerosols and by the fact that FLEXPART does not simulate hygroscopic growth of the particles and formation of secondary aerosols. Moreover the observations of the ash cloud over Germany from the 17 to 22 April highlight the fact that volcanic particles contributed, on average, only 30.2% of the total mass concentration (Pitz et al., 2011).

5.5 Conclusions

This paper presents in situ and ground-based remote-sensing measurements of the Eyjafjallajökull volcanic aerosol cloud in the free troposphere (FT) and Planetary Boundary Layer (PBL) over Clermont-Ferrand.

The highly depolarizing signature (indicating non-spherical particles) of volcanic ash was detected by Lidar on 18 and 19 May at 3000 m, and on 18, 19 and 22 April 2010, between 3000 and 4700 m. The presence of ash simulated by FLEXPART agreed well with the observations, with small differences between simulated and observed altitudes of the ash cloud (shifted upward by 500 m in the model during the May event) or in the timing of the cloud arrival (shifted by 5 hours in the model).

On both the May and April events, the ash cloud ended to enter the PBL, as shown both by the Lidar measurements and the FLEXPART simulation. Consequently, the ash could be observed with a suite of in situ measurement instruments at the Puy de Dôme (PdD 1465m) station, which allowed us to characterise the microphysical and optical properties of the particles. In the ash clouds high SO_2 concentrations were observed, which were not correlated with NO_2 concentrations, thus confirming the volcanic origin of the air mass. The

ground-based measurements showed that ash particles had a supermicronic mode around 2 μm , also detected at this size by airborne measurement during the April event.

During the May event, the concentration of particles with a diameter larger than 10 nm detected at the Puy de Dôme was up to 24000 cm^{-3} , and the mass concentration reached $65\text{ }\mu\text{g.m}^{-3}$. Volcanic particles are estimated to contribute around 60 % of this mass during May. During the April event, the volcanic plume was too diluted to calculate the ash contribution. Comparison with the volcanic particle mass simulated with FLEXPART shows that the model underestimates the volcanic aerosol contribution by 33% in May. It can be partly explained by the formation of secondary particles not taken into account in the model.

Because the May event appeared to be much more impacted by ash particles when they entered the PBL, we used this data set to characterize the optical parameters of the ash. Dry extinction was up to 200 Mm^{-1} . The minimum of the Ångström coefficient (0.97) is indicative of coarse mode particles. The constant single scattering albedo of 0.97 does not suggest the ash to be strongly absorbing. Moreover, when the ash concentration appears the most concentrated, we calculate for the first time an in situ volcanic mass to extinction ratio η .

This ratio was then used for mass concentration inversion of volcanic ash with Lidar measurements. We found a mass concentration of $655\pm 23\text{ }\mu\text{g.m}^{-3}$ in May and $523\pm 54\text{ }\mu\text{g.m}^{-3}$ in April, which is clearly higher than the in situ mass concentrations. The discrepancy could be explained for 65% by the hygroscopic growth of the particles as seen by the Lidar, while the mass detected in situ is a dry mass.

Mass concentrations retrieved from the Lidar are also higher than the FLEXPART simulation and can be partly explained, again, by the hygroscopic growth of the particles and the formation of secondary aerosols, not taken into account in the simulation, and partly by the slight underestimation of the volcanic aerosol particle mass from the model simulations.

This work has shown that the time scale and localisation of simulated ash clouds agree relatively well with both remote sensing and in situ observations (ground-based and airborne), although simulations might be slightly underestimating the ash concentrations by 33%. The coinciding remote sensing and ground-based measurements will allow for a better ash particle mass retrieval from Lidar soundings in the future, although some discrepancies still exist between in situ and remote sensing retrievals. At last, this study highlights the importance of taking into account the impact of given aerosol types hygroscopicity on light scattering, and also the need of a climatology of mass-to-extinction ratio to retrieve the aerosol mass from Lidar measurements.

Acknowledgements: The authors would like to acknowledge the OPGC and its staff for their efforts in establishing and maintaining the PdD measurement site and the SAFIRE team for their support in collecting airborne measurements.

Chapitre 6 : Impact de l'hygroscopicité sur les propriétés optiques et radiatives de l'aérosol.

Comme dans la majorité des études sur les aérosols, les propriétés optiques décrites dans les chapitres précédents sont obtenues dans des conditions sèches (pour une humidité relative faible <40%). Or, les aérosols sont généralement présents dans l'atmosphère à l'état humide. Dans ce chapitre, nous nous intéresserons à l'impact de l'humidité sur les propriétés optiques de l'aérosol. Cela permettra de mieux quantifier l'impact radiatif direct, mais aussi de mieux restituer les profils d'aérosols avec le Lidar.

Ce chapitre utilise les mesures et les algorithmes développés dans les chapitres précédents. A l'aide des mesures réalisées avec le HTDMA et d'un code de Mie, cet impact est quantifié. La méthode mise en place est tout d'abord validée en comparant le facteur d'accroissement de diffusion calculé aux mesures réalisées avec le néphélomètre à humidité contrôlée.

Ensuite l'impact de l'hygroscopicité sera présenté, sur le coefficient de diffusion, le facteur d'asymétrie, l'albedo de simple diffusion. Ces propriétés seront utilisées pour en déduire la dépendance de l'efficacité radiative avec l'hygroscopicité. La même démarche sera utilisée pour le forçage radiatif. Enfin, les variations du rapport Lidar en fonction de l'humidité seront paramétrées pour chaque masse d'air.

6.1 Facteur de croissance hygroscopique (GF)

Le facteur de croissance hygroscopique des aérosols est mesuré par un HTDMA, précédemment décrit chapitre 3. A l'instar des propriétés optiques intensives telles que l'albedo de simple diffusion, la croissance hygroscopique ne dépend pas de la concentration en aérosols, mais seulement, pour une taille donnée comme cela est présenté ici, de la composition chimique de l'aérosol. La Figure 6-1 représente les variations du GF d'un aérosol de 110 nm, mesurées de 2008 à 2012 au Puy de Dôme:

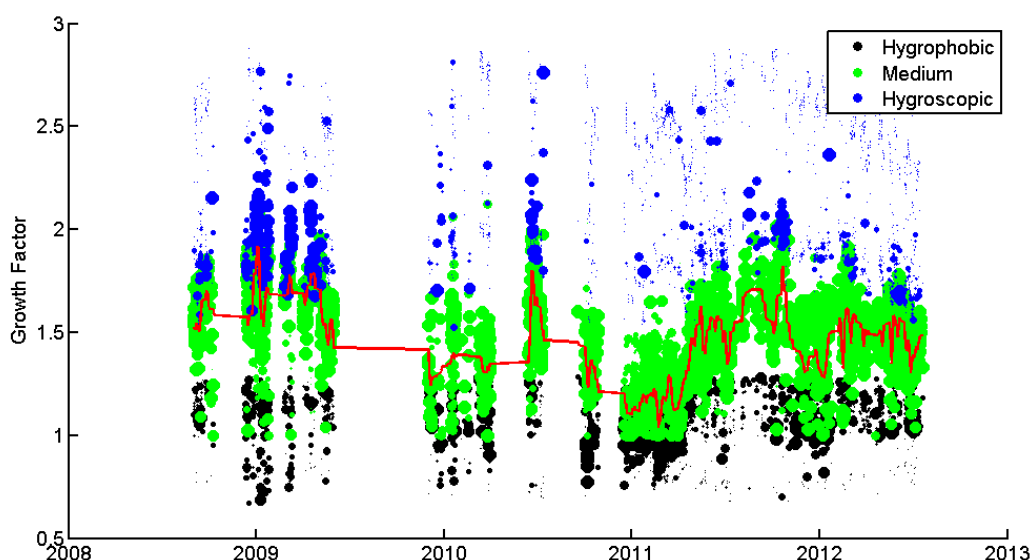


Figure 6-1: Facteurs de croissance Hygroscopiques à 110nm mesurés au PdD par de HTDMA de 2008 à 2012. Trois modes sont représentés: hydrophobes (en noir), moyens (vert) et hygroscopique (bleu). La ligne rouge représente le GF moyen.

Le GF de l'aérosol ne montre pas des variations saisonnières stables d'une année sur l'autre, peut être en raison du caractère sporadique des mesures avant 2011. Néanmoins, lors des cinq années de mesure hygroscopiques, l'augmentation de GF en été est observée 2 années sur 4. Pour l'hiver 2008-2009, l'hygroscopicité était particulièrement élevée en hiver.

D'après les mesures sur la composition chimique au PdD (Bourcier et al., 2012; Freney et al., 2011), la fraction en masse de BC est minime (moins de 5%). En revanche, un mode hydrophobe est souvent présent sur les mesures du HTDMA, avec une fraction supérieure à 5%. La fraction d'organiques qui pourrait déterminer la quantité d'aérosols hydrophobes varie de 23% (Freney et al., 2011) à 48% (Bourcier et al., 2012) l'hiver. L'été, la fraction d'aérosols organiques est, dans les deux études, proche de 55%. Elle semble donc assez variable seulement l'hiver, pouvant expliquer la non-reproductibilité de la variation saisonnière du GF.

Les facteurs moyens de croissance hygroscopique sont classés en fonction des masses d'air dans le Tableau 6-1 sur la période 2010-2011. Nous avons choisi de nous concentrer sur la période 2010-2011, puisque ce sont pour ces années que nous calculons l'impact de l'hygroscopicité sur les propriétés optiques.

	GF1	frac1	GF2	frac2	GF3	frac3	GF Moyen
African	 1,07	 0,25	 1,39	 0,72	 2,25	 0,03	 1,34
Oceanic	 1,06	 0,24	 1,45	 0,74	 2,25	 0,02	 1,37
Oceanic Mod	 1,1	 0,2	 1,5	 0,71	 2,25	 0,09	 1,49
Continental	 1,11	 0,17	 1,41	 0,81	 2,21	 0,01	 1,35
Local	 1,07	 0,14	 1,39	 0,84	 2,16	 0,02	 1,36
All	 1,08	 0,21	 1,42	 0,76	 2,23	 0,03	 1,37

Tableau 6-1: Facteur moyen de croissance hygroscopique de chaque mode hygroscopique et la fraction correspondante en fonction de l'origine des masses d'air. GF1 correspond au mode hydrophobe, GF2 au mode moyennement hygroscopique et GF3 au mode fortement hygroscopique. GF moyen est la somme des 3 modes multipliées par leur fraction respective.

La variabilité en fonction des masses d'air est fortement marquée. Le GF est le plus élevé pour les particules d'origine océanique modifiée. C'est la seule masse d'air qui possède une fraction importante (~10%) d'aérosols très hygroscopiques (GF3=2.25). Ce mode correspond à des sels de mers (GF_{NaCl}=2.35 à RH=90%). De plus le mode moyennement hygroscopique est aussi le plus élevé (GF2=1.5). D'après Bourcier et al. (2012), les masses d'air océaniques modifiées présentent à la fois une forte proportion de composés inorganiques anthropiques et des sels marins, expliquant la forte hygroscopicité de ces aérosols. De nombreuses études mesurant l'hygroscopicité ont été publiées, en particulier en Europe et aux USA. Swietlicki et al. (2008) ont réalisés une revue des facteurs de croissance hygroscopique mesurés à travers le monde. La variabilité est forte en fonction des sites des mesures. Pour les particules marines, ils notent la présence d'un mode très fortement hygroscopique (GF>1.85) mais avec un court temps de vie. Ce mode est observé au PdD mais toujours en combinaison avec des particules moins hygroscopiques, ce qui explique le GF légèrement inférieur à celui du NaCl.

Les aérosols provenant de masses d'air océaniques sont ceux avec la deuxième valeur de GF la plus élevée (GF=1.37). La présence de sels marins est peu marquée (la fraction du mode très hygroscopique est de 3%). Michaud (2009) souligne que la majorité des sels de mers se situent dans le mode supermicronique qui n'est pas échantillonné par le HTDMA. Le sel marin provenant des masses d'air océaniques aurait donc un diamètre plus important que ceux provenant des masses d'air marines modifiées, il ne pourrait donc pas être échantillonné. Asmi et al. (2012) observent également, par la mesure des propriétés CCN, que les masses d'air marines au PdD ne sont pas les plus hygroscopiques.

Viennent ensuite les particules d'origines locales. Elles présentent à la fois un mode hydrophobe important (GF1=1.07), probablement des aérosols anthropiques fraîchement émis, et un mode moyennement hygroscopique (GF1=1.39), correspondant à des particules plus âgées. Les masses d'air continentales présentent le même type de profil, avec un mode moyennement hygrophile et un mode hydrophobe. Toutefois, les facteurs de croissance continentaux sont plus importants que les locaux, indiquant le vieillissement des particules traduit par l'augmentation de l'hygroscopicité des particules hydrophobes.

Les particules les moins hygroscopiques sont celles d'origine africaine. La proportion importante de particules désertiques retrouvée par Bourcier et al. (2012) est cohérente avec cette faible hygroscopicité.

6.2 Facteur d'accroissement diffusion, $f\sigma_{sca}$

6.2.1 Fermeture sur le calcul de $f\sigma_{sca}$

Le facteur d'accroissement optique de la diffusion est calculé à partir des distributions granulométriques (SMPS et OPC), du facteur de croissance hygroscopique (GF) auxquels l'on applique un calcul de Mie (3.3.3). Ce facteur d'accroissement de la diffusion $f\sigma_{sca}$ peut être comparé à celui mesuré directement à l'aide d'un néphélomètre à humidité contrôlée. Ce néphélomètre est décrit au paragraphe 3.1.3.3, et a été mis en place au Puy de Dôme durant la campagne intensive de Juin 2011. La Figure 6-2 représente la comparaison réalisée sur des mesures réalisées du 24 au 26 Juin 2011.

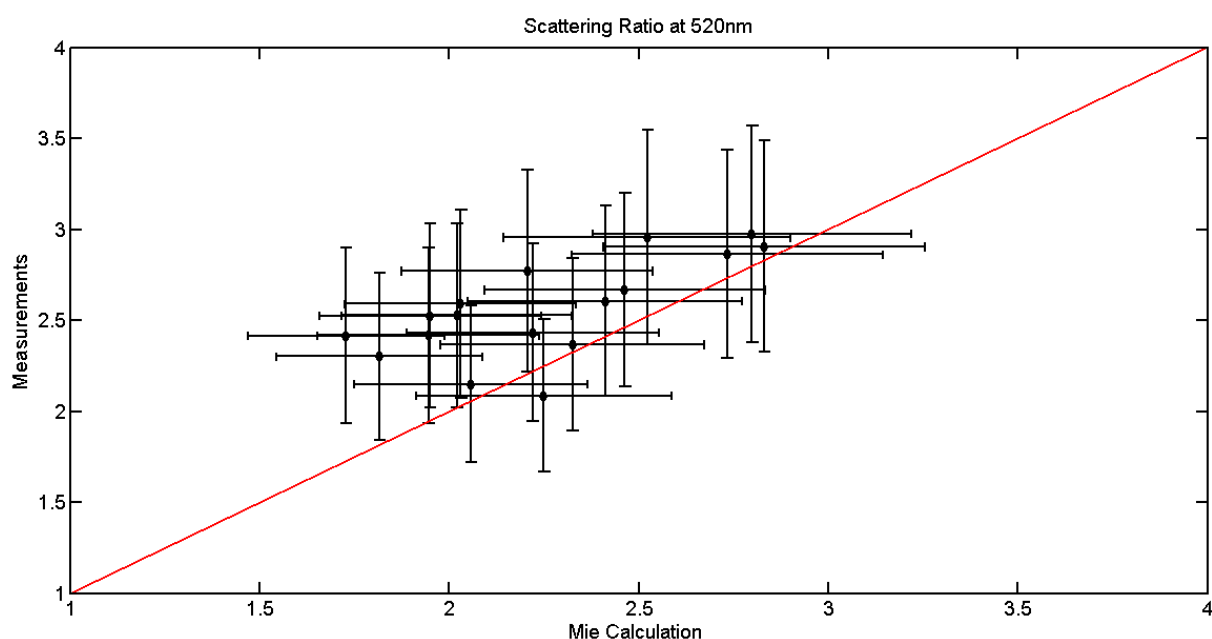


Figure 6-2: Facteur d'accroissement optique à 520 nm mesuré par les néphélomètres en fonction de celui calculé par notre méthode. La ligne rouge représente droite 1:1.

L'incertitude calculée pour $f\sigma_{sca}$ est décrite au paragraphe 3.6.2. La troncature des deux instruments a été simulée suivant les formules données par Müller et al. (2011). L'incertitude sur les $f\sigma_{sca}$ mesurés n'est pas connue exactement. En première approximation, elle est prise comme la somme de l'incertitude relative sur le néphélomètre TSI à 520nm (9%, équation 3.15) et celle sur le néphélomètre Aurora 1000, 5% (Müller et al., 2011). On considère donc que l'humidité à l'intérieur de l'instrument est homogène et parfaitement connue. Or, il existe deux points de mesure d'humidité dans l'instrument développé par le LGGE. Le premier capteur est situé à l'intérieur de la cellule de mesure de la diffusion et l'autre en sortie de l'instrument. L'humidité mesurée en sortie est en moyenne 10% plus

élevée. La variabilité de l'humidité à l'intérieur de la cellule et donc l'incertitude sur $f\sigma_{sca}$ mesuré sont probablement sous estimées.

La Figure 6-2 indique une corrélation entre mesures et calcul ($r^2=0.6$), même si les valeurs du facteur d'accroissement hygroscopique mesurées sont légèrement supérieures aux valeurs du facteur d'accroissement calculé à partir de Mie. Cet écart est vraisemblablement provoqué par la sous estimation de l'humidité à l'intérieur de la cellule de mesure. Néanmoins, cette étude confirme la validité de notre méthode. D'autres études récentes confirment la fiabilité du calcul de $f\sigma_{sca}$ si lorsque la distribution en taille de l'aérosol et son hygroscopicité sont connus. (Eichler et al., 2008; Fierz-Schmidhauser et al., 2010a, 2010b; Michel Flores et al., 2012; Schladitz et al., 2011).

6.2.2 Climatologie

Pour calculer l'impact de l'humidité sur les propriétés optiques, nous avons utilisé la méthode décrite au paragraphe 3.4.3 sur la période 2010-2011. La Figure 6-3 représente la variation du facteur d'accroissement du coefficient de diffusion à 550nm ($f\sigma_{sca_{550}}$) en fonction du temps, et la couleur correspond au facteur de croissance hygroscopique GF. Les mesures obtenues sont éparées, car elles résultent du fonctionnement simultané de l'instrumentation optique, granulométrique et hygroscopique

A 550nm l'inversion a été réalisée sur environ 1000 points. C'est la première fois, à notre connaissance, qu'une étude saisonnière du facteur d'accroissement optique est mesurée sur une aussi longue période.

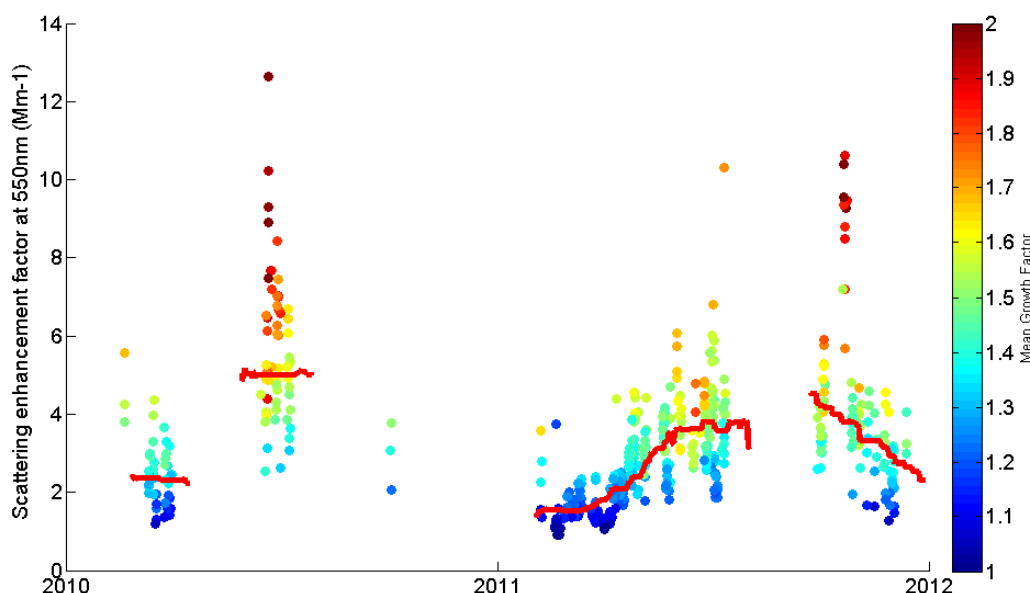


Figure 6-3: Facteur d'accroissement à 90% d'humidité du coefficient de diffusion à 550nm en 2010-2011. La couleur représente le GF moyen. La ligne rouge représente la médiane glissante sur 3 mois.

La Figure 6-3 montre clairement une variation saisonnière de f_{sca}_{550} , qui est beaucoup plus élevé en été. A notre connaissance, c'est la première fois qu'une variabilité saisonnière de f_{sca} est mesurée. Cette augmentation l'été est fortement corrélée à l'augmentation du GF mesuré par le HTDMA confirmant ainsi que l'hygroscopicité de l'aérosol est un paramètre clef à prendre en compte dans ses propriétés optiques. Au PdD, à 90% d'humidité, la valeur moyenne de f_{sca}_{550} est de 2.8. A humidité ambiante (hors nuage), la valeur moyenne est de 3.73. Cette valeur indique que le coefficient de diffusion est sous estimé de près d'un facteur 4 lorsque l'hygroscopicité des particules n'est pas prise en compte.

6.2.3 f_{sca} en fonction de l'origine des masses d'air

Si l'information sur la taille et l'hygroscopicité de l'aérosol échantillonné au puy de Dôme n'était pas connue, nous pourrions appliquer au coefficient de diffusion mesuré au puy de Dôme (aérosol sec) un facteur d'accroissement hygroscopique moyen adapté à la saison, suivant la variation saisonnière de f_{sca}_{550} obtenue section 6.2.2. Toutefois, sachant que l'hygroscopicité de l'aérosol est dépendante du type de masse d'air comme montré précédemment, il est important de déterminer un facteur d'accroissement hygroscopique par type de masse d'air. D'autre part, vu la grande dépendance du facteur d'accroissement hygroscopique à l'humidité relative, il est nécessaire de calculer un non pas seulement à 90% RH mais sur toute la gamme d'humidités relatives que l'on peut rencontrer en atmosphère ambiante.

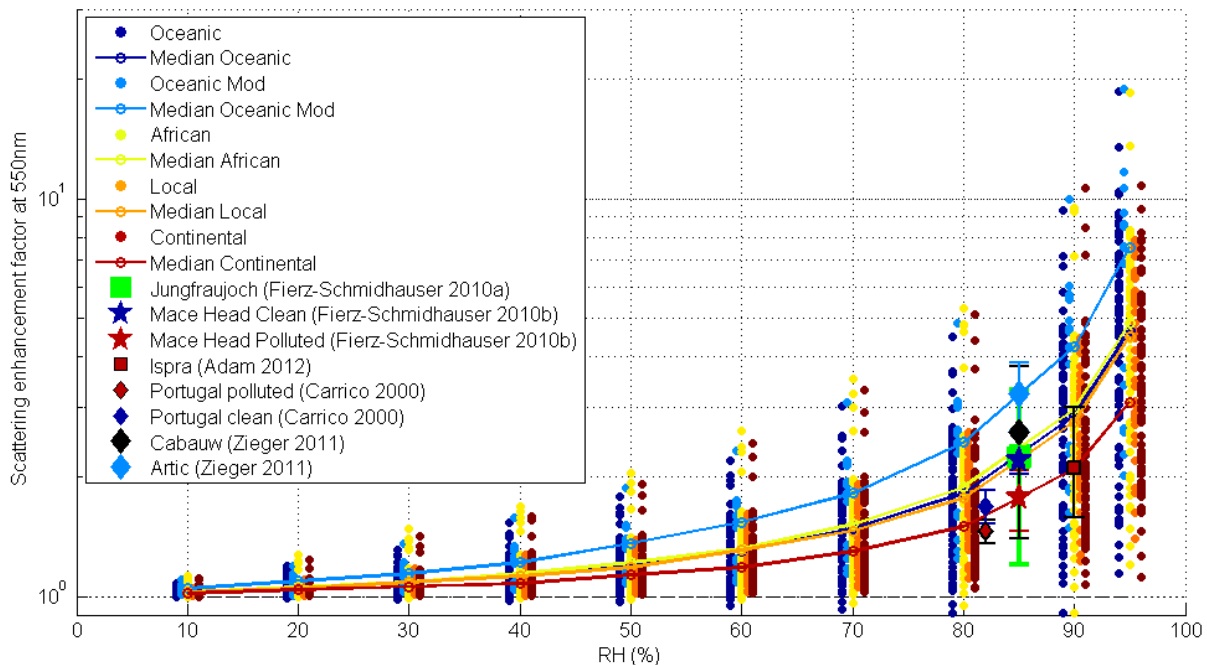


Figure 6-4: Variation du facteur d'accroissement de la diffusion à 550nm en fonction de l'humidité. La couleur représente l'origine des masses d'air. f_{sca}_{550} a été calculé pour des humidités de 10 à 95%. Les lignes continues représentent les médianes de f_{550} pour chaque humidité et chaque masse d'air. Les valeurs européennes disponibles dans la littérature sont indiquées à l'humidité considérée et avec l'incertitude associée.

A partir des mesures de la distribution en taille de GF, calculées à partir du GF90%, et de l'indice de réfraction de l'aérosol humide retrouvé grâce à notre algorithme décrit au paragraphe 3.3.3, il est possible de calculer $f\sigma_{550}$ à une humidité relative donnée. La Figure 6-4 représente un humidogramme de $f\sigma_{550}$ calculé pour des humidités variant de 10 à 95%, en fonction de l'origine de la masse d'air déterminée à partir des rétrotrajectoires calculées par le modèle Hysplit (échelle de couleur).

Les valeurs médianes des humidogrammes obtenues ont été paramétrées avec la somme de deux exponentielles (équation 6.1). Les résultats sont donnés dans le Tableau 6-2.

$$f\sigma_{550} \approx a_1 e^{a_2 RH} + a_3 e^{a_4 RH} \quad (6.1)$$

	a_1	a_2	a_3	a_4
African	9.36E-01	5.23E-03	1.55E-06	1.49E-01
Oceanic	9.18E-01	6.08E-03	3.10E-07	1.68E-01
Oceanic Mod	9.88E-01	5.14E-03	8.66E-04	8.82E-02
Continental	9.69E-01	3.50E-03	6.02E-05	1.07E-01
Local	9.18E-01	6.05E-03	6.17E-07	1.60E-01

Tableau 6-2: Coefficients pour différentes masses d'air de la paramétrisation du facteur d'accroissement de la diffusion à 550nm en fonction de l'humidité.

Ces humidogrammes de $f\sigma_{550}$ ne tiennent pas compte de la déliquescence ou de l'efflorescence des aérosols. Toutefois, des humidogrammes directement mesurés avec des néphélomètres à humidité contrôlées en atmosphère réelle, montre l'absence de point de déliquescence (Fierz-Schmidhauser et al., 2010a), sauf pour des masses d'air marines propres (Zieger et al., 2011)

Le facteur d'accroissement de diffusion à 550nm est plus faible pour les masses d'air continentales ($f\sigma_{550}(90\%) = 2.56 \pm 1.86$). La Figure 6-4 montre que cette valeur est en bon accord avec les valeurs retrouvées à Mace Head pour des masses d'air polluées ($f\sigma_{550}(85\%) = 2.22 \pm 0.17$, Fierz-Schmidhauser et al., 2010b) ainsi qu'avec les mesures réalisées à Ispra, dans la vallée du Po en Italie où les émissions de polluants sont importantes ($f\sigma_{550}(90\%) = 2.10$ [1.58-3] Adam et al., 2012). Les valeurs obtenues sont également comparables avec celles mesurée au Sud du Portugal pour des masses d'air polluées ($f\sigma_{550}(82\%) = 1.46 \pm 0.1$, Carrico et al., 2000). Pour faciliter la comparaison, les facteurs d'accroissement ont été reportés en rouge foncée Figure 6-4. On observe nettement la corrélation avec la médiane observée pour des masses d'air continentales (rouge foncée).

Une deuxième gamme de facteur d'accroissement de diffusion apparait pour les masses d'air d'origine océanique, africaine et locale pour des valeurs de $f\sigma_{550}(90\%)$ respectivement de 2.93 ± 1.45 , 2.89 ± 1.52 et 2.80 ± 1.03 . Sur la Figure 6-4, on note que $f\sigma_{550}$ mesuré au Puy de Dôme pour des aérosols marin est très proche de celui mesuré à Mace Head pour des masses d'air propres venant directement de l'océan (1.77 ± 0.31 Fierz-Schmidhauser et al., 2010b). Pour un événement de transport de poussière saharienne, $f\sigma_{550}(85\%)$ mesuré à un

site de haute altitude, le Jungfraujoch (3580m) en Suisse, est très proche de ce que nous retrouvons pour les masses d'air africaines (1.72 Fierz-Schmidhauser et al. (2010a). La même étude, menée sur un mois, confirme l'ordre de grandeur et la forte variabilité pour les sites d'altitudes du facteur d'accroissement optique ($f_{osca}(85\%) = 2.23 [1.2-3.3]$). Au Cap Vert, pour des particules majoritairement marines et Sahariennes, Schladitz et al., (2011) obtiennent des facteurs d'accroissement de diffusion $f_{osca}(90\%)$ de 2.55.

Enfin, le facteur d'accroissement de diffusion pour les masses d'air océaniques modifiées est significativement plus élevé que pour les autres masses d'air ($f_{osca}(90\%) = 4.36 \pm 2.51$). Cette valeur, plus élevée que pour des masses d'air marines peut paraître étonnante, cependant elle s'explique par le GF élevé de ces masses d'air. De plus, comme le montre la Figure 6-4, elle est similaire à celle calculée en Arctique ($f_{osca}(85\%) = 3.24 \pm 0.63$, Zieger et al., 2010). Zieger et al. ont montré que, pour une composition chimique donnée, f_{osca} diminue avec le diamètre. D'après les auteurs, cela explique que f_{osca} reste relativement constant en Arctique, car même lorsque de fortes concentrations de particules très hygroscopiques sont présentes (NaCl), ces particules ont un diamètre plus élevé. Leur facteur d'accroissement de diffusion est logiquement similaire à des particules moyennement hygroscopiques ($(NH_4)_2SO_4$) mais avec un diamètre plus petit. C'est cohérent avec nos mesures, car les masses d'air qui présentent le f_{osca} le plus élevé, les masses d'air océaniques modifiées, ont une forte proportion de composés inorganiques moyennement hygroscopiques et des sels de mers (Bourcier et al., 2012).

Randriamiarisoa et al., (2006) présentent également des valeurs de $f_{osca}(80\%)$ mesurées près de Paris variant de 1.2 à 4.5 sur cinq jours. Ces mesures sont obtenues en comparant la diffusion mesurée de jour, quand l'humidité est de 80%, et la nuit quand l'humidité est plus basse (~50-60%). De nombreux paramètres pouvant influencer le résultat de ces mesures, comme la variation du type d'aérosol au cours de la journée ou la faible différence d'humidité considérée. Nous avons choisi de ne pas les représenter dans la Figure 6-3. D'autres études existent en dehors de l'Europe. Dans 80% à 85% des cas, les ordres de grandeur varient de 1.8 à 2.54 pour des aérosols marins, de 1.58 à 1.81 pour des aérosols marins pollués, de 1.4 à 1.65 pour des aérosols anthropiques, de 1.0 à 1.13 pour des particules désertiques et enfin de 1.1 à 1.4 pour des particules récemment émises par des feux de biomasses. (Stock et al., 2011 et référence incluses). Les ordres de grandeurs sont cohérents avec nos mesures.

Nous avons mis en évidence la variabilité du facteur d'accroissement de diffusion au Puy de Dôme. A notre connaissance, c'est la plus longue série temporelle d'observation de f_{osca} . Cela a permis de montrer sa forte variabilité saisonnière pour un site d'altitude. Il a également été possible de montrer des comportements différents de f_{osca} en fonction des masses d'air. Les valeurs retrouvées sont en très bon accord avec la littérature existante, aussi bien pour les masses d'air continentales qu'Arctiques. Cela confirme que les mesures réalisées au PdD, en combinaison avec le calcul de l'origine des masses d'air, permettent de

réaliser une cartographie relativement précise de paramètres optiques intensifs. Ces paramètres pourront être utilisées dans le cas où les distributions en taille et l'hygroscopicité d'une masse d'air données ne serait pas connues. Nous allons maintenant nous intéresser au facteur d'accroissement pour les autres paramètres optiques.

6.3 Facteur d'accroissement de l'absorption, de l'extinction et de ω_0

L'eau n'étant pas absorbante, la plupart des études considèrent que l'impact de l'humidité sur l'absorption, $f\sigma_{abs}$, est négligeable (Nessler et al., 2005; Zieger et al., 2010, 2011). Cependant, certaines études montrent un léger accroissement d'absorption avec l'humidité, $f\sigma_{abs}(90\%)$ est de 1.1 à Ispra (Adam et al., 2012) et de 1.04 au Cap Vert (Schladitz et al., 2011).

Au Puy de Dôme $f\sigma_{abs}(90\%)$ est également mesurable, et nous obtenons une valeur médiane de 1.11 ± 0.17 . Il n'y a pas de différences notables entre les masses d'air (Tableau 6-3), sauf pour les masses d'air continentales où $f\sigma_{abs}$ est plus faible car la valeur initiale de σ_{abs} est élevée. De façon similaire, Adam et al. (2012) ne mesurent pas de corrélations entre $f\sigma_{abs}$ et le facteur de croissance hygroscopique.

	$f\sigma_{scat}$	$f\sigma_{abs}$	$f\sigma_{ext}$	$f\omega_0$	f_g	f_{λ}
African	2.9	1.11	2.7	1.06	1.10	0.95
Oceanic	2.9	1.12	2.7	1.06	1.11	1.00
Oceanic Mod	4.4	1.13	4.2	1.05	1.15	0.89
Continental	2.6	1.07	2.4	1.04	1.10	0.96
Local	2.8	1.10	2.6	1.06	1.10	0.94
All	2.8	1.11	2.7	1.05	1.10	0.95

Tableau 6-3: Tableau des facteurs d'accroissement des propriétés optiques: de diffusion ($f\sigma_{scat}$), d'absorption ($f\sigma_{abs}$), d'extinction ($f\sigma_{ext}$), de l'albédo de simple diffusion ($f\omega_0$), facteur d'asymétrie (f_{λ}), coefficient d'Ångström (f_g).

La diffusion étant le principal composant de l'extinction, on retrouve les mêmes conclusions pour le facteur d'accroissement hygroscopique de l'extinction que pour celui de la diffusion. Une variation saisonnière marquée est observée avec un maximum en été, et la valeur de $f\sigma_{ext}$ la plus grande est mesurée pour les masses d'air d'origine océanique modifiée. Au PdD, à humidité ambiante, la valeur moyenne de $f\sigma_{ext_{550}}$ est de 3.38. Cela souligne encore une fois l'importance de l'hygroscopicité dans le calcul de l'extinction réelle de l'aérosol ambiant.

Comme le σ_{scat} augmente beaucoup plus que σ_{abs} lors de la croissance hygroscopique, ω_0 augmente également avec l'humidité relative. La valeur de $f\omega_0$ dépend de la composition chimique de ces particules, et en particulier de leur GF et de la valeur sèche de ω_0 . En moyenne, au Puy de Dôme $f\omega_0$ est de 1.05 ± 0.04 et présente une plus faible variabilité. L'accroissement le plus faible est observé pour les masses d'air continentales (1.04 ± 0.04), suivi des masses d'air océaniques modifiées (1.05 ± 0.04), locales (1.06 ± 0.03) et Africaines (1.06 ± 0.04) et enfin océaniques (1.06 ± 0.05).

Les valeurs de ω_0 retrouvées sont cohérentes avec les valeurs de la littérature: ω_0 augmente également avec l'humidité en Arctique passant de 0.95 à 0.98 (Zieger et al., 2010). Au Jungfraujoch, une variation de +5% est observée (Fierz-Schmidhauser et al., 2010a). A Mace Head l'augmentation se situe dans l'intervalle 1-5% (Fierz-Schmidhauser et al., 2010b). Pour finir, ω_0 au Cap Vert est de 1.04 (Schladitz et al., 2011).

6.4 Facteur d'accroissement du facteur d'asymétrie et du coefficient d'Ångström.

Les deux principaux facteurs de variabilité de g sont la distribution en taille de l'aérosol et son hygroscopicité (Andrews et al., 2006). Quand l'humidité augmente, le diamètre des particules s'accroît également, la diffusion se fait plus vers l'avant et g augmente aussi. Au PdD, lors de la croissance hygroscopique provoqué par une humidité de 90%, le facteur d'asymétrie à 550nm augmente de 10% en moyenne ($f_g(90\%)=1.10\pm0.05$). Seules les particules provenant de masses d'air d'origine océanique modifiée se démarquent avec un f_g supérieur ($f_g(90\%)=1.15\pm0.06$).

Comme la taille des particules augmente avec l'humidité, le coefficient d'Ångström diminue pour de fortes humidités relatives. Comme nous l'avons vu au paragraphe précédent, ce sont les masses d'air avec le facteur de croissance hygroscopiques GF le plus important et le coefficient d'Ångström sec le plus élevé. Logiquement, la plus forte baisse est observée pour des particules provenant de masses d'air d'origine océaniques modifiées (-11%, $f_a=0.89$). Pour les autres masses d'air, la baisse est d'environ 5% ($f_a=0.95$).

Nous avons étudié les impacts de l'hygroscopicité sur les propriétés optiques. Le paragraphe suivant s'intéresse aux conséquences de ces impacts: la modification du l'effet radiatif intrinsèque des aérosols.

6.5 Efficacité radiative de l'hygroscopicité $d\Delta E$

L'efficacité radiative ΔE est calculée à 550nm en tenant compte de l'hygroscopicité selon la formule donnée au paragraphe 3.3.6. C'est une approximation qui prend en compte uniquement les propriétés intrinsèques de l'aérosol. Elle est calculée pour une fraction nuageuse constante, un albédo de surface constant et par unité d'épaisseur optique. Les seules variables sont les propriétés optiques des aérosols, plus précisément le facteur d'asymétrie g et l'albédo de simple diffusion ω_0 .

Pour connaître l'impact radiatif de l'hygroscopicité, on définit l'efficacité radiative de l'hygroscopicité équation (6.2) . Elle est noté $d\Delta E$ et représente la différence entre ΔE sec et ΔE à 90% d'humidité.

$$d\Delta E = \Delta E_{(RH=90\%)} - \Delta E_{(dry)} \quad (6.2)$$

$d\Delta E$ a été calculé sur environ 400 intervalles de 6h en 2010 et 2011. La valeur médiane de $d\Delta E$ obtenue est de $+0.3 \pm 2.2 \text{ W.m}^{-2}.\tau^{-1}$. Les 5^{ème} et 95^{ème} percentiles sont respectivement de -2.6 et $3.1 \text{ W.m}^{-2}.\tau^{-1}$. On n'observe pas de variabilité saisonnière ou journalière. Au Puy de Dôme, la prise en compte de l'hygroscopicité induirait donc une efficacité radiative faiblement positive. Cela peut sembler peu comparé à la valeur médiane de ΔE ($-16.9 \text{ W.m}^{-2}.\tau^{-1}$). Cependant $d\Delta E$ pouvant changer de signe en fonction du type d'aérosols, il est normal que sa médiane soit proche de zéro. La médiane de la valeur absolue de $d\Delta E/\Delta E$ est de 9%, les 5^{ème} et 95^{ème} percentiles sont 1 et 29%. La contribution de l'hygroscopicité sur l'efficacité radiative n'est donc pas négligeable. La Figure 6-5 représente la cartographie réalisée avec la méthode décrite paragraphe 3.5.1.

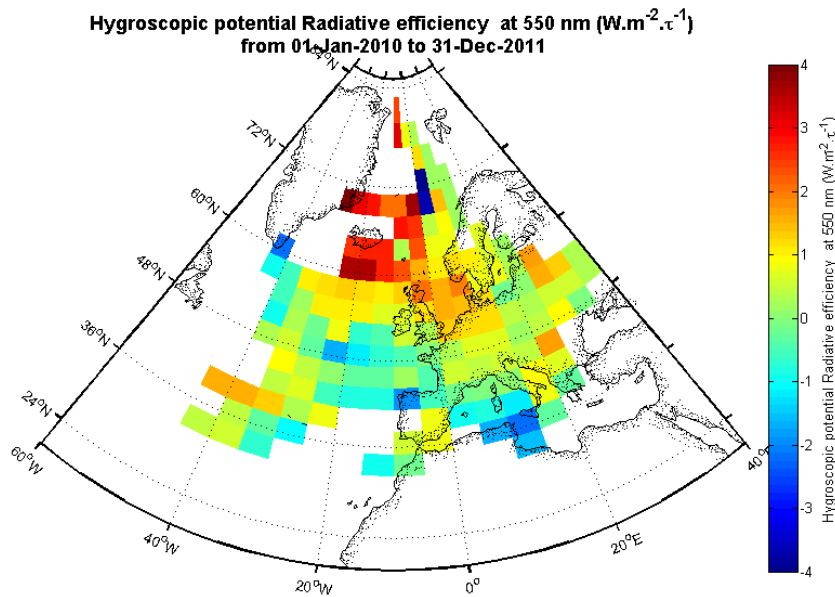


Figure 6-5: Carte de l'efficacité radiative potentielle de l'hygroscopicité à 550nm en 2010-2011. $d\Delta E$ est calculé à partir des mesures du Puy de Dôme et reportée sur la carte en fonction des rétrotrajectoires.

Sur la Figure 6-5, on note la forte variabilité de $d\Delta E$ en fonction de l'origine des masses d'air. Cette variabilité peut s'expliquer à partir des paramètres optiques secs influençant ΔE (g et ω_0) et du facteur de croissance hygroscopique GF . En effet, quand GF augmente, on observe deux effets contradictoires. Le premier est provoqué par l'augmentation du diamètre de la particule considérée: quand le diamètre augmente la diffusion avant augmente, g se rapproche de 1 donc ΔE va lui aussi augmenter. Deuxièmement, en grossissant avec l'apport d'eau, la particule devient plus diffusante, mais pas plus absorbante (voir paragraphe 6.2.2). ω_0 va donc augmenter ce qui provoque une baisse de ΔE . Pour la période considérée dans la Figure 6-5, pour les masses d'air du nord ouest, ω_0 présente des valeurs élevées, les aérosols sont déjà faiblement absorbants, la variation de ω_0 est faible. En revanche, g est peu élevé, avec la croissance hygroscopique il va augmenter fortement. $d\Delta E$ est donc positif, tenir compte de l'hygroscopicité des aérosols en de cette zone implique une efficacité radiative positive. A l'inverse, notamment pour les particules provenant de l'océan atlantique proche, GF est moins élevée et $f\omega_0$ est plus élevé. L'efficacité est donc négative. Pour les masses

d'air continentales, GF est moyen, mais g et ω_0 ont des valeurs sèches importantes, ce qui n'entraîne pas de fortes valeurs de f_g et f_{ω_0} . $d\Delta E$ est donc toujours positif mais plus proche de zéro.

Afin de réaliser une étude chiffrée, les valeurs médianes de $d\Delta E$ en fonction de l'origine des masses d'air sont données dans le Tableau 6-4.

	$d\Delta E$ (W.m ⁻² .τ ⁻¹)			$ d\Delta E/\Delta E $ (%)
African	0.4	+/-	5.1	7.8
Oceanic	-0.9	+/-	6.2	9.2
Oceanic Mod	3.6	+/-	5.9	10.5
Continental	1.6	+/-	6.3	9.8
Local	0.1	+/-	4.2	7.7
All	0.8	+/-	5.9	8.8

Tableau 6-4: Différence entre l'efficacité radiative sèche et à 90% d'humidité ($d\Delta E$) et pourcentage de la valeur absolue de cette différence ($|d\Delta E/\Delta E|$). Ces valeurs sont calculées au Puy de Dôme à 550nm et données en fonction de l'origine des masses d'air.

Ce tableau confirme, lui aussi, la forte variabilité de $d\Delta E$ en fonction de la masse d'air. Pour des masses d'air océaniques, l'efficacité médiane est négative. Pour les masses d'air océaniques modifiées, elle est fortement positive. L'efficacité radiative est également élevée pour les masses d'air continentales et légèrement positive pour les masses d'air africaines. Elle est nulle pour les masses d'air locales.

Nous venons de montrer qu'en fonction du type d'aérosol, l'efficacité radiative de l'hygroscopicité peut changer de signe. C'est une conclusion majeure de ce chapitre. A notre connaissance, c'est la première fois que ce phénomène est mis en évidence avec une longue série de mesure.

6.6 Forçage radiatif de l'hygroscopicité.

Nous venons de quantifier l'impact de l'hygroscopicité sur les propriétés radiatives intensives de l'aérosol. Nous allons à présent tenir compte de l'accroissement de l'épaisseur optique avec l'humidité. Pour cela on définit la différence d'accroissement du forçage radiatif $d\Delta F$:

$$f\Delta F = \frac{\Delta F_{(RH=90\%)}}{\Delta F_{(dry)}} \quad (6.3)$$

$$f\Delta F = \frac{\Delta E_{(RH=90\%)}}{\Delta E_{(dry)}} f\sigma_{ext} \quad (6.4)$$

$f\Delta F$ est la facteur entre le forçage radiatif sec $\Delta F_{(dry)}$ et celui à 90% d'humidité $\Delta F_{(RH=90\%)}$. On peut également exprimer ce rapport en fonction de l'efficacité radiative et de l'épaisseur optique. Sachant que l'épaisseur optique correspond à l'intégrale du coefficient d'extinction sur la hauteur de l'atmosphère, et si on considère que l'humidité est de 90% sur toute la colonne atmosphérique, on peut écrire l'épaisseur optique humide comme l'épaisseur

optique sèche multipliée par le facteur d'accroissement de l'extinction $f\sigma_{\text{ext}}$. On peut donc simplifier l'expression par l'épaisseur optique sèche et on obtient l'équation 6.4.

Au PdD, si on considère que l'humidité dans l'atmosphère est celle mesurée au PdD, tenir compte de l'hygroscopicité entraîne un $f\Delta F$ de 1.75 ± 7 . Le forçage radiatif est donc 75% plus négatif en tenant compte de l'hygroscopicité. Si on fait l'hypothèse d'une humidité de 90% sur toute la colonne atmosphérique, tenir compte de l'hygroscopicité multiplie par 2.8 le forçage radiatif. Le Tableau 6-5 donne les valeurs de $f\Delta F$ en fonction de l'origine des masses d'air. Ce facteur est calculé sur près de 400 intervalles des 6h en 2010 et 2011.

	$f\Delta F$		
African	2.9	+/-	1.6
Oceanic	3.1	+/-	1.9
Oceanic Mod	4.2	+/-	2.1
Continental	2.4	+/-	8.1
Local	2.8	+/-	1.2
All	2.8	+/-	4.6

Tableau 6-5: Climatologie du facteur de l'accroissement du forçage radiatif $f\Delta F$. Ces valeurs sont calculées au Puy de Dôme à 550nm et données en fonction de l'origine des masses d'air.

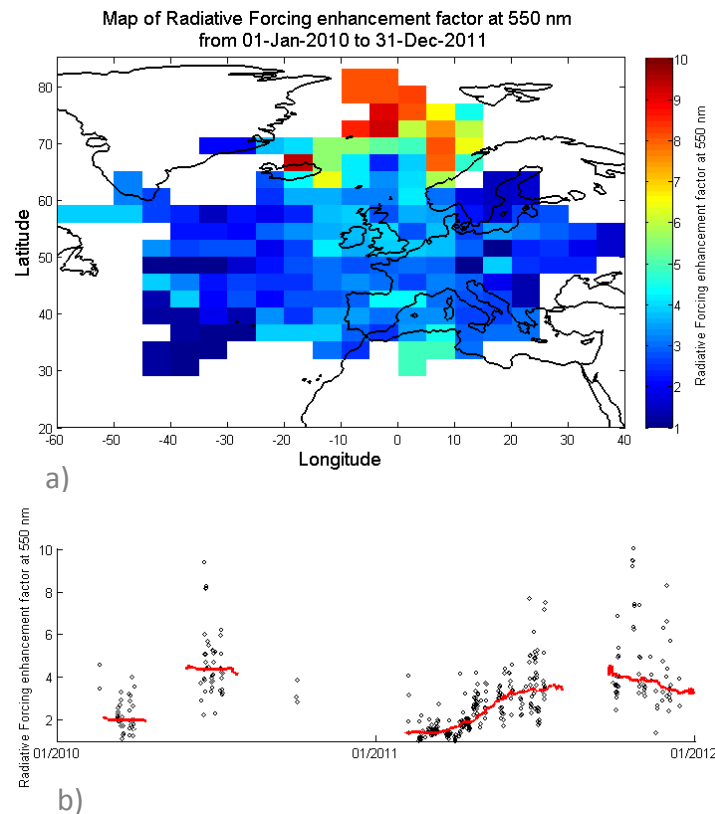


Figure 6-6: a) Carte du facteur d'accroissement du forçage radiatif à 90% d'humidité. $f\Delta F$ est calculé à 550nm entre 2010 et 2011 à partir des mesures du Puy de Dôme et des rétrotrajectoires. b) Évolution temporelle de $f\Delta F$. La ligne rouge représente la médiane glissante sur 3 mois.

Pour des masses d'air océaniques modifiées, fortement hygroscopiques, le facteur calculé est de 4. Pour des masses d'air continentales, moins hygroscopiques ce facteur est de 2.5.

La cartographie de $f\Delta F$ est tracée Figure 6-6-a. L'impact de l'origine des masses d'air est clairement visible, en particulier pour les masses d'air provenant du nord de l'Europe. Sur la Figure 6-6-b une claire variation saisonnière se dégage, principalement sur l'année 2011 pendant laquelle les mesures HTDMA ont été les plus complètes se dégage (1.9 en hiver contre 3.8 en été). Cette variation est logiquement liée à celle observée pour le f_{osca} Figure 6-3. Si la diffusion augmente, l'extinction et l'épaisseur optique vont aussi s'accroître.

Stock et al. (2011) ont également étudié l'impact de l'hygroscopicité à humidité ambiante sur une courte période (environ 2 semaines). Pour des masses d'air fortement polluées, ils montrent que plus l'humidité est importante, plus le forçage radiatif des aérosols est négatif. Ils calculent également que pour des masses d'air maritimes moins polluées, cette relation n'est plus vérifiée. Au PdD, bien que l'intensité soit différente en fonctions des masses d'air, l'hygroscopicité a toujours un fort impact sur le forçage radiatif.

Nous avons vu au paragraphe 4.4 qu'il existe une différence entre le forçage radiatif calculé par le photomètre ΔF_{photo} et celui obtenu avec les mesures in situ ΔF_{insitu} . Nous avons émis l'hypothèse qu'un des facteurs provoquant cette différence est l'hygroscopicité des particules. Pour le vérifier, nous avons tracé sur la Figure 6-7 les forçages radiatifs secs et ceux à humidité ambiante en fonction de ceux calculés par le photomètre.

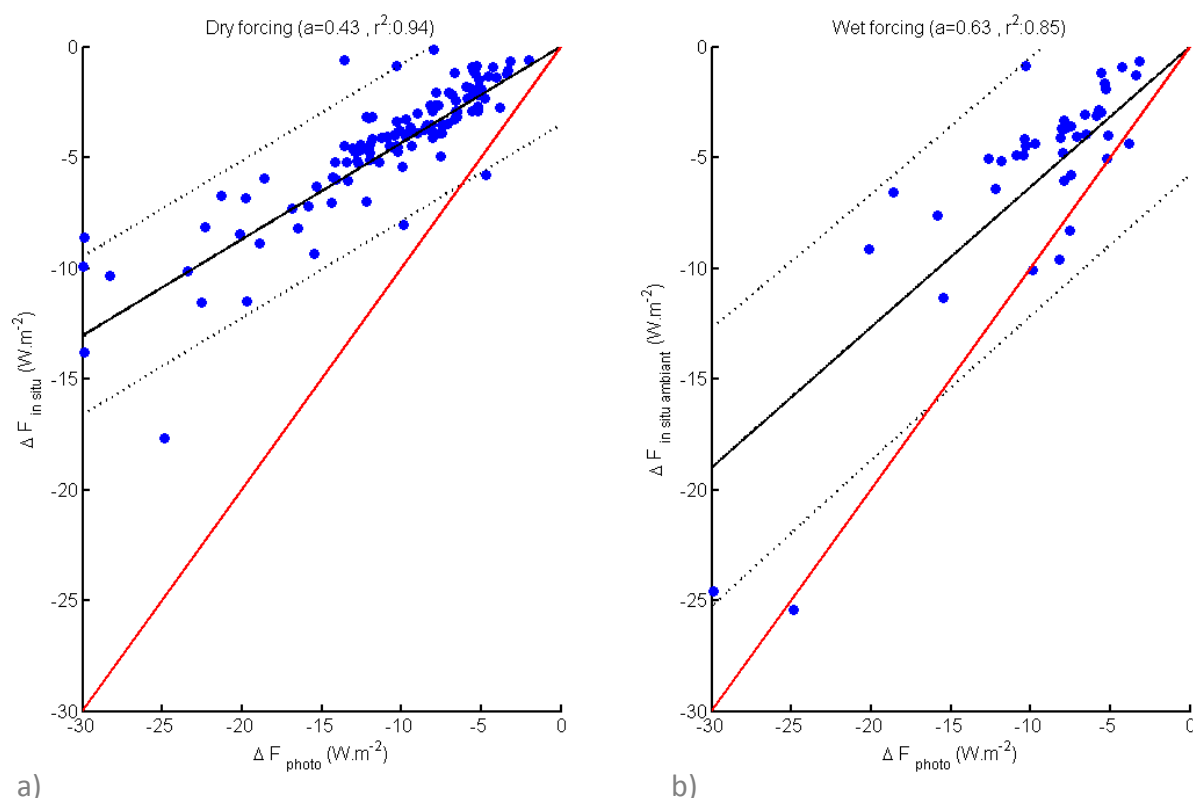


Figure 6-7: a) Forçage radiatif calculé à partir des mesures in situ sèche en fonction de celui calculé par le photomètre. b) Forçage radiatif calculé à partir des mesures in situ à humidité ambiante en fonction de celui calculé par le photomètre. Les lignes rouges représentent les droites 1:1. Les lignes noires continues la régression linéaire et les lignes noires discontinues les intervalles de confiance de 95% correspondant.

La Figure 6-7-a met en évidence la divergence entre les mesures in situ et photomètre. Bien que le coefficient de corrélation soit élevé, la pente de ΔF_{insitu} en fonction de ΔF_{photo} est de 0.4. Le forçage radiatif calculé avec les mesures in situ sèches est donc 2 fois inférieur à celui calculé pour le photomètre. Si on tient compte de l'hygroscopicité, la pente entre $\Delta F_{\text{insitu-ambient}}$ et ΔF_{photo} est de 0.6 et le facteur entre in situ et photomètre est réduit à 1.5. L'hygroscopicité est donc un des facteurs permettant d'améliorer la comparaison entre mesures de télédétection et in situ. La Figure 6-7-b montre que ceci est particulièrement vrai pour des forçages radiatifs fortement négatifs ($< -15 \text{ W.m}^{-2}$)

Nous venons de montrer que l'hygroscopicité a deux impacts sur le forçage radiatif. Lorsqu'une particule absorbe de l'eau, ses propriétés intrinsèques changent. A 90% d'humidité, son efficacité radiative change de 9% en moyenne. Le signe de ce changement peut être différent en fonction du type d'aérosols. Le deuxième effet, beaucoup plus important, est l'augmentation de l'extinction et donc de l'épaisseur optique avec l'humidité. Au PdD, cela représente un facteur 2.8 à 90% d'humidité et 1.75 à humidité ambiante. L'hygroscopicité est donc un paramètre essentiel si on veut calculer le forçage radiatif à partir des mesures in situ.

Nous allons maintenant nous intéresser à la variabilité avec l'humidité d'un autre paramètre optique qui peut avoir une forte influence pour établir des profils verticaux d'aérosols et mieux évaluer leur impact sur le climat: l'extinction Lidar.

6.7 Extinction Lidar

L'impact de l'humidité sur le coefficient de diffusion et d'absorption a été démontré aux paragraphes 6.2 et 6.3. Pour comparer les mesures d'extinction in situ sèches et de télédétection à humidité ambiante, il faut donc tenir compte de l'hygroscopicité. L'extinction calculée par Lidar (à l'altitude du PdD) avec un rapport Lidar a priori et celle calculée à l'aide du MAAP et du néphélomètre sont représentées figure 6-8 pour l'année 2011. La couleur des points représente l'humidité ambiante au Puy de Dôme

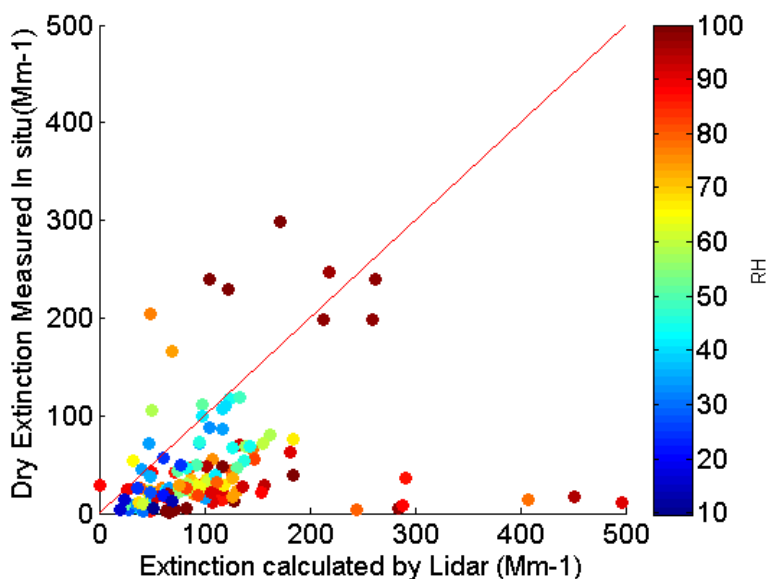


Figure 6-8: Extinction in situ sèche en fonction de l'extinction Lidar à humidité ambiante. La couleur représente l'humidité ambiante. La droite 1:1 est tracée en rouge. Les coefficients d'extinctions sont calculés à 355nm pour l'année 2011.

Sur cette figure on note que tous les points non corrélés le sont pour des humidités élevées. L'humidité est donc un facteur important à prendre en compte. Pour quantifier cet impact l'extinction humide est calculée tous les jours où l'ensemble de l'instrumentation du PdD était en fonctionnement (LIDAR, Néphélomètre, MAAP, SMPS, OPC, HTDMA et capteur d'humidité) et en l'absence de nuage. Pour ces jours, l'extinction sèche est représentée en fonction de l'extinction Lidar figure 6-9-a et l'extinction humide figure 6-9-b. Les coefficients d'extinction sont obtenus à l'aide de la distribution en taille, du code de mie et de la méthode itérative décrite paragraphe 3.3.3.

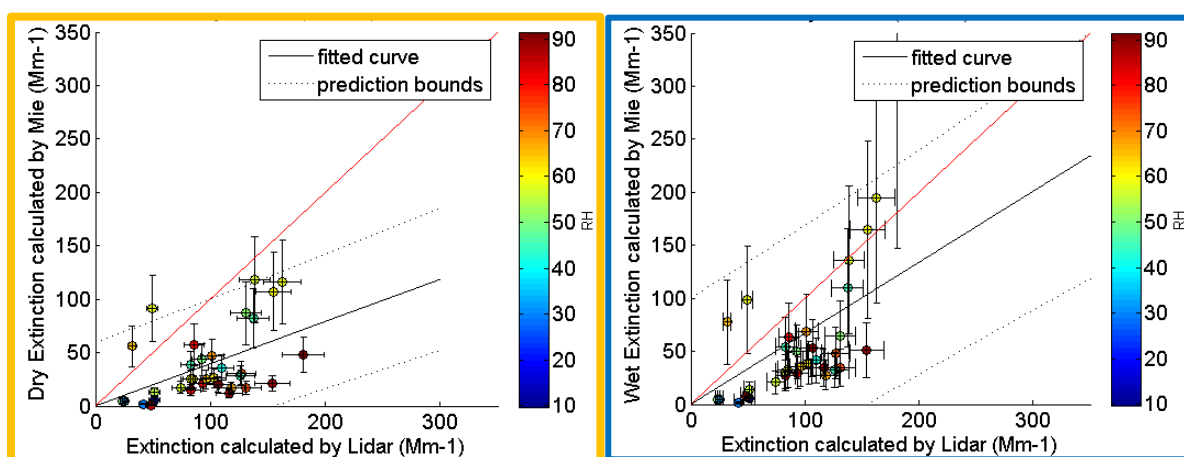


Figure 6-9: a) Extinction in situ sèche en fonction de l'extinction Lidar. b) Extinction in situ humide en fonction de l'extinction Lidar à humidité ambiante. La couleur représente l'humidité ambiante. La droite 1:1 est tracée en rouge. Les coefficients d'extinctions sont calculés à 355nm pour l'année 2011.

Sur la figure 6-9-a, la divergence entre l'extinction in situ et Lidar est toujours visible. La régression linéaire est représentée en noire avec une pente de 0.40 ($r^2=0.5$). En tenant compte de l'hygroscopicité (figure 6-9-b) l'accord entre les deux types de mesures

s'améliore, la pente de la régression linéaire devient de 0.49 ($r^2=0.7$). En tenant compte de l'hygroscopicité, le rapport entre l'extinction Lidar et in situ est amélioré de 33% (facteur 2.7 [1.5 - 3.6] au lieu de 4.0 [2.0- 5.3]). Compte tenu du nombre important d'instruments nécessaire et la forte couverture nuageuse au PdD, cette inversion n'a pu être réalisée que sur des périodes temporelles réduites (moins de 50 intervalles de 6 heures). Pour obtenir des résultats plus fiables statistiquement, on utilise la paramétrisation du facteur d'accroissement de la diffusion en fonction des masses d'air décrite au paragraphe 6.2.3. L'utilisation de cette paramétrisation réduit encore plus (-38%) la différence entre extinction Lidar et extinction in situ (1.8 [1.2 - 3.2] au lieu de 2.9 [1.9 - 4.7]). L'utilisation de la paramétrisation a permis de réaliser cette étude sur une période 3.5 fois plus longue qu'en utilisant le HTDMA et le code de Mie.

Nous venons donc de montrer que la prise en compte de l'hygroscopicité améliore significativement la comparaison entre extinction in situ et Lidar. Cependant l'extinction Lidar est toujours plus importante que celle calculée avec les mesures in situ. L'utilisation d'un rapport Lidar *a priori*, peut expliquer cette différence. Nous allons donc étudier l'impact de l'hygroscopicité sur le rapport Lidar

6.8 Rapport Lidar

Il n'y a pas de relation linéaire entre le rapport Lidar (L) et l'humidité. L va varier en fonction du type d'aérosol de sa taille ou de son état de mélange. La Figure 6-10 représente la variation du rapport Lidar en fonction de l'humidité ambiante. Cette variation est calculée à l'aide d'un code de Mie et de notre méthode multi instrumentale.

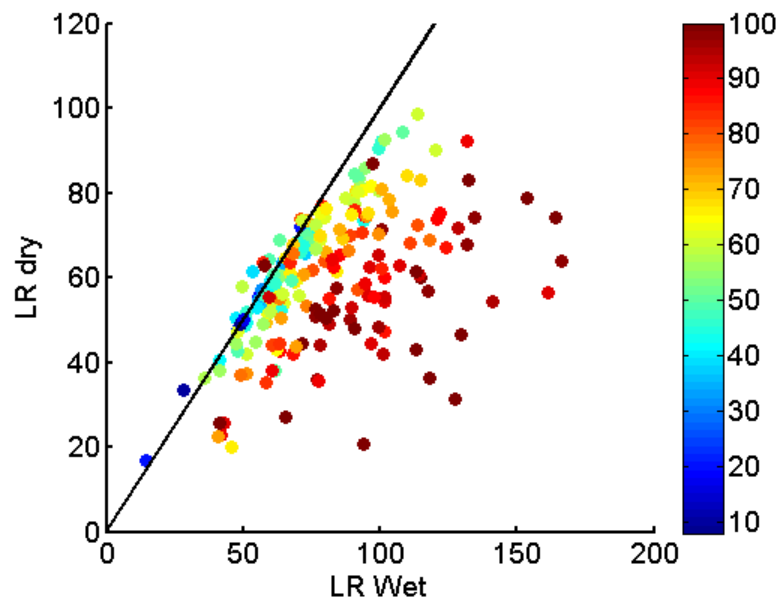


Figure 6-10: Rapport Lidar sec en fonction de du rapport Lidar calculé à humidité ambiante. La couleur représente l'humidité ambiante

Sur la Figure 6-10, on note que le rapport Lidar augmente avec l'humidité. Pour voir si ce changement est dépendant de l'origine des masses d'air, L est calculé pour des humidités variant de 10 à 95% dans la Figure 6-11.

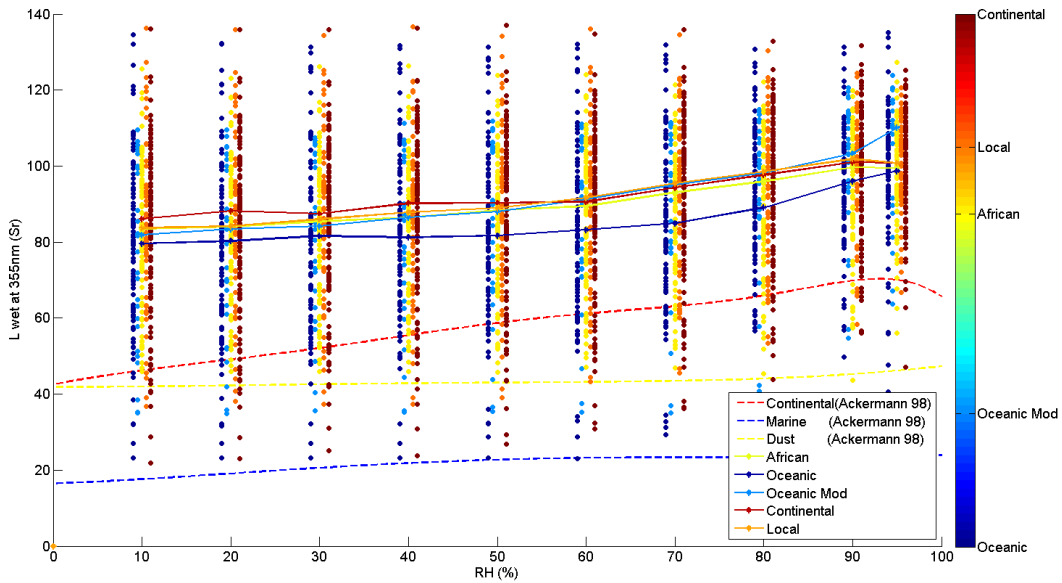


Figure 6-11: Rapport Lidar à 355nm en fonction de l'humidité. Les lignes représente les valeurs de la littérature pour des aérosols continentaux (Rouge) marins (bleus) et désertiques(Jaune).(Ackermann, 1998)

Sur la Figure 6-11, la dépendance du rapport Lidar avec l'humidité est visible et quantifiable. Les valeurs médianes des humidogrammes obtenues ont été paramétrées avec l'équation polynomiale (6.5) . Les résultats sont donnés dans le Tableau 6-6.

$$L \approx \sum_{i=1}^6 a_i RH^{i-1} \quad (6.5)$$

	a_1	a_2	a_3	a_4	a_5	a_6
African	-1.05E-01	4.63E-03	1.77E-04	-8.39E-06	1.17E-07	-5.29E-10
Oceanic	5.59E-01	-3.32E-02	1.16E-03	-2.22E-05	2.13E-07	-7.70E-10
Oceanic Mod	-1.25E+00	1.11E-01	-4.20E-03	8.02E-05	-7.37E-07	2.60E-09
Continental	1.29E+00	-8.18E-02	2.77E-03	-4.99E-05	4.53E-07	-1.61E-09
Local	-7.47E-01	4.90E-02	-1.22E-03	1.41E-05	-5.85E-08	-6.95E-12

Tableau 6-6: Coefficients pour différentes masses d'air de la paramétrisation du facteur d'accroissement du rapport Lidar à 355nm en fonction de l'humidité.

Tout d'abord, bien que les médianes soient calculées sur un échantillon plus petit que pour le paragraphe 4.2.9 (seulement en présence de mesures HTDMA), les conclusions sont identiques. L est plus faible pour les masses d'air océaniques et océaniques modifiées, intermédiaire pour les masses d'air africaines et plus élevé pour les masses d'air locales et continentales. Quel que soit le type de masse d'air, le rapport Lidar augmente avec l'humidité. Cette augmentation est particulièrement visible pour de très fortes humidités (90-95%). Les masses d'air océaniques modifiées montrent un fort accroissement de L avec

RH, en raison de leur plus forte hygroscopicité. Au contraire, pour les particules en provenance de masses d'air marines, l'accroissement avec l'humidité est moins important.

Les résultats obtenus par Ackermann (1998) avec un code de Mie et des distributions standard d'aérosols (Hess et al., 1998) sont également reportés. Ackermann (1998) retrouve des valeurs nettement inférieures à celles calculées pour le Puy de Dôme. Toutefois nous avons vu au chapitre 4 que les valeurs moyennes obtenues avec la méthode multi instrumentale, sont cohérentes avec celles calculée par le photomètre. Cependant la validité de la variation du rapport Lidar calculée en fonction de l'humidité peut être discutée. Le rapport Lidar dépendant fortement de la rétrodiffusion à 180°, il est plus sensible à la sphéricité des particules que les autres paramètres déterminés dans les paragraphes précédents. Pour valider notre étude sur le rapport Lidar, il faudrait comparer les résultats obtenus avec une méthode de référence comme par exemple l'inversion Lidar avec les voies Raman.

Malheureusement, avant septembre 2012, un mauvais alignement Est-Ouest empêchait d'obtenir une inversion Raman fiable. Ce problème est maintenant résolu mais le compteur optique Grimm est momentanément utilisé pour la campagne Hymex (HYdrological cycle in the Mediterranean EXperiment). Cette comparaison ne pourra être réalisée qu'au retour de cet instrument, probablement en Novembre 2012. C'est donc une perspective à très court terme, l'algorithme Raman ayant été développé et validé en le comparant à ceux du réseau EARLINET.

6.9 Synthèse du chapitre

Le premier résultat de ce chapitre est la longue série de mesures du facteur de croissance hygroscopique au PdD. Associée aux mesures physiques comme la distribution en taille et les propriétés optiques, l'algorithme mis en place a permis de déterminer le facteur d'accroissement pour les différentes propriétés optiques. Tout d'abord, cette méthode a été validée par rapport à des mesures directes du facteur d'accroissement de la diffusion obtenues à l'aide d'un néphélomètre à humidité contrôlée. Ensuite, une climatologie de cet accroissement a été réalisée pour les principales propriétés optiques (les coefficients de diffusion et d'absorption, l'albédo de simple diffusion, le coefficient d'Ångström et le facteur d'asymétrie).

Pour la première fois à notre connaissance, une variation saisonnière du facteur d'accroissement hygroscopique de la diffusion, $f\sigma_{sca}$, est démontrée. Pour les autres propriétés optiques il n'y a pas de variabilité saisonnière marquée. Un autre résultat marquant de ce chapitre est la variabilité de $f\sigma_{sca}$ en fonction des masses d'air. Pour les masses d'air d'origine océanique modifiée, la valeur médiane de $f\sigma_{sca}$ (4.4 ± 2.51) est 70% plus élevée que pour les masses d'air continentales (2.56 ± 1.86). Les valeurs retrouvées sont en très bon accord avec les rares valeurs existantes dans la littérature à travers l'Europe, confirmant encore une fois la pertinence de la classification par types de masses d'air. Nous

avons montré que la prise en compte de l'hygroscopicité permet d'améliorer l'accord entre l'extinction in situ et Lidar de 38%. L'impact de l'hygroscopicité sur le rapport Lidar a également été calculé. Nous avons montré que, au PdD, plus l'humidité augmente, plus le rapport Lidar tend à augmenter. Le rapport Lidar varie également en fonction des masses d'air.

Sur la base de ces résultats, nous avons pu ensuite évaluer l'effet de l'hygroscopicité sur l'efficacité radiative de l'aérosol en fonction de la masse d'air. La valeur médiane de $d\Delta E$ est proche de zéro ($0.8 [-2.6 \text{ } 3.1] \text{ W.m}^{-2}.\tau^{-1}$), mais en fonction de l'origine de la masse d'air et du type d'aérosol, $d\Delta E$ peut être positive pour des masses d'air océanique modifiée ($3.6 \text{ W.m}^{-2}.\tau^{-1}$), nulle pour des masses d'air locales ou négatives pour des masses océaniques ($-0.9 \text{ W.m}^{-2}.\tau^{-1}$). En moyenne, la prise en compte de l'hygroscopicité modifie de 9% la valeur absolue de l'efficacité radiative.

Enfin, la conclusion majeure de ce chapitre est la quantification de l'impact de l'hygroscopicité sur l'effet radiatif direct. Tenir compte de l'hygroscopicité modifie d'un facteur 2.8 le forçage radiatif calculé au PdD à 90% d'humidité et d'un facteur 1.75 à humidité ambiante. Cette valeur est fonction de la saison et de l'origine des masses d'air.

Chapitre 7 : Conclusions générales et perspectives

7.1 Conclusions générales

L'objectif de cette thèse était de quantifier d'une manière statistiquement fiable l'influence de l'hygroscopicité de l'aérosol sur son impact radiatif direct en atmosphère réelle de fond.

Dans un premier temps, nous avons analysé plusieurs années de mesures des propriétés optiques des aérosols sur le site du puy de Dôme. Nous en avons tiré une **climatologie** montrant que la hauteur de la couche limite influence très fortement les propriétés optiques de l'aérosol au Puy de Dôme. Cette influence se traduit par des variations journalières et saisonnières des propriétés optiques marquées, en particulier pour les propriétés extensives (absorption et diffusion), l'augmentation est très nette pendant la journée et pendant les mois chauds où le sommet de la couche limite est souvent au dessus du PdD. Pour les propriétés intensives (coefficient d'Angstrom, facteur d'asymétrie, albédo de diffusion simple), cette variation est moins nette. Cela indique que les variations journalières et saisonnières des propriétés extensives sont principalement provoquées par la différence de quantité de matière entre la couche limite et la troposphère libre, que par les propriétés intrinsèques de l'aérosol.

Les tendances pluriannuelles des différentes propriétés optiques ne montrent pas de variations significatives. Nous avons également pu obtenir des cartes de ces propriétés optiques en combinant les mesures in situ à un historique de la masse d'air calculé à l'air de rétrotrajectoires modélisées. La méthode de calcul de cartes de propriétés optiques a été partiellement validée en comparant la carte du coefficient d'Angstrom obtenue à l'aide de cette méthode avec celle mesurée par le satellite MODIS, montrant par la même occasion la représentativité à l'échelle de l'Europe des mesures faites au Puy de Dôme. Les résultats montrent que les aérosols de masses d'air continentales affichent des coefficients de diffusion et d'absorption (26.5 et 2.1 Mm^{-1}) plus élevée que dans les autres masses d'air, notamment océanique (8.14 et 0.72 Mm^{-1}).

A partir des mesures optiques du PdD, il a été ensuite possible d'évaluer que **l'efficacité radiative des aérosols** sur ce site est en moyenne de $-42.4 \pm 11.3 \text{ W.m}^{-2}.\tau^{-1}$ au sommet de l'atmosphère, impliquant un forçage radiatif direct moyen négatif et un refroidissement de l'atmosphère par les aérosols. Une cartographie de l'efficacité radiative souligne la forte différence, pour une même épaisseur optique, de l'effet radiatif des aérosols anthropiques (refroidissement net) comparés aux aérosols d'origines océaniques et africaines (refroidissement plus faible).

La longue série de mesures au Puy de Dôme a également permis de comparer la distribution en taille calculée par le photomètre à celle mesurée in situ sur plusieurs mois. La corrélation entre ces deux méthodes de mesures pour le mode fin est démontrée. Cependant, il en ressort que le photomètre sous-estime de 20% le diamètre du mode accumulation, sauf en cas d'atmosphère inhomogène et de strates aérosols fortement dépolarisants à des altitudes différentes de celle du Puy de Dôme. La sous-estimation de la taille des particules par le photomètre est potentiellement plus importante que les 20% estimés, car la distribution en taille in situ est en réalité plus élevée à cause de la croissance hygroscopique des aérosols non prise en compte dans cette comparaison. Une des hypothèses pour expliquer cette différence importante est le calcul de la distribution en taille de l'aérosol par le photomètre avec un seul mode fin, qui engloberait à la fois le mode accumulation et le mode Aitken, omniprésents dans les distributions en taille au PdD.

L'impact radiatif direct étant fonction de la structure de l'atmosphère, un sous-objectif de la thèse était de fournir des profils verticaux de masse d'aérosols, dont les propriétés optiques sont connues. La co-localisation de mesures in situ en altitude et de mesures de télédétection passive et active sur de longues périodes de temps à été l'occasion de générer des paramétrisations de variables nécessaires à la restitution de ces profils (rapport lidar, rapport masse-extinction) en fonction des conditions physico-chimiques (types de masse d'air) et météorologiques (humidité relative) de l'atmosphère. Nous avons dans un premier temps décrit, sous forme d'article scientifique publié (Hervo et al. 2012, ACP), comment, sur un cas d'étude, il est possible d'utiliser la **synergie entre l'instrumentation in situ et de télédétection** pour **restituer un profil vertical d'aérosol**. Le passage de poussières volcaniques au-dessus de la station du puy de Dôme au cours de l'éruption de l'Eyjafjalla en 2010 a donc été l'occasion de détailler la méthode multi instrumentale de restitution des propriétés microphysiques et optiques de poussières volcaniques. Cette méthode a été comparée à des mesures aéroportées et aux données du modèle FLEXPART, donnant de bons résultats.

Dans un deuxième temps, nous avons amélioré cette méthode afin de pouvoir mieux comprendre **l'impact de l'hygroscopicité sur les propriétés optiques**. Nous avons mené cette étude sur une longue période. Il en ressort que si l'hygroscopicité est prise en compte, l'extinction des aérosols à humidité ambiante est, en moyenne, multipliée par 3.3 par rapport aux mesures en atmosphère sèche. Pour la première fois à notre connaissance, nous mettons en évidence une forte variabilité saisonnière et spatiale du facteur d'accroissement hygroscopique de plusieurs facteurs optiques. Une paramétrisation du facteur d'accroissement hygroscopique du coefficient de diffusion en fonction du type de masse d'air a été calculée.

A partir de la climatologie des paramètres optiques et de leur facteur d'accroissement hygroscopiques calculés pendant cette thèse, nous avons pu alors évaluer quel était **l'impact de l'hygroscopicité sur l'efficacité radiative de l'aérosol**. Nous avons ainsi montré que, si on

ne tient pas compte de l'hygroscopicité lors du calcul de l'efficacité radiative directe avec des mesures in situ sèche, un biais moyen de 9% est introduit. De plus, nous avons montré qu'à 90% d'humidité, la différence entre l'efficacité radiative sèche et humide, $d\Delta E$, est différente en fonction des masses d'air. Si les particules sont originaires de la zone océanique modifiée, $d\Delta E$ est positif ($3.6 \text{ W.m}^{-2}.\tau^{-1}$). L'efficacité radiative provoquée par l'hygroscopicité est donc positive. Au contraire, pour des aérosols océaniques, cette efficacité est négative ($-0.9 \text{ W.m}^{-2}.\tau^{-1}$). **Lorsque les particules absorbent de l'eau, les propriétés radiatives intrinsèques des particules sont modifiées.**

Enfin, l'aboutissement de ce travail est **la quantification l'impact de l'hygroscopicité sur le forçage radiatif des aérosols**. Nous avons montré qu'en tenant compte de l'hygroscopicité au Puy de Dôme, l'impact radiatif direct des aérosols est **75% plus important en utilisant les mesures à humidité ambiante** qu'en utilisant les mesures sèches. A 90% d'humidité, la différence est de 180%. Cette valeur est dépendante de la saison et du type d'aérosol. Il est donc primordial de tenir compte de l'eau contenue dans les aérosols pour calculer l'impact radiatif des aérosols à partir des mesures in situ. Nous avons également montré que, contrairement aux instruments de télédétection, les mesures in situ permettent d'étudier le processus de croissance hygroscopique séparément des propriétés optiques intrinsèques de l'aérosol. Cela permet de différencier l'impact radiatif de l'eau contenue dans les aérosols par rapport à l'impact des aérosols seuls.

7.2 Perspectives

De ce travail, utilisant un large panel instrumental et des outils de modélisation, il ressort de nombreuses perspectives.

La première d'entre elle est de combiner nos résultats avec **un code de transfert radiatif**. Nous avons pu quantifier l'impact de l'hygroscopicité sur le forçage radiatif mais en utilisant le forçage radiatif avec un calcul simple, mais basé sur plusieurs hypothèses (ciel clair, distribution verticale des aérosols et de la vapeur d'eau homogène). L'utilisation d'un code de transfert radiatif, tenant compte du **profil vertical des aérosols et de l'humidité**, permettra une meilleure caractérisation de cet impact. D'autre part, la sphéricité des particules influence fortement la fonction de phase des aérosols, donc le rapport Lidar, le coefficient d'asymétrie et le forçage radiatif. Si l'aérosol est présent dans l'atmosphère en dessous du point de déliquescence, il serait souhaitable d'affiner l'algorithme mis en place afin de prendre en compte la non-sphéricité des particules, par exemple avec un code utilisant la méthode T-matrix (Mishchenko et al., 1996). Cela permettrait d'augmenter la précision de nos calculs, particulièrement dans le cas d'intenses événements de particules désertiques ou volcaniques. L'utilisation d'un néphélomètre polaire lors de la prochaine campagne intensive en janvier 2013, permettra de connaître la fonction de phase des aérosols et donc d'avoir plus d'information sur la sphéricité des particules.

Pour améliorer la restitution verticale du rapport Lidar, une perspective à très court terme est de reprendre les rapports Lidar calculés au cours de cette thèse (avec les mesures in situ et photométriques) et de les comparer avec les mesures Raman du Lidar. L'intégration ressentie des mesures effectuées au puy de Dôme dans le réseau EARLINET a permis d'améliorer leurs qualités. Les algorithmes mis en places vont aussi permettre d'étudier et de paramétrer la variation du rapport masse extinction en fonction de l'humidité d'améliorer les restitutions de masses à partir des profils d'extinction Lidar.

Enfin, ce travail pourra servir à une échelle plus large, pour améliorer la restitution de l'effet radiatif direct des aérosols dans des modèles globaux. En effet, le calcul de cet impact dans les modèles globaux est très sensible à l'interaction entre les aérosols et la vapeur d'eau (Bian et al., 2009). Des comparaisons entre modèle et mesures in situ sont donc indispensables pour réduire les incertitudes et améliorer notre connaissance sur le climat.

Bibliographie

Ackerman, A. S., Kirkpatrick, M. P., Stevens, D. E. and Toon, O. B.: The impact of humidity above stratiform clouds on indirect aerosol climate forcing, *Nature*, 432(7020), 1014–1017, 2004.

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.

Ackermann, J.: The Extinction-to-Backscatter Ratio of Tropospheric Aerosol: A Numerical Study, *J. Atmos. Oceanic Technol.*, 15(4), 1043–1050, doi:10.1175/1520-0426(1998)015<1043:TETBRO>2.0.CO;2, 1998.

Adachi, K., Chung, S. H. and Buseck, P. R.: Shapes of soot aerosol particles and implications for their effects on climate, *J. Geophys. Res.*, 115(D15), D15206, doi:10.1029/2009JD012868, 2010.

Adam, M., Putaud, J. P., Martins dos Santos, S., Dell'Acqua, A. and Gruening, C.: Aerosol hygroscopicity at a regional background site (Ispra) in Northern Italy, *Atmos. Chem. Phys.*, 12(13), 5703–5717, doi:10.5194/acp-12-5703-2012, 2012.

Albrecht, B. A.: Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness., *Science (New York, NY)*, 245(4923), 1227, 1989.

Allan, J. D., Delia, A. E., Coe, H., Bower, K. N., Alfarra, M. R., Jimenez, J. L., Middlebrook, A. M., Drewnick, F., Onasch, T. B., Canagaratna, M. R., Jayne, J. T., et al.: A generalised method for the extraction of chemically resolved mass spectra from Aerodyne aerosol mass spectrometer data, *Journal of Aerosol Science*, 35(7), 909–922, doi:10.1016/j.jaerosci.2004.02.007, 2004.

Anderson, T. L., Charlson, R. J., Bellouin, N., Boucher, O., Chin, M., Christopher, S. A., Haywood, J., Kaufman, Y. J., Kinne, S., Ogren, J. A., Remer, L. A., et al.: An “A-Train” Strategy for Quantifying Direct Climate Forcing by Anthropogenic Aerosols, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 86(12), 1795–1809, doi:10.1175/BAMS-86-12-1795, 2005.

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

Anderson, T. L., Covert, D. S., Wheeler, J. D., Harris, J. M., Perry, K. D., Trost, B. E., Jaffe, D. J. and Ogren, J. A.: Aerosol backscatter fraction and single scattering albedo: Measured values and uncertainties at a coastal station in the Pacific Northwest, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 104, 26793–26807, doi:Article; Proceedings Paper, 1999.

Anderson, T. L., Masonis, S. J., Covert, D. S., Charlson, R. J. and Rood, M. J.: In situ measurement of the aerosol extinction-to-backscatter ratio at a polluted continental site, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 105(D22), 26907–26915, doi:10.1029/2000JD900400, 2000.

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

Andreae, M. O.: Raising dust in the greenhouse, *Nature*, 380(6573), 389–90, 1996.

Andreae, M. O., Jones, C. D. and Cox, P. M.: Strong present-day aerosol cooling implies a hot future, *Nature*, 435(7046), 1187–1190, doi:10.1038/nature03671, 2005.

- 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., et al.: Climatology of aerosol radiative properties in the free troposphere, *Atmospheric Research*, 102(4), 365–393, doi:10.1016/j.atmosres.2011.08.017, 2011.
- Andrews, E., Sheridan, P. J., Fiebig, M., McComiskey, A., Ogren, J. A., Arnott, P., Covert, D., Elleman, R., Gasparini, R., Collins, D., Jonsson, H., et al.: Comparison of methods for deriving aerosol asymmetry parameter, *J. Geophys. Res.*, 111, D05S04, doi:10.1029/2004jd005734, 2006.
- Ansmann, A., Tesche, M., Groß, S., Freudenthaler, V., Seifert, P., Hiebsch, A., Schmidt, J., Wandinger, U., Mattis, I., Müller, D. and Wiegner, M.: The 16 April 2010 major volcanic ash plume over central Europe: EARLINET lidar and AERONET photometer observations at Leipzig and Munich, Germany, *Geophys. Res. Lett.*, 37, L13810, doi:10.1029/2010gl043809, 2010.
- Ansmann, A., Tesche, M., Seifert, P., Groß, S., Freudenthaler, V., Apituley, A., Wilson, K. M., Serikov, I., Linné, H., Heinold, B., Hiebsch, A., et al.: 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.
- Ansmann, A., Wagner, F., Müller, D., Althausen, D., Herber, A., Hoyningen-Huene, W. von and Wandinger, U.: European pollution outbreaks during ACE 2: Optical particle properties inferred from multiwavelength lidar and star-Sun photometry, *J. Geophys. Res.*, 107(D15), 4259, doi:10.1029/2001JD001109, 2002.
- Arnott, W. P., Hamasha, K., Moosmüller, H., Sheridan, P. J. and Ogren, J. A.: Towards Aerosol Light-Absorption Measurements with a 7-Wavelength Aethalometer: Evaluation with a Photoacoustic Instrument and 3-Wavelength Nephelometer, *Aerosol Science and Technology*, 39(1), 17–29, doi:10.1080/027868290901972, 2005.
- Asmi, A., Collaud Coen, M., Ogren, J. A., Andrews, E., Sheridan, P., Jefferson, A., Weingartner, E., Baltensperger, U., Bukowiecki, N., Lihavainen, H., Kivekäs, N., et al.: Aerosol decadal trends - Part 2: In-situ aerosol particle number concentrations at GAW and ACTRIS stations, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 12(8), 20849–20899, doi:10.5194/acpd-12-20849-2012, 2012a.
- Asmi, E., Freney, E., Hervo, M., Picard, D., Rose, C., Colomb, A. and Sellegri, K.: Aerosol cloud activation in summer and winter at puy-de-Dôme high altitude site in France, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 12(9), 23039–23091, doi:10.5194/acpd-12-23039-2012, 2012b.
- Augustine, J. A., Hodges, G. B., Dutton, E. G., Michalsky, J. J. and Cornwall, C. R.: An aerosol optical depth climatology for NOAA's national surface radiation budget network (SURFRAD), *J. Geophys. Res.*, 113(D11), D11204, doi:10.1029/2007JD009504, 2008.
- Baars, H., Ansmann, A., Engelmann, R. and Althausen, D.: Continuous monitoring of the boundary-layer top with lidar, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8, 7281–7296, doi:Article, 2008.
- Bauer, S. E. and Menon, S.: Aerosol direct, indirect, semidirect, and surface albedo effects from sector contributions based on the IPCC AR5 emissions for preindustrial and present-day conditions, *Journal of Geophysical Research*, 117(D1), doi:10.1029/2011JD016816 [online] Available from: <http://pubs.giss.nasa.gov/abs/ba00400a.html> (Accessed 22 February 2012), 2012.
- Bayazit, M. and Önöz, B.: To prewhiten or not to prewhiten in trend analysis?, *Hydrological Sciences Journal*, 52(4), 611–624, doi:10.1623/hysj.52.4.611, 2007.
- Bergstrom, R. W. and Russell, P. B.: Estimation of aerosol direct radiative effects over the mid-latitude North Atlantic from satellite and in situ measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 26(12), 1731–1734, doi:10.1029/1999GL900330, 1999.

Bian, H., Chin, M., Rodriguez, J. M., Yu, H., Penner, J. E. and Strahan, S.: Sensitivity of aerosol optical thickness and aerosol direct radiative effect to relative humidity, *Atmos. Chem. Phys.*, 9(7), 2375–2386, doi:10.5194/acp-9-2375-2009, 2009.

Bockmann, C., Wandinger, U., Ansmann, A., Bosenberg, J., Amiridis, V., Boselli, A., Delaval, A., De Tomasi, F., Frioud, M., Grigorov, I. V., Hagard, A., et al.: Aerosol lidar intercomparison in the framework of the EARLINET project. 2. Aerosol backscatter algorithms, *Applied Optics*, 43, 977–989, doi:Article, 2004.

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

Bond, T. C., Covert, D. S. and Müller, T.: Truncation and Angular-Scattering Corrections for Absorbing Aerosol in the TSI 3563 Nephelometer, *Aerosol Science and Technology*, 43(9), 866–871, doi:10.1080/02786820902998373, 2009.

Bond, T. C., Habib, G. and Bergstrom, R. W.: Limitations in the enhancement of visible light absorption due to mixing state, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 111, doi:Article [online] Available from: [://000241866200010](http://000241866200010), 2006.

Boulon, J., Sellegri, K., Hervo, M. and Laj, P.: Observations of nucleation of new particles in a volcanic plume, *Proceedings of the National Academy of Sciences*, doi:10.1073/pnas.1104923108 [online] Available from: <http://www.pnas.org/content/early/2011/06/30/1104923108.abstract>, 2011a.

Boulon, J., Sellegri, K., Hervo, M., Picard, D., Pichon, J. M., Fréville, P. and Laj, P.: Investigation of nucleation events vertical extent: a long term study at two different altitude sites, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 5625–5639, doi:10.5194/acp-11-5625-2011, 2011b.

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, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 69(1), 47–66, doi:10.1007/s10874-012-9229-2, 2012.

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

Bucholtz, A.: Rayleigh-scattering calculations for the terrestrial atmosphere, *Appl. Opt.*, 34(15), 2765–2773, doi:10.1364/AO.34.002765, 1995.

Bukowiecki, N., Zieger, P., Weingartner, E., Jurányi, Z., Gysel, M., Neining, B., Schneider, B., Hueglin, C., Ulrich, A., Wichser, A., Henne, S., et al.: Ground-based and airborne in-situ measurements of the Eyjafjallajökull volcanic aerosol plume in Switzerland in spring 2010, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 10011–10030, doi:10.5194/acp-11-10011-2011, 2011.

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

Carrico, C. M., Rood, M. J., Ogren, J. A., Neusüß, C., Wiedensohler, A. and Heintzenberg, J.: Aerosol Optical properties at Sagres, Portugal during ACE-2, *Tellus B*, 52(2), 694–715, doi:10.1034/j.1600-0889.2000.00049.x, 2000.

Casadevall, T. J.: THE 1989-1990 ERUPTION OF REDOUBT VOLCANO, ALASKA - IMPACTS ON AIRCRAFT OPERATIONS, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 62, 301–316, doi:Article, 1994.

Cattrall, C., Reagan, J., Thome, K. and Dubovik, O.: Variability of aerosol and spectral lidar and backscatter and extinction ratios of key aerosol types derived from selected Aerosol Robotic Network locations, *J. Geophys. Res.*, 110(D10), D10S11, doi:10.1029/2004JD005124, 2005.

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.

Chazette, P.: The monsoon aerosol extinction properties at Goa during INDOEX as measured with lidar, *J. Geophys. Res.*, 108(D6), 4187, doi:10.1029/2002JD002074, 2003.

Cheng, Y. F., Wiedensohler, A., Eichler, H., Heintzenberg, J., Tesche, M., Ansmann, A., Wendisch, M., Su, H., Althausen, D., Herrmann, H., Gnauk, T., et al.: Relative humidity dependence of aerosol optical properties and direct radiative forcing in the surface boundary layer at Xinken in Pearl River Delta of China: An observation based numerical study, *Atmospheric Environment*, 42(25), 6373–6397, doi:10.1016/j.atmosenv.2008.04.009, 2008.

Chylek, P. and Wong, J.: Effect of absorbing aerosols on global radiation budget, *Geophys. Res. Lett.*, 22(8), 929–931, doi:10.1029/95GL00800, 1995.

Collaud Coen, M., Andrews, E., Asmi, A., Baltensperger, U., Bukowiecki, N., Day, D., Fiebig, M., Fjaeraa, A. M., Flentje, H., Hyvärinen, A., Jefferson, A., et al.: Aerosol decadal trends - Part 1: In-situ optical measurements at GAW and IMPROVE stations, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 12(8), 20785–20848, doi:10.5194/acpd-12-20785-2012, 2012.

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., et al.: Minimizing light absorption measurement artifacts of the Aethalometer: evaluation of five correction algorithms, *Atmospheric Measurement Techniques*, 3(2), 457–474, doi:10.5194/amt-3-457-2010, 2010.

Collaud Coen, M., Weingartner, E., Furger, M., Nyeki, S., Prévôt, A. S. H., Steinbacher, M. and Baltensperger, U.: Aerosol climatology and planetary boundary influence at the Jungfraujoch analyzed by synoptic weather types, *Atmos. Chem. Phys.*, 11(12), 5931–5944, doi:10.5194/acp-11-5931-2011, 2011.

Collaud Coen, M., Weingartner, E., Nyeki, S., Cozic, J., Henning, S., Verheggen, B., Gehrig, R. and Baltensperger, U.: Long-term trend analysis of aerosol variables at the high-alpine site Jungfraujoch, *J. Geophys. Res.*, 112, D13213, doi:10.1029/2006jd007995, 2007.

Covert, D. S., Charlson, R. J. and Ahlquist, N. C.: A Study of the Relationship of Chemical Composition and Humidity to Light Scattering by Aerosols, *Journal of Applied Meteorology*, 11(6), 968–976, doi:10.1175/1520-0450(1972)011<0968:ASOTRO>2.0.CO;2, 1972.

Cuesta, J., Flamant, P. H. and Flamant, C.: Synergetic technique combining elastic backscatter lidar data and sunphotometer AERONET inversion for retrieval by layer of aerosol optical and microphysical properties, *Applied Optics*, 47, 4598–4611, doi:Article, 2008.

D’Almeida, G. A., Koepke, P. and Shettle, E. P.: *Atmospheric Aerosols: Global Climatology and Radiative Characteristics*, A Deepak Pub., 1991.

Delbarre, H., Augustin, P., Saïd, F., Campistron, B., Bénéch, B., Lohou, F., Puygrenier, V., Moppert, C., Cousin, F., Fréville, P. and Fréjafon, E.: Ground-based remote sensing observation of the complex behaviour of the Marseille boundary layer during ESCOMPTE, *Atmospheric Research*, 74(1–4), 403–433, doi:10.1016/j.atmosres.2004.04.007, 2005.

Delene, D. J. and Ogren, J. A.: Variability of Aerosol Optical Properties at Four North American Surface Monitoring Sites, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 59(6), 1135–1150, doi:10.1175/1520-0469(2002)059<1135:VOAOPA>2.0.CO;2, 2002.

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 Resources Laboratory, Silver Spring, MD., 2012.

Drewnick, F., Hings, S. S., DeCarlo, P., Jayne, J. T., Gonin, M., Fuhrer, K., Weimer, S., Jimenez, J. L., Demerjian, K. L., Borrmann, S. and Worsnop, D. R.: A New Time-of-Flight Aerosol Mass Spectrometer (TOF-AMS)—Instrument Description and First Field Deployment, *Aerosol Science and Technology*, 39(7), 637–658, doi:10.1080/02786820500182040, 2005.

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, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 59, 590–608, doi:Review, 2002.

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

Dubovik, O., Sinyuk, A., Lapyonok, T., Holben, B. N., Mishchenko, M., Yang, P., Eck, T. F., Volten, H., Muñoz, O., Veihelmann, B., Van der Zande, W. J., et al.: Application of spheroid models to account for aerosol particle nonsphericity in remote sensing of desert dust, *J. Geophys. Res.*, 111, D11208, doi:10.1029/2005jd006619, 2006.

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.

Duflot, V., Royer, P., Chazette, P., Baray, J.-L., Courcoux, Y. and Delmas, R.: Marine and biomass burning aerosols in the southern Indian Ocean: Retrieval of aerosol optical properties from shipborne lidar and Sun photometer measurements, *J. Geophys. Res.*, 116(D18), D18208, doi:10.1029/2011JD015839, 2011.

Duplissy, J., Gysel, M., Sjogren, S., Meyer, N., Good, N., Kammermann, L., Michaud, V., Weigel, R., Martins dos Santos, S., Gruening, C., Villani, P., et al.: Intercomparison study of six HTDMAs: results and recommendations, *Atmos. Meas. Tech.*, 2, 363–378, doi:10.5194/amt-2-363-2009, 2009.

Eichler, H., Cheng, Y. F., Birmili, W., Nowak, A., Wiedensohler, A., Brüggemann, E., Gnauk, T., Herrmann, H., Althausen, D., Ansmann, A., Engelmann, R., et al.: Hygroscopic properties and extinction of aerosol particles at ambient relative humidity in South-Eastern China, *Atmospheric Environment*, 42(25), 6321–6334, doi:10.1016/j.atmosenv.2008.05.007, 2008.

Emeis, S., Forkel, R., Junkermann, W., Schäfer, K., Flentje, H., Gilge, S., Fricke, W., Wiegner, M., Freudenthaler, V., Groß, S., Ries, L., et al.: Measurement and simulation of the 16/17 April 2010 Eyjafjallajökull volcanic ash layer dispersion in the northern Alpine region, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 2689–2701, doi:10.5194/acp-11-2689-2011, 2011.

Fierz-Schmidhauser, R., Zieger, P., Gysel, M., Kammermann, L., DeCarlo, P. F., Baltensperger, U. and Weingartner, E.: Measured and predicted aerosol light scattering enhancement factors at the high alpine site Jungfraujoch, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 2319–2333, doi:10.5194/acp-10-2319-2010, 2010a.

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, 2010b.

Flentje, H., Claude, H., Elste, T., Gilge, S., Köhler, U., Plass-Dülmer, C., Steinbrecht, W., Thomas, W., Werner, A. and Fricke, W.: The Eyjafjallajökull eruption in April 2010 – detection of volcanic plume using in-situ measurements, ozone sondes and lidar-ceilometer profiles, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 10085–10092, doi:10.5194/acp-10-10085-2010, 2010.

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.

- García, O. E., Díaz, J. P., Expósito, F. J., Díaz, 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(11), 5129–5145, doi:10.5194/acp-12-5129-2012, 2012.
- Gassó, S., Hegg, D. A., Covert, D. S., Collins, D., Noone, K. J., Öström, E., Schmid, B., Russell, P. B., Livingston, J. M., Durkee, P. A. and Jonsson, H.: Influence of humidity on the aerosol scattering coefficient and its effect on the upwelling radiance during ACE-2, *Tellus B*, 52, 546–567, 2000.
- Gasteiger, J., Groß, S., Freudenthaler, V. and Wiegner, M.: Volcanic ash from Iceland over Munich: mass concentration retrieved from ground-based remote sensing measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 2209–2223, doi:10.5194/acp-11-2209-2011, 2011.
- Giannakaki, E., Balis, D. S., Amiridis, V. and Zerefos, C.: Optical properties of different aerosol types: seven years of combined Raman-elastic backscatter lidar measurements in Thessaloniki, Greece, *Atmos. Meas. Tech.*, 3, 569–578, doi:10.5194/amt-3-569-2010, 2010.
- Gilbert, R. O.: *Statistical Methods for Environmental Pollution Monitoring*, John Wiley and Sons., 1987.
- Goloub, P., Tanre, D., Deuze, J. L., Herman, M., Marchand, A. and Breon, F.-M.: Validation of the first algorithm applied for deriving the aerosol properties over the ocean using the POLDER/ADEOS measurements, *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 37(3), 1586–1596, doi:10.1109/36.763270, 1999.
- Gouhier, M., P., L., Harris, P., Guéhenneux, Y., Bergès, J. C. and Cacault, P.: Properties of the Eyjafjallajökull ash cloud: insights from satellite-based measurements, *Geology*, in review.
- Grover, B. D., Kleinman, M., Eatough, N. L., Eatough, D. J., Hopke, P. K., Long, R. W., Wilson, W. E., Meyer, M. B. and Ambs, J. L.: Measurement of total PM_{2.5} mass (nonvolatile plus semivolatile) with the Filter Dynamic Measurement System tapered element oscillating microbalance monitor, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 110, doi:Article [online] Available from: [:/WOS:000228378300001](https://doi.org/10.1029/2005JD006401), 2005.
- Hänel, G.: The ratio of the extinction coefficient to the mass of atmospheric aerosol particles as a function of the relative humidity, *Journal of Aerosol Science*, 3(6), 455–460, doi:10.1016/0021-8502(72)90075-4, 1972.
- Hasan, H. and Dzubay, T. G.: Apportioning light extinction coefficients to chemical species in atmospheric aerosol, *Atmospheric Environment* (1967), 17(8), 1573–1581, doi:10.1016/0004-6981(83)90310-4, 1983.
- Haywood, J. and Boucher, O.: Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: A review, *Reviews of Geophysics*, 38(4), 513–543, doi:10.1029/1999RG000078, 2000.
- Haywood, J., Francis, P., Dubovik, O., Glew, M. and Holben, B.: Comparison of aerosol size distributions, radiative properties, and optical depths determined by aircraft observations and Sun photometers during SAFARI 2000, *J. Geophys. Res.*, 108(D13), 8471, doi:10.1029/2002JD002250, 2003.
- 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.
- Hervo, M.: *Interprétation des mesures LIDAR : Estimation de la Hauteur de Couche Limite Atmosphérique*, Rapport de Master, Université Blaise Pascal. [online] Available from: <https://docs.google.com/open?id=0B9Yh2-lWN4y0a0xnVmZ5N1hyM3M>, 2009.
- Hess, M., Koepke, P. and Schult, I.: Optical properties of aerosols and clouds: The software package OPAC, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 79, 831–844, doi:Article, 1998.
- 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., et al.: AERONET—A Federated Instrument Network and Data Archive for Aerosol Characterization, *Remote Sensing of Environment*, 66(1), 1–16, doi:10.1016/S0034-4257(98)00031-5, 1998.

IPCC, C. C.: IPCC Fourth Assessment Report (AR4), Geneva, Intergovernmental Panel on Climate Change, 2007.

Jacobson, M. Z.: Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols, *Nature*, 409(6821), 695–697, doi:10.1038/35055518, 2001.

Kalivitis, N., Bougiatioti, A., Kouvarakis, G. and Mihalopoulos, N.: Long term measurements of atmospheric aerosol optical properties in the Eastern Mediterranean, *Atmospheric Research*, 102(3), 351–357, doi:10.1016/j.atmosres.2011.08.013, 2011.

Kaufman, Y. J., Tanré, D., Boucher, O. and others: A satellite view of aerosols in the climate system, *Nature*, 419(6903), 215–223, 2002.

Kent, G. S., Trepte, C. R. and Lucker, P. L.: Long-term Stratospheric Aerosol and Gas Experiment I and II measurements of upper tropospheric aerosol extinction, *J. Geophys. Res.*, 103(D22), 28863–28,874, doi:10.1029/98JD02583, 1998.

Klett, J. D.: LIDAR INVERSION WITH VARIABLE BACKSCATTER EXTINCTION RATIOS, *Applied Optics*, 24, 1638–1643, doi:Article, 1985.

Koch, D. and Del Genio, A. D.: Black carbon semi-direct effects on cloud cover: review and synthesis, *Atmos. Chem. Phys.*, 10(16), 7685–7696, doi:10.5194/acp-10-7685-2010, 2010.

Kotchenruther, R. A. and Hobbs, P. V.: Humidification factors of aerosols from biomass burning in Brazil, *J. Geophys. Res.*, 103(D24), 32081–32,089, doi:10.1029/98JD00340, 1998.

Kotchenruther, R. A., Hobbs, P. V. and Hegg, D. A.: Humidification factors for atmospheric aerosols off the mid-Atlantic coast of the United States, *J. Geophys. Res.*, 104(D2), 2239–2251, doi:10.1029/98JD01751, 1999.

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.

Laj, P., Klausen, J., Bilde, M., Plaß-Duelmer, C., Pappalardo, G., Clerbaux, C., Baltensperger, U., Hjorth, J., Simpson, D., Reimann, S., Coheur, P. F., et al.: Measuring atmospheric composition change, *Atmospheric Environment*, 43, 5351–5414, doi:DOI: 10.1016/j.atmosenv.2009.08.020, 2009.

Latham, T. L., Kumar, P., Nenes, A., Dufek, J., Sokolik, I. N., Trail, M. and Russell, A.: Hygroscopic properties of volcanic ash, *Geophys. Res. Lett.*, 38, L11802, doi:10.1029/2011gl047298, 2011.

Lebensperger, E. M., Mickley, L. J., Jacob, D. J., Chen, W.-T., Seinfeld, J. H., Nenes, A., Adams, P. J., Streets, D. G., Kumar, N. and Rind, D.: Climatic effects of 1950–2050 changes in US anthropogenic aerosols – Part 1: Aerosol trends and radiative forcing, *Atmos. Chem. Phys.*, 12(7), 3333–3348, doi:10.5194/acp-12-3333-2012, 2012.

Léon, J.-F., Chazette, P., Pelon, J., Dulac, F. and Randriamiarisoa, H.: Aerosol direct radiative impact over the INDOEX area based on passive and active remote sensing, *J. Geophys. Res.*, 107(D19), 8006, doi:10.1029/2000JD000116, 2002.

Lesins, G., Chylek, P. and Lohmann, U.: A study of internal and external mixing scenarios and its effect on aerosol optical properties and direct radiative forcing, *J. Geophys. Res.*, 107(D10), 4094, doi:10.1029/2001JD000973, 2002.

Lettino, A., Caggiano, R., Fiore, S., Macchiato, M., Sabia, S. and Trippetta, S.: Eyjafjallajökull volcanic ash in southern Italy, *Atmospheric Environment*, 48, 97–103, doi:10.1016/j.atmosenv.2011.05.037, 2012.

Li, L. and Chen, D.-R.: Performance study of a DC-corona-based particle charger for charge conditioning, *Journal of Aerosol Science*, 42, 87–99, doi:10.1016/j.jaerosci.2010.12.001, 2011.

- Li-Jones, X., Maring, H. B. and Prospero, J. M.: Effect of relative humidity on light scattering by mineral dust aerosol as measured in the marine boundary layer over the tropical Atlantic Ocean, *J. Geophys. Res.*, 103(D23), 31113–31,121, doi:10.1029/98JD01800, 1998.
- Liu, H. and Pinker, R. T.: Radiative fluxes from satellites: Focus on aerosols, *J. Geophys. Res.*, 113(D8), D08208, doi:10.1029/2007JD008736, 2008.
- Liu, H., Pinker, R. T., Chin, M., Holben, B. and Remer, L.: Synthesis of information on aerosol optical properties, *J. Geophys. Res.*, 113(D7), D07206, doi:10.1029/2007JD008735, 2008.
- Lohmann, U., Rotstain, L., Storelvmo, T., Jones, A., Menon, S., Quaas, J., Ekman, A. M. L., Koch, D. and Ruedy, R.: Total aerosol effect: radiative forcing or radiative flux perturbation?, *Atmos. Chem. Phys.*, 10(7), 3235–3246, doi:10.5194/acp-10-3235-2010, 2010.
- Lyamani, H., Olmo, F. J. and Alados-Arboledas, L.: Physical and optical properties of aerosols over an urban location in Spain: seasonal and diurnal variability, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 239–254, doi:10.5194/acp-10-239-2010, 2010.
- Mahowald, N. M., Ballantine, J. A., Feddema, J. and Ramankutty, N.: Global trends in visibility: implications for dust sources, *Atmos. Chem. Phys.*, 7(12), 3309–3339, doi:10.5194/acp-7-3309-2007, 2007.
- Mallet, M.: Etude des propriétés microphysiques et optiques de l'aérosol en zone périurbaine durant ESCOMPTE. Estimation de l'impact radiatif direct, Thèse de l'université de Toulon et du Var., 2003.
- Mallet, M., Gomes, L., Solmon, F., Sellegri, K., Pont, V., Roger, J. C., Missamou, T. and Piazzola, J.: Calculation of key optical properties of the main anthropogenic aerosols over the Western French coastal Mediterranean Sea, *Atmospheric Research*, 101(1–2), 396–411, doi:10.1016/j.atmosres.2011.03.008, 2011.
- Mallet, M., Roger, J. C., Despiiau, S., Dubovik, O. and Putaud, J. P.: Microphysical and optical properties of aerosol particles in urban zone during ESCOMPTE, *Atmospheric Research*, 69(1–2), 73–97, doi:10.1016/j.atmosres.2003.07.001, 2003.
- Marq, S., Laj, P., Roger, J. C., Villani, P., Sellegri, K., Bonasoni, P., Marinoni, A., Cristofanelli, P., Verza, G. P. and Bergin, M.: Aerosol optical properties and radiative forcing in the high Himalaya based on measurements at the Nepal Climate Observatory-Pyramid site (5079 m a.s.l.), *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 5859–5872, doi:10.5194/acp-10-5859-2010, 2010.
- Marshall, S. F., Covert, D. S. and Charlson, R. J.: Relationship between asymmetry parameter and hemispheric backscatter ratio: implications for climate forcing by aerosols, *Appl. Opt.*, 34, 6306–6311, 1995.
- Martucci, G., Matthey, R., Mitev, V. and Richner, H.: Frequency of Boundary-Layer-Top Fluctuations in Convective and Stable Conditions Using Laser Remote Sensing, *Boundary-Layer Meteorol.*, 135(2), 313–331, doi:10.1007/s10546-010-9474-3, 2010.
- Matthais, V., Freudenthaler, V., Amodeo, A., Balin, I., Balis, D., Bosenberg, J., Chaikovsky, A., Chourdakis, G., Comeron, A., Delaval, A., De Tomasi, F., et al.: Aerosol lidar intercomparison in the framework of the EARLINET project. 1. Instruments, *Applied Optics*, 43, 961–976, doi:Article, 2004.
- 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.
- Mattis, I., Müller, D., Ansmann, A., Wandinger, U., Preißler, J., Seifert, P. and Tesche, M.: Ten years of multiwavelength Raman lidar observations of free-tropospheric aerosol layers over central Europe: Geometrical properties and annual cycle, *J. Geophys. Res.*, 113, D20202, doi:10.1029/2007jd009636, 2008.

Mätzler, C.: MATLAB functions for Mie scattering and absorption, Research Report 2002-2008 Institut für Angewandte Physik, Bern., 2002.

McConnell, C. L., Highwood, E. J., Coe, H., Formenti, P., Anderson, B., Osborne, S., Nava, S., Desboeufs, K., Chen, G. and Harrison, M. a. J.: Seasonal variations of the physical and optical characteristics of Saharan dust: Results from the Dust Outflow and Deposition to the Ocean (DODO) experiment, *J. Geophys. Res.*, 113(D14), D14S05, doi:10.1029/2007JD009606, 2008.

McKendry, I. G., Strawbridge, K. B., O'Neill, N. T., Macdonald, A. M., Liu, P. S. K., Leaitch, W. R., Anlauf, K. G., Jaegle, L., Fairlie, T. D. and Westphal, D. L.: Trans-Pacific transport of Saharan dust to western North America: A case study, *J. Geophys. Res.*, 112(D1), D01103, doi:10.1029/2006JD007129, 2007.

Michaud, V.: Etude des propriétés hygroscopiques des aérosols atmosphériques, Université Blaise Pascal - Clermont-Ferrand II, 10 December. [online] Available from: <http://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00724536> (Accessed 19 September 2012), 2009.

Michel Flores, J., Bar-Or, R. Z., Bluvshstein, N., Abo-Riziq, A., Kostinski, A., Borrmann, S., Koren, I., Koren, I. and Rudich, Y.: Absorbing aerosols at high relative humidity: linking hygroscopic growth to optical properties, *Atmos. Chem. Phys.*, 12(12), 5511–5521, doi:10.5194/acp-12-5511-2012, 2012.

Miffre, A., David, G., Thomas, B., Rairoux, P., Fjaeraa, A. M., Kristiansen, N. I. and Stohl, A.: Volcanic aerosol optical properties and phase partitioning behavior after long-range advection characterized by UV-Lidar measurements, *Atmospheric Environment*, 48, 76–84, doi:10.1016/j.atmosenv.2011.03.057, 2012.

Ministère de l'écologie: Bilan de la qualité de l'air en France en 2011, [online] Available from: <http://www.developpement-durable.gouv.fr/Bilan-de-la-qualite-de-l-air-en,29242.html>, 2012.

Mishchenko, M. I., Travis, L. D. and Mackowski, D. W.: T-matrix computations of light scattering by nonspherical particles: A review, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 55(5), 535–575, doi:10.1016/0022-4073(96)00002-7, 1996.

Mona, L., Amodeo, A., D'Amico, G., Giunta, A., Madonna, F. and Pappalardo, G.: Multi-wavelength Raman lidar observations of the Eyjafjallajökull volcanic cloud over Potenza, Southern Italy, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 11, 12763–12803, doi:10.5194/acpd-11-12763-2011, 2011.

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, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 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.*, 112, D16202, doi:10.1029/2006jd008292, 2007.

Müller, D., Weinzierl, B., Petzold, A., Kandler, K., Ansmann, A., Müller, T., Tesche, M., Freudenthaler, V., Esselborn, M., Heese, B., Althausen, D., et al.: Mineral dust observed with AERONET Sun photometer, Raman lidar, and in situ instruments during SAMUM 2006: Shape-independent particle properties, *J. Geophys. Res.*, 115(D7), D07202, doi:10.1029/2009JD012520, 2010a.

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., et al.: 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, 2010b.

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 Measurement Techniques*, 4(6), 1291–1303, doi:10.5194/amt-4-1291-2011, 2011.

Murphy, D. M., Chow, J. C., Leibensperger, E. M., Malm, W. C., Pitchford, M., Schichtel, B. A., Watson, J. G. and White, W. H.: Decreases in elemental carbon and fine particle mass in the United States, *Atmos. Chem. Phys.*, 11(10), 4679–4686, doi:10.5194/acp-11-4679-2011, 2011.

Nehrir, A. R., Repasky, K. S., Reagan, J. A. and Carlsten, J. L.: Optical characterization of continental and biomass-burning aerosols over Bozeman, Montana: A case study of the aerosol direct effect, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 116, doi:Article [online] Available from: [://WOS:000296622900003](http://www.wos.org/WOS/000296622900003), 2011.

Nessler, R., Weingartner, E. and Baltensperger, U.: Effect of humidity on aerosol light absorption and its implications for extinction and the single scattering albedo illustrated for a site in the lower free troposphere, *Journal of Aerosol Science*, 36, 958–972, doi:DOI: 10.1016/j.jaerosci.2004.11.012, 2005.

O'Dowd, C., Ceburnis, D., Ovadnevaite, J., Martucci, G., Bialek, J., Monahan, C., Berresheim, H., Vaishya, A., Grigas, T., Jennings, S. G., McVeigh, P., et al.: The Eyjafjallajökull ash plume – Part I: Physical, chemical and optical characteristics, *Atmospheric Environment*, doi:10.1016/j.atmosenv.2011.07.004 [online] Available from: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1352231011007059>, 2011.

Papayannis, A., Balis, D., Amiridis, V., Chourdakis, G., Tsaknakis, G., Zerefos, C., Castanho, A. D. A., Nickovic, S., Kazadzis, S. and Grabowski, J.: Measurements of Saharan dust aerosols over the Eastern Mediterranean using elastic backscatter-Raman lidar, spectrophotometric and satellite observations in the frame of the EARLINET project, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 2065–2079, doi:10.5194/acp-5-2065-2005, 2005.

Pappalardo, G., Amodeo, A., Pandolfi, M., Wandinger, U., Ansmann, A., Bösenberg, J., Matthias, V., Amiridis, V., De Tomasi, F., Frioud, M., Iarlori, M., et al.: Aerosol Lidar Intercomparison in the Framework of the EARLINET Project. 3. Raman Lidar Algorithm for Aerosol Extinction, Backscatter, and Lidar Ratio, *Appl. Opt.*, 43(28), 5370–5385, doi:10.1364/AO.43.005370, 2004.

Pedros, R., Estelles, V., Sicard, M., Luis Gomez-Amo, J., Pilar Utrillas, M., Martinez-Lozano, J. A., Rocadenbosch, F., Perez, C. and Baldasano Recio, J. M.: Climatology of the Aerosol Extinction-to-Backscatter Ratio from Sun-Photometric Measurements, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sensing*, 48(1), 237–249, doi:10.1109/TGRS.2009.2027699, 2010.

Pelon, J., Flamant, C., Chazette, P., Leon, J.-F., Tanre, D., Sicard, M. and Satheesh, S. K.: Characterization of aerosol spatial distribution and optical properties over the Indian Ocean from airborne LIDAR and radiometry during INDOEX'99, *J. Geophys. Res.*, 107(D19), 8029, doi:10.1029/2001JD000402, 2002.

Penner, J. E., Chuang, C. C. and Grant, K.: Climate forcing by carbonaceous and sulfate aerosols, *Climate Dynamics*, 14(12), 839–851, doi:10.1007/s003820050259, 1998.

Peters, T. M., Ott, D. and O'shaughnessy, P. T.: Comparison of the Grimm 1.108 and 1.109 Portable Aerosol Spectrometer to the TSI 3321 Aerodynamic Particle Sizer for Dry Particles, *Ann Occup Hyg*, 50(8), 843–850, doi:10.1093/annhyg/mel067, 2006.

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., Schloesser, H., Sheridan, P. J., Arnott, W. P., Ogren, J. A. and Virkkula, A.: Evaluation of Multiangle Absorption Photometry for Measuring Aerosol Light Absorption, *Aerosol Science and Technology*, 39, 40 – 51, 2005.

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

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.

Pitz, M., Gu, J., Soentgen, J., Peters, A. and Cyrys, J.: Particle size distribution factor as an indicator for the impact of the Eyjafjallajökull ash plume at ground level in Augsburg, Germany, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 11, 16417–16437, doi:10.5194/acpd-11-16417-2011, 2011.

Prata, A. and Tupper, A.: Aviation hazards from volcanoes: the state of the science, *Natural Hazards*, 51, 239–244, doi:10.1007/s11069-009-9415-y, 2009.

Putaud, J.-P., Raes, F., Van Dingenen, R., Brüggemann, E., Facchini, M.-C., Decesari, S., Fuzzi, S., Gehrig, R., Hüglin, C., Laj, P., Lorbeer, G., et al.: A European aerosol phenomenology—2: chemical characteristics of particulate matter at kerbside, urban, rural and background sites in Europe, *Atmospheric Environment*, 38(16), 2579–2595, doi:10.1016/j.atmosenv.2004.01.041, 2004.

Quennehen, B., Schwarzenboeck, A., Matsuki, A., Burkhart, J. F., Stohl, A., Ancellet, G. and Law, K. S.: Anthropogenic and forest fire pollution aerosol transported to the Arctic: observations from the POLARCAT-France spring campaign, *Atmos. Chem. Phys.*, 12(14), 6437–6454, doi:10.5194/acp-12-6437-2012, 2012.

Raatikainen, T. and Laaksonen, A.: Application of several activity coefficient models to water-organic-electrolyte aerosols of atmospheric interest, *Atmos. Chem. Phys.*, 5(9), 2475–2495, doi:10.5194/acp-5-2475-2005, 2005.

Ramanathan, V., Crutzen, P. J., Kiehl, J. T. and Rosenfeld, D.: Aerosols, Climate, and the Hydrological Cycle, *Science*, 294(5549), 2119–2124, doi:10.1126/science.1064034, 2001.

Randriamiarisoa, H., Chazette, P., Couvert, P., Sanak, J. and Mégie, G.: Relative humidity impact on aerosol parameters in a Paris suburban area, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 1389–1407, doi:10.5194/acp-6-1389-2006, 2006.

Raut, J. C. and Chazette, P.: Retrieval of aerosol complex refractive index from a synergy between lidar, sunphotometer and in situ measurements during LISAIR experiment, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 2797–2815, doi:10.5194/acp-7-2797-2007, 2007.

Raut, J. C. and Chazette, P.: Assessment of vertically-resolved PM₁₀ from mobile lidar observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 8617–8638, doi:10.5194/acp-9-8617-2009, 2009.

Revuelta, M. A., Sastre, M., Fernández, A. J., Martín, L., García, R., Gómez-Moreno, F. J., Artíñano, B., Pujadas, M. and Molero, F.: Characterization of the Eyjafjallajökull volcanic plume over the Iberian Peninsula by lidar remote sensing and ground-level data collection, *Atmospheric Environment*, 48, 46–55, doi:10.1016/j.atmosenv.2011.05.033, 2012.

Rupprecht, E., Meyer, M. and Patashnick, H.: The tapered element oscillating microbalance as a tool for measuring ambient particulate concentrations in real time, *Journal of Aerosol Science*, 23, Supplement 1, 635–638, doi:10.1016/0021-8502(92)90492-E, 1992.

Russell, P. B., Bergstrom, R. W., Shinozuka, Y., Clarke, A. D., DeCarlo, P. F., Jimenez, J. L., Livingston, J. M., Redemann, J., Dubovik, O. and Strawa, A.: Absorption Angstrom Exponent in AERONET and related data as an indicator of aerosol composition, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 1155–1169, doi:10.5194/acp-10-1155-2010, 2010.

Sassen, K., Zhu, J., Webley, P., Dean, K. and Cobb, P.: Volcanic ash plume identification using polarization lidar: Augustine eruption, Alaska, *Geophysical Research Letters*, 34, doi:Article [online] Available from: internal-pdf://Sassen,Volcanic ash plume identification using polarization lidar Augustine eruption, Alaska,2007-2150966284/Sassen,Volcanic ash plume identification using polarization lidar Augustine eruption, Alaska,2007.pdf, 2007.

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

Schäfer, K., Thomas, W., Peters, A., Ries, L., Obleitner, F., Schnelle-Kreis, J., Birmili, W., Diemer, J., Fricke, W., Junkermann, W., Pitz, M., et al.: Influences of the 2010 Eyjafjallajökull volcanic plume on air quality in the northern Alpine region, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 11, 9083–9132, doi:10.5194/acpd-11-9083-2011, 2011.

Schläditz, A., Müller, T., Nordmann, S., Tesche, M., Groß, S., Freudenthaler, V., Gasteiger, J. and Wiedensohler, A.: In situ aerosol characterization at Cape Verde, *Tellus B*, 63(4), 549–572, doi:10.1111/j.1600-0889.2011.00568.x, 2011.

Schmid, O., Artaxo, P., Arnott, W. P., Chand, D., Gatti, L. V., Frank, G. P., Hoffer, A., Schnaiter, M. and Andreae, M. O.: Spectral light absorption by ambient aerosols influenced by biomass burning in the Amazon Basin. I: Comparison and field calibration of absorption measurement techniques, *Atmos. Chem. Phys.*, 6(11), 3443–3462, doi:10.5194/acp-6-3443-2006, 2006.

Schumann, U., Weinzierl, B., Reitebuch, O., Schlager, H., Minikin, A., Forster, C., Baumann, R., Sailer, T., Graf, K., Mannstein, H., Voigt, C., et al.: Airborne observations of the Eyjafjalla volcano ash cloud over Europe during air space closure in April and May 2010, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 2245–2279, doi:10.5194/acp-11-2245-2011, 2011.

Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N.: *Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change*, Wiley., 1998.

Sigmundsson, F., Hreinsdóttir, S., Hooper, A., Arnadóttir, T., Pedersen, R., Roberts, M. J., Oskarsson, N., Auriac, A., Decriem, J., Einarsson, P., Geirsson, H., et al.: Intrusion triggering of the 2010 Eyjafjallajökull explosive eruption, *Nature*, 468, 426–U253, doi:Article, 2010.

Sinyuk, A., Dubovik, O., Holben, B., Eck, T. F., Breon, F.-M., Martonchik, J., Kahn, R., Diner, D. J., Vermote, E. F., Roger, J.-C., Lapyonok, T., et al.: Simultaneous retrieval of aerosol and surface properties from a combination of AERONET and satellite data, *Remote Sensing of Environment*, 107(1–2), 90–108, doi:10.1016/j.rse.2006.07.022, 2007.

Soltic, P. and Weilenmann, M.: NO₂/NO emissions of gasoline passenger cars and light-duty trucks with Euro-2 emission standard, *Atmospheric Environment*, 37, 5207–5216, doi:Proceedings Paper, 2003.

Stevens, B. and Feingold, G.: Untangling aerosol effects on clouds and precipitation in a buffered system, *Nature*, 461(7264), 607–613, 2009.

Stjern, C. W., Stohl, A. and Kristjánsson, J. E.: Have aerosols affected trends in visibility and precipitation in Europe?, *J. Geophys. Res.*, 116(D2), D02212, doi:10.1029/2010JD014603, 2011.

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.

Stohl, A., Forster, C., Frank, A., Seibert, P. and Wotawa, G.: Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 2461–2474, doi:10.5194/acp-5-2461-2005, 2005.

Stohl, A., Prata, A. J., Eckhardt, S., Clarisse, L., Durant, A., Henne, S., Kristiansen, N. I., Minikin, A., Schumann, U., Seibert, P., Stebel, K., et al.: Determination of time- and height-resolved volcanic ash emissions and their use for quantitative ash dispersion modeling: the 2010 Eyjafjallajökull eruption, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 4333–4351, doi:10.5194/acp-11-4333-2011, 2011.

Stokes, R. H. and Robinson, R. A.: Interactions in aqueous nonelectrolyte solutions. I. Solute-solvent equilibria, *The Journal of Physical Chemistry*, 70(7), 2126–2131, 1966.

- Streets, D. G., Yan, F., Chin, M., Diehl, T., Mahowald, N., Schultz, M., Wild, M., Wu, Y. and Yu, C.: Anthropogenic and natural contributions to regional trends in aerosol optical depth, 1980–2006, *J. Geophys. Res.*, 114(D10), D00D18, doi:10.1029/2008JD011624, 2009.
- Svenningsson, B., Rissler, J., Swietlicki, E., Mircea, M., Bilde, M., Facchini, M. C., Decesari, S., Fuzzi, S., Zhou, J., Mønster, J. and Rosenørn, T.: Hygroscopic growth and critical supersaturations for mixed aerosol particles of inorganic and organic compounds of atmospheric relevance, *Atmos. Chem. Phys.*, 6(7), 1937–1952, doi:10.5194/acp-6-1937-2006, 2006.
- Swietlicki, E., Hansson, H.-C., Hämeri, K., Svenningsson, B., Massling, A., Mcfiggans, G., Mcmurry, P. H., Petäjä, T., Tunved, P., Gysel, M., Topping, D., et al.: Hygroscopic properties of submicrometer atmospheric aerosol particles measured with H-TDMA instruments in various environments—a review, *Tellus B*, 0(0), 080414161623888–???, doi:10.1111/j.1600-0889.2008.00350.x, 2008.
- Takemura, T., Nakajima, T., Dubovik, O., Holben, B. N. and Kinne, S.: Single-Scattering Albedo and Radiative Forcing of Various Aerosol Species with a Global Three-Dimensional Model, *Journal of Climate*, 15(4), 333–352, doi:10.1175/1520-0442(2002)015<0333:SSAARF>2.0.CO;2, 2002.
- Tang, I. N.: Chemical and size effects of hygroscopic aerosols on light scattering coefficients, *J. Geophys. Res.*, 101(D14), 19245–19,250, doi:10.1029/96JD03003, 1996.
- Thomas, H. E. and Prata, A. J.: Sulphur dioxide as a volcanic ash proxy during the April–May 2010 eruption of Eyjafjallajökull Volcano, Iceland, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 6871–6880, doi:10.5194/acp-11-6871-2011, 2011.
- Tong, C., Clegg, S. L. and Seinfeld, J. H.: Comparison of activity coefficient models for atmospheric aerosols containing mixtures of electrolytes, organics, and water, *Atmospheric Environment*, 42(21), 5459–5482, doi:10.1016/j.atmosenv.2008.02.040, 2008.
- Tørseth, K., Aas, W., Breivik, K., Fjæraa, A. M., Fiebig, M., Hjellbrekke, A. G., Lund Myhre, C., Solberg, S. and Yttri, K. E.: Introduction to the European Monitoring and Evaluation Programme (EMEP) and observed atmospheric composition change during 1972–2009, *Atmos. Chem. Phys.*, 12(12), 5447–5481, doi:10.5194/acp-12-5447-2012, 2012.
- Twomey, S.: The Influence of Pollution on the Shortwave Albedo of Clouds, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 34(7), 1149–1152, doi:10.1175/1520-0469(1977)034<1149:TIOPOT>2.0.CO;2, 1977.
- Uno, I., Eguchi, K., Yumimoto, K., Liu, Z., Hara, Y., Sugimoto, N., Shimizu, A. and Takemura, T.: Large Asian dust layers continuously reached North America in April 2010, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 7333–7341, doi:10.5194/acp-11-7333-2011, 2011.
- 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.
- Villani, P., Picard, D., Michaud, V., Laj, P. and Wiedensohler, A.: Design and validation of a volatility hygroscopic tandem differential mobility analyzer (VH-TDMA) to characterize the relationships between the thermal and hygroscopic properties of atmospheric aerosol particles, *Aerosol Science and Technology*, 42, 729–741, doi:10.1080/02786820802255668, 2008.
- Virkkula, A., Mäkelä, T., Hillamo, R., Yli-Tuomi, T., Hirsikko, A., Hämeri, K. and Koponen, I. K.: A Simple Procedure for Correcting Loading Effects of Aethalometer Data, *Journal of the Air & Waste Management Association*, 57(10), 1214–1222, doi:10.3155/1047-3289.57.10.1214, 2007.
- Wagner, F. and Silva, A. M.: Some considerations about Ångström exponent distributions, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 481–489, doi:10.5194/acp-8-481-2008, 2008.

- Wang, X. L. and Swail, V. R.: Changes of Extreme Wave Heights in Northern Hemisphere Oceans and Related Atmospheric Circulation Regimes, *Journal of Climate*, 14(10), 2204–2221, doi:10.1175/1520-0442(2001)014<2204:COEWHI>2.0.CO;2, 2001.
- Ward, D. and Cotton, W.: A Method for Forecasting Cloud Condensation Nuclei Using Predictions of Aerosol Physical and Chemical Properties from WRF/Chem, *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 50(7), 1601–1615, doi:10.1175/2011JAMC2644.1, 2011.
- 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, *Journal of Aerosol Science*, 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.
- Weller, R., Wagenbach, D., Legrand, M., Elsässer, C., Tian-Kunze, X. and Köhig-Langlo, G.: Continuous 25-yr aerosol records at coastal Antarctica - I: inter-annual variability of ionic compounds and links to climate indices, *Tellus B*, 63(5), 901–919, doi:10.1111/j.1600-0889.2011.00542.x, 2011.
- Whiteman, D. N.: Examination of the Traditional Raman Lidar Technique. I. Evaluating the Temperature-Dependent Lidar Equations, *Appl. Opt.*, 42(15), 2571–2592, doi:10.1364/AO.42.002571, 2003a.
- Whiteman, D. N.: Examination of the Traditional Raman Lidar Technique. II. Evaluating the Ratios for Water Vapor and Aerosols, *Appl. Opt.*, 42(15), 2593–2608, doi:10.1364/AO.42.002593, 2003b.
- Wiedensohler, A.: An approximation of the bipolar charge distribution for particles in the submicron size range, *Journal of Aerosol Science*, 19, 387–389, doi:10.1016/0021-8502(88)90278-9, 1988.
- Wise, M. E., Surratt, J. D., Curtis, D. B., Shilling, J. E. and Tolbert, M. A.: Hygroscopic growth of ammonium sulfate/dicarboxylic acids, *J. Geophys. Res.*, 108, 4638, doi:10.1029/2003jd003775, 2003.
- WMO: WMO/GAW Aerosol Measurement procedures guidelines and recommendations, WMO TD, No. 1178, 2003.
- Yu, F., Luo, G. and Ma, X.: Regional and global modeling of aerosol optical properties with a size, composition, and mixing state resolved particle microphysics model, *Atmos. Chem. Phys.*, 12(13), 5719–5736, doi:10.5194/acp-12-5719-2012, 2012a.
- Yu, F., Luo, G., Turco, R. P., Ogren, J. A. and Yantosca, R. M.: Decreasing particle number concentrations in a warming atmosphere and implications, *Atmos. Chem. Phys.*, 12(5), 2399–2408, doi:10.5194/acp-12-2399-2012, 2012b.
- 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., et al.: 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.
- Zhang, J. and Reid, J. S.: A decadal regional and global trend analysis of the aerosol optical depth using a data-assimilation grade over-water MODIS and Level 2 MISR aerosol products, *Atmos. Chem. Phys.*, 10(22), 10949–10963, doi:10.5194/acp-10-10949-2010, 2010.
- Zhang, K., O'Donnell, D., Kazil, J., Stier, P., Kinne, S., Lohmann, U., Ferrachat, S., Croft, B., Quaas, J., Wan, H., Rast, S., et al.: The global aerosol-climate model ECHAM-HAM, version 2: sensitivity to improvements in process representations, *Atmos. Chem. Phys.*, 12(19), 8911–8949, doi:10.5194/acp-12-8911-2012, 2012.
- Zhang, R., Khalizov, A. F., Pagels, J., Zhang, D., Xue, H. and McMurry, P. H.: Variability in morphology, hygroscopicity, and optical properties of soot aerosols during atmospheric processing, *PNAS*, 105(30), 10291–10296, doi:10.1073/pnas.0804860105, 2008.

Zieger, P., Fierz-Schmidhauser, R., Gysel, M., Ström, J., Henne, S., Yttri, K. E., Baltensperger, U. and Weingartner, E.: Effects of relative humidity on aerosol light scattering in the Arctic, *Atmos. Chem. Phys.*, 10(8), 3875–3890, doi:10.5194/acp-10-3875-2010, 2010.

Zieger, P., Kienast-Sjögren, E., Starace, M., Von Bismarck, J., Bukowiecki, N., Baltensperger, U., Wienhold, F. G., Peter, T., Ruhtz, T., Collaud Coen, M., Vuilleumier, L., et al.: Spatial variation of aerosol optical properties around the high-alpine site Jungfraujoch (3580 m a.s.l.), *Atmos. Chem. Phys.*, 12(15), 7231–7249, doi:10.5194/acp-12-7231-2012, 2012.

Zieger, P., Weingartner, E., Henzing, J., Moerman, M., De Leeuw, G., Mikkilä, J., Ehn, M., Petäjä, T., Clémer, K., Van Roozendaal, M., Yilmaz, S., et al.: Comparison of ambient aerosol extinction coefficients obtained from in-situ, MAX-DOAS and LIDAR measurements at Cabauw, *Atmos. Chem. Phys.*, 11(6), 2603–2624, doi:10.5194/acp-11-2603-2011, 2011.

Liste des figures

FIGURE 2-1: REPRESENTATION DE SUIE INCORPOREE DANS UNE PARTICULE (ADACHI ET AL., 2010). A) PARTICULE MESUREE PAR MICROSCOPE A TRANSMISSION ELECTRONIQUE. B) RECONSTITUTION 3D DE LA PARTICULE ET DE SES COMPOSANTS. (NOIR: SUIE, BLEU: MATIERE ORGANIQUE, ROUGE SULFATE).....	9
FIGURE 2-2: LA COUCHE LIMITE ATMOSPHERIQUE (STULL 1988)	12
FIGURE 2-3: NUAGES GENERES PAR LES EMISSIONS DES BATEAUX SUR L'OCEAN ATLANTIQUE LE 27 JANVIER 2003. VUE DU CAPTEUR MODIS SUR LE SATELLITE AQUA. A) VUE EN COULEUR REELLE. B) EPAISSEUR OPTIQUE. C) DIAMETRE EFFECTIF DES PARTICULES (HTTP://EARTHOBSERVATORY.NASA.GOV).	15
FIGURE 3-1 DISTRIBUTION EN VOLUME DES AEROSOLS (DV/DLOGD) LE 28/06/2011	23
FIGURE 3-2: EXEMPLE D'INVERSION HTDMA (JUN 2011). A: MESURE HTDMA A 110NM POUR UNE HUMIDITE DE 100%. B ET C: MESURE SMPS. D ET E : COMBINAISON, CALCUL DE LA DISTRIBUTION EN TAILLE HUMIDE.	25
FIGURE 3-3: CORRELATION ENTRE LES CONCENTRATIONS EN BC ENTRE LE MAAP ET L'AETHALOMETRE. LA LIGNE ROUGE REPRESENT LA REGRESSION LINEAIRE ET LES LIGNES POINTILLEES L'INTERVALLE DE CONFIANCE A 95%.	27
FIGURE 3-4 : SITUATION DES INSTRUMENTS	29
FIGURE 3-5: PHOTOGRAPHIE DU PHOTOMETRE CIMEL REALISANT UNE VISEE DIRECTE DU SOLEIL.	30
FIGURE 3-6: ILLUSTRATION SCHEMATIQUE D'UN LIDAR.....	31
FIGURE 3-7: A): FONCTIONS DE RECOUVREMENT THEORIQUE (ROUGE) ET MESUREE (BLEUE). B): UN PROFIL LIDAR BRUT (VERT) PUIS CORRIGE AVEC LE FACTEUR DE RECOUVREMENT MESURE (BLEU) ET THEORIQUE (ROUGE). EN TRAIT PLEIN EST REPRESENTEE L'ALTITUDE DE RECOUVREMENT TOTAL (z99) ET EN TRAIT DISCONTINU L'ALTITUDE OU LE RECOUVREMENT EST DE 20% (z20).	32
FIGURE 3-8 EXEMPLE DE L'ALGORITHME DE DETECTION DES NUAGES. A: PUISSANCE LIDAR NORMALISEE. LES NUAGES DETECTES SONT REMPLACES PAR DES CARRES BLANC. B ET C: ECART TYPE CORRESPONDANT. D: MASQUE NUAGES (LES NUAGES DETECTES SONT EN BLEU CLAIR).....	35
FIGURE 3-9: SCHEMA DE L'APPROCHE MULTI INSTRUMENTEE POUR RETROUVER L'INDICE DE REFRACTION ET LES PROPRIETES OPTIQUES EN FONCTION DE L'HUMIDITE. EN ORANGE, LES PROPRIETES OPTIQUES ET PHYSIQUES SECHES ET EN BLEU CELLES HUMIDES. LES PROPRIETES MEASUREES SONT REPRESENTEES EN COULEURS FONCEES ET CELLES CALCULEES EN CLAIR.	39
FIGURE 3-10 COEFFICIENT D'EXTINCTION CALCULE A 550NM EN FONCTION DE CELUI MESURE. LA COULEUR REPRESENT L'INDICE DE REFRACTION REEL.....	40
FIGURE 3-11: COMPARAISON ALGORITHMES DE CALCUL D'EXTINCTION ET DE RETRODIFFUSION POUR L'INTERCOMPARAISON D'ALGORITHME DANS LE CADRE D'EARLINET	45
FIGURE 3-12: GAUCHE: COMPARAISON DU RAPPORT LIDAR RETROUVE PAR L'ALGORITHME MIS EN PLACE AU COURS DE CETTE THESE ET CELUI D'EARLINET. DROITE: RESULTATS DE L'INTERCOMPARAISON EARLINET (PAPPALARDO ET AL., 2004)	45
FIGURE 3-13: DISTRIBUTION EN TAILLE MESUREE PAR LES SMPS DE REFERENCE (HAUT) ET LE SPMS DU PUY DE DOME (BAS) LORS DE L'INTERCOMPARAISON DU 17 AU 19 JUIN 2011.....	46
FIGURE 3-14: RETROTRAJECTOIRES DETERMINEES PAR HYSPLIT DE 2009 A 2011	49
FIGURE 4-1: CONDITIONS METEOROLOGIQUES AU PUY DE DOME: DE HAUT EN BAS: ROSE DES VENTS ($m.s^{-1}$), TEMPERATURE ($^{\circ}C$), HUMIDITE (%) ET PRESSION (hPa).	54
FIGURE 4-2: VARIATION SAISONNIERE DE LA PROVENANCE DES MASSES D'AIR AU PDD.	55
FIGURE 4-3: HAUT: MESURES LIDAR DU 04/02 AU 07/02/2012. LA HAUTEUR DE COUCHE LIMITE CALCULEE EST REPRESENTEE PAR LES POINTS NOIRS. LA LIGNE POINTILLEE NOIRE REPRESENT LA HAUTEUR DU PUY DE DOME (1465m). BAS: COEFFICIENT D'ABSORPTION POUR LA MEME PERIODE.....	56
FIGURE 4-4: VARIATION JOURNALIERE DE LA HAUTEUR DE COUCHE LIMITE EN 2011. LE TRAIT PLEIN REPRESENT LA MEDIANE, ET L'AIRE L'ECART TYPE POUR CHAQUE SAISON. EN VERT LE PRINTEMPS, EN NOIR L'ETE, EN ROUGE L'AUTOMNE ET EN BLEU L'HIVER. LA LIGNE DISCONTINUE NOIRE REPRESENT L'ALTITUDE DU PUY DE DOME (1465m)	57
FIGURE 4-5: EVOLUTION DU COEFFICIENT D'ABSORPTION (2001-2012). A) LES POINTS BLEUS REPRESENTENT LES MESURES TOUTES LES HEURES, LA LIGNE ROUGE LA MEDIANE SUR 3 MOIS. B) LES TRAITS ROUGES REPRESENTENT LA MEDIANE DU COEFFICIENT D'ABSORPTION POUR CHAQUE ANNEE. LE RECTANGLE BLEU EST TRACE ENTRE LE 25 ^{EME} ET LE 75 ^{EME} PERCENTILE. LES TRAITS POINTILLES NOIRS REPRESENTENT LES 5 ^{EME} ET 95 ^{EME} PERCENTILES. MEME REPRESENTATION DU COEFFICIENT D'ABSORPTION MAIS EN FONCTION DES MOIS (C) ET DES HEURES DE LA JOURNEE (D).....	60

FIGURE 4-6: EVOLUTION DU COEFFICIENT DE DIFFUSION A 550NM (2006-2011)- VOIR FIGURE 4-5	63
FIGURE 4-7: EVOLUTION DE L'ALBEDO DE SIMPLE DIFFUSION (2008-2011)- VOIR FIGURE 4-5	65
FIGURE 4-8: EVOLUTION DU COEFFICIENT D'ÅNGSTRÖM (2006-2011)- VOIR FIGURE 4-5.....	67
FIGURE 4-9: EVOLUTION DU FACTEUR D'ASYMETRIE (2006-2011)- VOIR FIGURE 4-5.....	69
FIGURE 4-10: FACTEUR D'ASYMETRIE EN FONCTION DU COEFFICIENT D'ÅNGSTRÖM. A) LA COULEUR REPRESENTE LE COEFFICIENT D'ABSORPTION ET LA TAILLE LE COEFFICIENT DE DIFFUSION. B) LA COULEUR REPRESENTE L'ORIGINE DES MASSES D'AIR.	71
FIGURE 4-11: ETUDE THEORIQUE DE LA DEPENDANCE ENTRE LE COEFFICIENT D'ÅNGSTRÖM ET LE FACTEUR D'ASYMETRIE. LES DEUX PARAMETRES SONT CALCULES AVEC UN CODE DE MIE, POUR DES DISTRIBUTIONS LOGNORMALES DE DIAMETRES MOYENS VARIANT DE 150 A 550NM. L'INDICE DE REFRACTION REEL VARIE DE 1.33 A 1.68 ET L'IMAGINAIRE DE 0.01I A 0.2I. LA COULEUR DES POINTS REPRESENTE LE DIAMETRE, LEUR TAILLE L'INDICE DE REFRACTION IMAGINAIRE. LA COULEUR DES LIGNES CORRESPOND A L'INDICE DE REFRACTION REEL.	72
FIGURE 4-12: CARTE DES PROPRIETES OPTIQUES: A) COEFFICIENT DE DIFFUSION. B) COEFFICIENT D'ABSORPTION. C) ALBEDO DE SIMPLE DIFFUSION. D) COEFFICIENT D'ÅNGSTRÖM. E) FACTEUR D'ASYMETRIE.....	74
FIGURE 4-13: CARTOGRAPHIE (2010-2011) DE L'EFFICACITE RADIATIVE ΔE AU SOMMET DE L'ATMOSPHERE ET A 550M. CETTE CARTOGRAPHIE EST REALISEE A L'AIDE DES MESURES IN SITU DU PdD ET DES RETROTRAJECTOIRES.....	78
FIGURE 4-14: CARTOGRAPHIE (2010-2011) DU FORÇAGE RADIATIF ΔF AU SOMMET DE L'ATMOSPHERE ET A 550M. CETTE CARTOGRAPHIE EST REALISEE A L'AIDE DES MESURES PHOTOMETRE ET DES RETROTRAJECTOIRES.....	80
FIGURE 4-15: CARTE DU RAPPORT LIDAR A 355NM ET SA VARIATION TEMPORELLE EN 2010-2011. A) RAPPORT LIDAR DETERMINE AVEC LE PHOTOMETRE (L_p). B) RAPPORT LIDAR CALCULE A PARTIR DES MESURES IN SITU (L_i).	82
FIGURE 4-16 CARTES DU COEFFICIENT D'ÅNGSTRÖM(2010). A): AVEC LES MESURES IN SITU ET LES RETROTRAJECTOIRES. A): AVEC LE SATELLITE MODIS.....	83
FIGURE 4-17 : COMPARAISON DE LA DISTRIBUTION EN TAILLE VOLUMIQUE, MESUREE PAR LES INSTRUMENTS IN SITU ET PAR LE PHOTOMETRE LE 27/06/2011. LA COULEUR REPRESENTE L'HEURE.....	85
FIGURE 4-18: COMPARAISON DES RESULTATS DE PARAMETRISATION LOGNORMALE POUR LA DISTRIBUTION VOLUMIQUE IN SITU ET CELLE DU PHOTOMETRE DE FEVRIER A JUILLET 2011. DE GAUCHE A DROITE: DIAMETRE, CONCENTRATION ET SIGMA. HAUT: MODE ACCUMULATION. BAS: MODE GROSSIER. LES DROITES ROUGES REPRESENTENT LES DROITES 1:1, LES DROITES NOIRES CONTINUES LA REGRESSION LINEAIRE ET LES DROITES NOIRES DISCONTINUES L'INTERVALLE DE CONFIANCE DE 95% CORRESPONDANT. LA COULEUR DES POINTS INDIQUE LA DATE DE MESURE.....	86
FIGURE 4-19: RAPPORT DE DEPOLARISATION MESURE PAR LE LIDAR LE 06/03/2011 ET LE 07/03/2011. LE TRAIT NOIR DISCONTINU INDIQUE L'ALTITUDE DU PdD.	87
FIGURE 4-20 RAPPORT DE DEPOLARISATION MESURE PAR LE LIDAR LE 03/03/2011 ENTRE 00:00 ET 12:00. LE TRAIT NOIR DISCONTINU INDIQUE L'ALTITUDE DU PdD.	87
FIGURE 5-1 : FLEXPART SIMULATED ASH CLOUD. TOTAL ASH COLUMN LOAD ON 18 MAY 09:00 UTC (UPPER PANEL), AND SIMULATED VERTICAL DISTRIBUTION OF ASH OVER CLERMONT-FERRAND FOR 18 AND 19 MAY (LOWER PANEL).	99
FIGURE 5-2 : TOP PANEL: TIME SERIES OF VOLUME DEPOLARIZATION RATIO DERIVED FROM THE LIDAR DATA. THE BLACK DASHED LINE REPRESENTS THE HEIGHT OF THE PUY DE DÔME MEASUREMENT STATION (1465M A.S.L.). BOTTOM: SO ₂ AND NO ₂ CONCENTRATIONS AT PdD FOR THE SAME PERIOD. THE RED DASH LINE INDICATES THE 99-PERCENTILE OF SO ₂ CONCENTRATIONS OBSERVED IN 2009 AND 2010 AND THE CONTINUOUS RED LINE THE MEDIAN.....	100
FIGURE 5-3: TOP PANEL: ÅNGSTRÖM COEFFICIENT FOR THE 18 AND 19 MAY. THE CONTINUOUS RED LINE INDICATES THE MEDIAN OBSERVED IN 2009 AND 2010 AND THE DOTTED LINE REPRESENTS THE 10 TH PERCENTILE. BOTTOM PANEL: MASS CONCENTRATION IN $\mu\text{G} \cdot \text{M}^{-3}$ MEASURED BY THE TEOM IN BLUE AND SIMULATED BY FLEXPART AT THE PUY DE DÔME HEIGHT FOR THE SAME DATE. THE CONTINUOUS RED LINE INDICATES THE MEDIAN MEASURED IN 2010 AND THE DOTTED LINE REPRESENTS THE 90 TH PERCENTILE. THE DOTTED CYAN LINE REPRESENTS THE FLEXPART SIMULATED MASS PLUS THE BACKGROUND MEASURED BEFORE THE VOLCANIC EVENT.....	102
FIGURE 5-4: PARTICLE VOLUME SIZE DISTRIBUTION MEASURED BY A SMPS AND GRIMM OPC ON 19 MAY 2010 AT THE PUY DE DÔME.	103

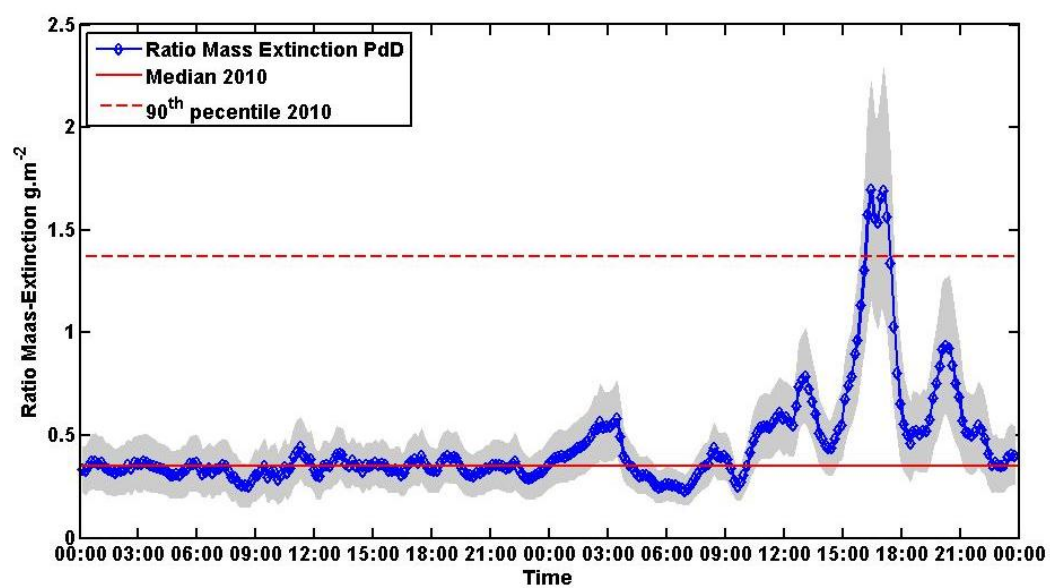


FIGURE 5-5: MASS EXTINCTION RATIO H CALCULATED AT 355NM FOR THE 18 TO 19 MAY 2010. THE CONTINUOUS RED LINE REPRESENTS THE MEDIAN AND THE DASHED RED LINE THE 90TH PERCENTILE CALCULATED USING ALL DATA FOR THE YEAR 2010.

..... 104

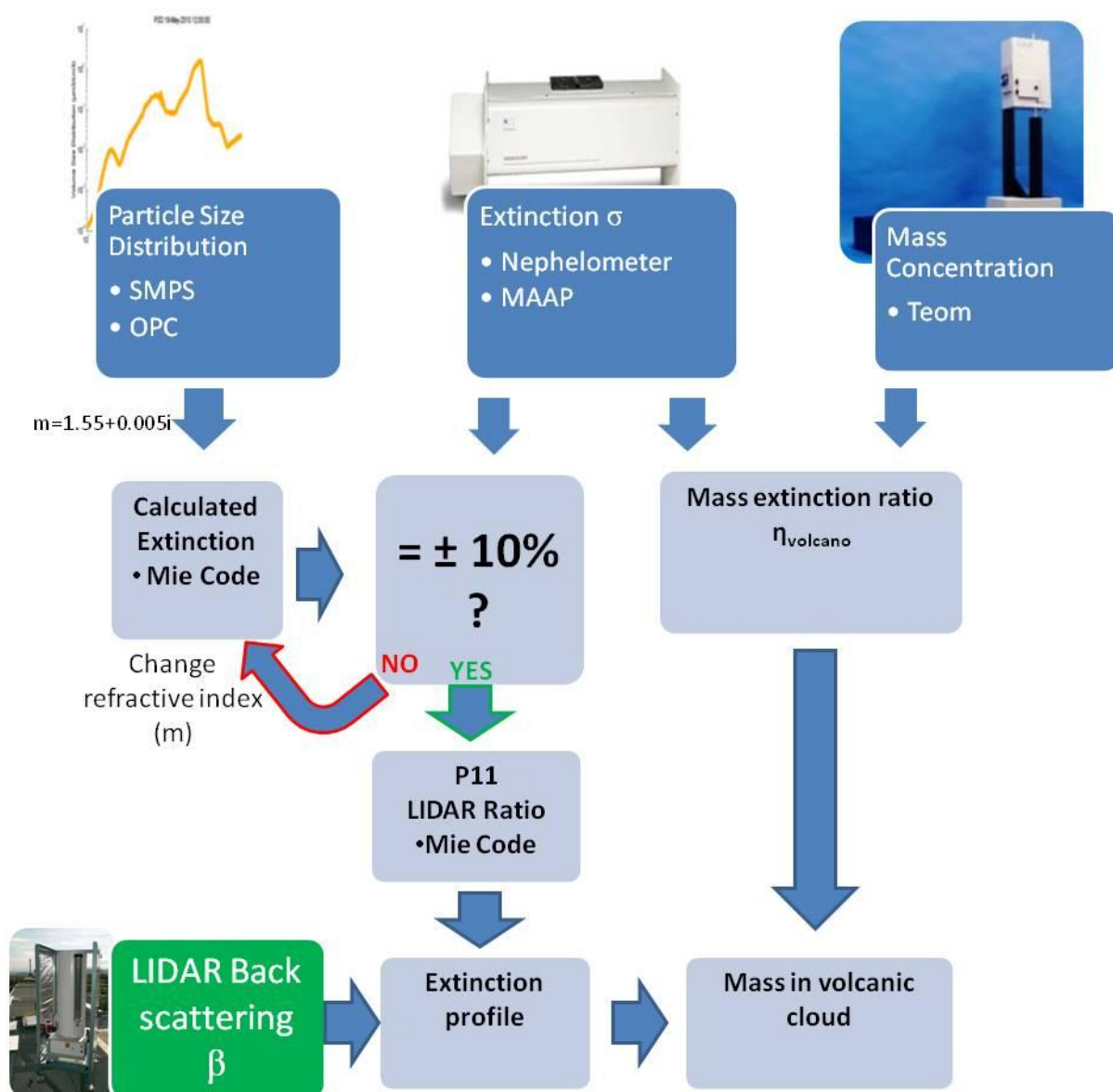


FIGURE 5-6: DIAGRAM OF THE VOLCANIC MASS RETRIEVAL. DARK-BLUE SQUARES CORRESPOND TO PUY DE DÔME IN SITU MEASUREMENTS DURING THE VOLCANIC EVENT, GREEN TO GROUND-BASED MEASUREMENTS, AND LIGHT BLUE TO CALCULATED PRODUCTS.

FIGURE 5-7 : FLEXPART SIMULATED ASH CLOUD. TOTAL ASH COLUMN LOAD ON 18 APRIL 23:00 UTC (UPPER PANEL), AND SIMULATED VERTICAL DISTRIBUTION OF ASH OVER CLERMONT-FERRAND FOR 18-19 APRIL (LOWER PANEL).	108
FIGURE 5-8: FLEXPART SIMULATED ASH CLOUD. TOTAL ASH COLUMN LOAD ON 22 APRIL 04:00 UTC (UPPER PANEL), AND SIMULATED VERTICAL DISTRIBUTION OF ASH OVER CLERMONT-FERRAND FOR 22 APRIL (LOWER PANEL).	108
FIGURE 5-9 : TIME SERIES OF THE COLOUR-CODED VOLUME DEPOLARIZATION RATIO AS A FUNCTION OF ALTITUDE FOR 18 TO 19 APRIL 2010. THE BLACK DOTTED LINE CORRESPONDS TO THE ALTITUDE OF PUY DE DÔME.	109
FIGURE 5-10: LIDAR VOLUME DEPOLARISATION RATIO ON 22 APRIL 00:00 TO 13:30 UTC.	110
FIGURE 5-11 - ATR-42 TRAJECTORY ON 22 APRIL. BOUNDARY LAYER MEASUREMENT PERIODS ARE HIGHLIGHTED IN RED.	111
FIGURE 5-12: AIRCRAFT MEASUREMENTS ON 22 APRIL. PANEL (A) PRESENTS THE FSSP AEROSOL SIZE DISTRIBUTIONS AS A FUNCTION OF TIME. PARTICLE NUMBER CONCENTRATIONS ARE COLOUR-CODED AND THE FLIGHT ALTITUDE IS ADDED IN BLACK. PLOT (B) SHOWS THE MEAN AEROSOL SIZE DISTRIBUTIONS IN THE PBL OF CLERMONT-FERRAND MEASURED DURING THE OVERPASS BY THE PCASP (IN BLUE) AND THE FSSP (IN GREEN) AND THE GROUND-BASED OPC (IN RED).	112
FIGURE 5-13: PARTICLE VOLUME SIZE DISTRIBUTION MEASURED BY A SMPS AND GRIMM OPC ON 18-22 APRIL 2010 AT THE PUY DE DÔME.	113

FIGURE 6-1: FACTEURS DE CROISSANCE HYGROSCOPIQUES A 110NM MESURES AU PdD PAR DE HTDMA DE 2008 A 2012. TROIS MODES SONT REPRESENTES: HYDROPHOBES (EN NOIR), MOYENS (VERT) ET HYGROSCOPIQUE (BLEU). LA LIGNE ROUGE REPRESENT LE GF MOYEN.	118
FIGURE 6-2: FACTEUR D'ACCROISSEMENT OPTIQUE A 520 NM MESURE PAR LES NEPHELOMETRES EN FONCTION DE CELUI CALCULE PAR NOTRE METHODE. LA LIGNE ROUGE REPRESENT DROITE 1:1.	120
FIGURE 6-3: FACTEUR D'ACCROISSEMENT A 90% D'HUMIDITE DU COEFFICIENT DE DIFFUSION A 550NM EN 2010-2011. LA COULEUR REPRESENT LE GF MOYEN. LA LIGNE ROUGE REPRESENT LA MEDIANE GLISSANTE SUR 3 MOIS.	121
FIGURE 6-4: VARIATION DU FACTEUR D'ACCROISSEMENT DE LA DIFFUSION A 550NM EN FONCTION DE L'HUMIDITE. LA COULEUR REPRESENT L'ORIGINE DES MASSES D'AIR. $FZSCA_{550}$ A ETE CALCULE POUR DES HUMIDITES DE 10 A 95%. LES LIGNES CONTINUES REPRESENTENT LES MEDIANES DE FZ_{550} POUR CHAQUE HUMIDITE ET CHAQUE MASSE D'AIR. LES VALEURS EUROPEENNES DISPONIBLES DANS LA LITTERATURE SONT INDIQUEE A L'HUMIDITE CONSIDEREE ET AVEC L'INCERTITUDE ASSOCIEE.	122
FIGURE 6-5: CARTE DE L'EFFICACITE RADIATIVE POTENTIELLE DE L'HYGROSCOPICITE A 550NM EN 2010-2011. $d\Delta E$ EST CALCULE A PARTIR DES MESURES DU PUY DE DOME ET REPORTEE SUR LA CARTE EN FONCTION DES RETROTRAJECTOIRES.	127
FIGURE 6-6: A) CARTE DU FACTEUR D'ACCROISSEMENT DU FORÇAGE RADIATIF A 90% D'HUMIDITE. $f\Delta F$ EST CALCULE A 550NM ENTRE 2010 ET 2011 A PARTIR DES MESURES DU PUY DE DOME ET DES RETROTRAJECTOIRES. B) 2VOLUTION TEMPORELLE DE $f\Delta F$. LA LIGNE ROUGE REPRESENT LA MEDIANE GLISSANTE SUR 3 MOIS.	129
FIGURE 6-7: A) FORÇAGE RADIATIF CALCULE A PARTIR DES MESURES IN SITU SECHE EN FONCTION DE CELUI CALCULE PAR LE PHOTOMETRE. B) FORÇAGE RADIATIF CALCULE A PARTIR DES MESURES IN SITU A HUMIDITE AMBIANTE EN FONCTION DE CELUI CALCULE PAR LE PHOTOMETRE. LES LIGNES ROUGES REPRESENTENT LES DROITES 1:1. LES LIGNES NOIRES CONTINUES LA REGRESSION LINEAIRE ET LES LIGNES NOIRES DISCONTINUES LES INTERVALLES DE CONFIANCE DE 95% CORRESPONDANT.	130
FIGURE 6-8: EXTINCTION IN SITU SECHE EN FONCTION DE L'EXTINCTION LIDAR A HUMIDITE AMBIANTE. LA COULEUR REPRESENT L'HUMIDITE AMBIANTE. LA DROITE 1:1 EST TRACEE EN ROUGE. LES COEFFICIENTS D'EXTINCTIONS SONT CALCULES A 355NM POUR L'ANNEE 2011.	132
FIGURE 6-9: A) EXTINCTION IN SITU SECHE EN FONCTION DE L'EXTINCTION LIDAR. B) EXTINCTION IN SITU HUMIDE EN FONCTION DE L'EXTINCTION LIDAR A HUMIDITE AMBIANTE. LA COULEUR REPRESENT L'HUMIDITE AMBIANTE. LA DROITE 1:1 EST TRACEE EN ROUGE. LES COEFFICIENTS D'EXTINCTIONS SONT CALCULES A 355NM POUR L'ANNEE 2011.	132
FIGURE 6-10: RAPPORT LIDAR SEC EN FONCTION DE DU RAPPORT LIDAR CALCULE A HUMIDITE AMBIANTE. LA COULEUR REPRESENT L'HUMIDITE AMBIANTE.	133
FIGURE 6-11: RAPPORT LIDAR A 355NM EN FONCTION DE L'HUMIDITE. LES LIGNES REPRESENTENT LES VALEURS DE LA LITTERATURE POUR DES AEROSOLS CONTINENTAUX (ROUGE) MARINS (BLEUS) ET DESERTIQUES(JAUNE).(ACKERMANN, 1998)	134

Liste des symboles et des abréviations:

AAE	Absorption Ångström Exponent
b	Rapport de rétrodiffusion
C	Constante Lidar
CLA	Couche limite Atmosphérique
δ	Rapport de dépolarisation
ΔE	Efficacité radiative directe
E_0	Energie émise Lidar
f	Facteur d'accroissement optique
g	Facteur d'asymétrie
GF	Facteur de croissance hygroscopique
η	Rapport masse extinction
κ	Paramètre d'hygroscopicité
L_i	Rapport Lidar (in situ)
L_l	Rapport Lidar (Lidar+ Photomètre)
L_p	Rapport Lidar (Photomètre)
L_r	Rapport (Lidar Raman)
m	Indice de réfraction complexe
M	Masse d'aérosol
$O(r)$	Fonction de recouvrement (overlap)
$P(r)$	Puissance rétrodiffusée
P_{11}	Fonction de phase (in situ ou photo)
r	distance Lidar particule
x_v	Visibilité
α	Extinction
β	Rétrodiffusion
σ_{abs}	Coefficient d'absorption
σ_{dif}	Coefficient de diffusion
σ_{ext}	Coefficient d'extinction
τ	Epaisseur Optique
ω_0	Albedo de simple diffusion

Liste des publications

- **Hervo, M.**, Quennehen, B., Kristiansen, N. I., Boulon, J., Stohl, A., Fréville, P., Pichon, J. M., Picard, D., Labazuy, P., Gouhier, M., Roger, J. C., Colomb, A., Schwarzenboeck, A., and Sellegri, K.: Physical and optical properties of 2010 Eyjafjallajökull volcanic eruption aerosol: ground-based, Lidar and airborne measurements in France, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012.
- Asmi, E., Freney, E., **Hervo, M.**, Picard, D., Rose, C., Colomb, A. and Sellegri, K.: Aerosol cloud activation in summer and winter at puy-de-Dôme high altitude site in France, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012.
- Boulon, J., Sellegri, K., **Hervo, M.**, and Laj, P.: Observations of nucleation of new particles in a volcanic plume, *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 2011a.
- Boulon, J., Sellegri, K., **Hervo, M.**, Picard, D., Pichon, J. M., Fréville, P., and Laj, P.: Investigation of nucleation events vertical extent: a long term study at two different altitude sites, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011b.
- 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, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011.
- Labazuy, P., Gouhier, M., Harris, A., Guéhenneux, Y., **Hervo, M.**, Bergès, J.C., Fréville, P., Cacaault, P. and Rivet, S. : Near real-time monitoring of the April–May 2010 Eyjafjallajökull ash cloud: an example of a web-based, satellite data-driven, reporting system, *International Journal of Environment and Pollution*, 2012.

Résumé

En atmosphère naturelle, l'eau est l'un des facteurs contribuant fortement à la masse des particules d'aérosol. Ceci va fortement modifier les propriétés optiques et radiatives des aérosols. Cet impact a été calculé à partir de plus de 2 ans de mesures sur le site ACTRIS/GAW du Puy de Dôme (PdD, 1565m). La distribution en taille, l'extinction et l'hygroscopicité mesurées au PdD ont été combinées pour calculer les propriétés optiques et radiatives, sèches ou humides. Pour chaque propriété, le facteur d'accroissement hygroscopique (f) a été estimé à l'aide d'un code de Mie. La longue série temporelle a permis de paramétrer l'évolution en fonction de l'humidité des propriétés optiques de différents types d'aérosols. Pour un aérosol d'origine océanique qui s'est mélangé avec des aérosols anthropiques, le coefficient de diffusion augmente plus de 4.4 fois si il est placé à 90% d'humidité. Le forçage radiatif va évoluer en conséquence et sera 2.8 fois plus élevé à 90% d'humidité que pour une atmosphère sèche (1.8 à humidité ambiante). Cette longue série de mesures a également permis de montrer, pour la première fois à notre connaissance, la forte variation saisonnière de ce paramètre. Ce manuscrit présente également une méthode originale pour calculer la masse d'aérosols volcanique à partir de mesures LIDAR et in situ. Lors de l'éruption du volcan Islandais Eyjafjalla en Mai 2010, la masse d'aérosols volcaniques au dessus de Clermont a été estimée de $655 \pm 23 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$.

Mots-clés: aérosol, hygroscopicité, optique, radiatif, LIDAR

Abstract

Water contributes significantly to the aerosol mass under ambient conditions of relative humidities, and thus may significantly impact their optical and radiative properties and direct effect. In the present work, the impact of the aerosol hygroscopicity on its optical properties is evaluated from a set of instrumentation located at the ACTRIS/GAW Puy de Dôme station (PdD, 1465m) over two years of measurements in 2010 and 2011. In situ size distributions, extinction and hygroscopicity measurements are combined to retrieve the aerosol refractive index, both dry and wet. For each optical property the enhancement factor (f) due to hygroscopicity can be computed using Mie calculations. The long data set available enables us to generate parameterisations of optical properties enhancement as a function of relative humidities for different aerosol types. At 90% humidity, $f_{\sigma_{\text{scat}}}$ is more than 4.4 for marine aerosol that have mixed with a pollution plume. Consequently, the aerosol radiative forcing is estimated to be 2.80 times higher at RH=90% and 1.75 times higher at ambient RH when hygroscopic growth of the aerosol is considered. For the first time this study highlights the high seasonal variability of this impact.

The manuscript also presents an original method of mass inversion for volcanic aerosols with the synergy of in situ and LIDAR measurements. The calculated mass of volcanic particle transported over Clermont during the eruption of Eyjafjalla in May 2010 was up to $655 \pm 23 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$.

Keywords: aerosol, hygroscopicity, optic, radiative, LIDAR
