

## 1.1 Contexte scientifique

---

Les problèmes d'environnement à l'échelle planétaire ont pris depuis quelques années une importance croissante dans notre vie au quotidien, que ce soit par la médiatisation qui a pu en être faite ou par les préoccupations sociétales que les discours de la classe politique ont relevées, sans doute à juste titre. L'industrialisation de nos sociétés a introduit des perturbations significatives au sein de cette complexe et fragile machine que constitue le système climatique terrestre. Dans ce monde qui change, l'impact des activités humaines sur ce dernier est devenu aujourd'hui l'un des enjeux scientifiques et de société majeurs pour les prochaines décennies. Cette sensibilité accrue des populations touche tout particulièrement les problèmes relatifs à l'atmosphère terrestre, c'est-à-dire littéralement la sphère de gaz (« atmosphaira ») qui enveloppe notre planète. Cette définition étymologique est toutefois très réductrice, tant cette couche d'épaisseur infime par rapport au rayon de la terre constitue un milieu hétérogène nécessaire à la présence de la vie sur Terre et qui est le siège d'un très grand nombre d'interactions entre molécules gazeuses, particules solides et gouttelettes liquides, cet ensemble étant en constante interaction avec le rayonnement solaire.

Des changements climatiques à grande échelle ont été mis en évidence. Aux variations naturelles du bilan radiatif viennent en effet s'ajouter des variations dues à l'activité de l'homme. En intervenant par ses rejets sur la composition de l'atmosphère, l'homme modifie le bilan radiatif terrestre et est donc susceptible de modifier le climat. Les rejets de certains gaz ne cessent d'augmenter, la concentration atmosphérique du CO<sub>2</sub> passant de ~270 à ~350 ppmv du début de l'ère industrielle à nos jours (Prentice et al., 2001). Au cours de la même période la température globale à la surface de la Terre a augmenté de 0.5 à 0.7 °C, et le niveau moyen des mers est monté de 10 à 20 cm, laissant envisager une tendance au réchauffement global de la planète induite par les rejets anthropiques de CO<sub>2</sub> et plus généralement de gaz à effet de serre comme le méthane, l'ozone, les composés azotés, les composés organiques volatiles, les composés organochlorés, et de particules absorbantes comme les aérosols de combustion (IPCC, 2007). Ce phénomène très complexe est en réalité le résultat d'interactions nombreuses. Non seulement tous les composants de l'atmosphère, et pas seulement les gaz à effet de serre, jouent un rôle dans le changement climatique, mais les autres composantes du système Terre (océan, biosphère, cryosphère...), et évidemment le soleil, font partie de ce que l'on appelle "la machine climatique".

## 1.2 Pourquoi s'intéresser aux aérosols ?

L'étude du changement climatique n'est donc pas simple : le recul statistique n'est pas forcément suffisant, certains processus font encore l'objet de recherches et certains constituants de l'atmosphère sont encore mal connus pour leur durée de vie ou leurs actions sur le climat. Parmi ces derniers, les aérosols ont connu un regain d'intérêt à la fin des années 1980 (Charlson et al., 1987). L'attrait pour l'étude de ces derniers a vraiment débuté après que l'on ait montré que les sulfates n'étaient pas les seuls aérosols ayant un impact sur le bilan radiatif terrestre (Jacobson, 2001). Les aérosols sont, par définition, toutes les particules liquides ou solides en suspension dans l'atmosphère, à l'exception des gouttelettes d'eau et des cristaux qui forment les nuages. S'ils ne sont, comparés aux molécules gazeuses, qu'un constituant mineur de l'atmosphère, les aérosols interagissent de multiples façons avec les nuages, le rayonnement et l'atmosphère, et ont la capacité de modifier le comportement de la machine climatique. Ils sont également particulièrement intéressants à caractériser car l'activité humaine tend à augmenter leurs concentrations dans l'atmosphère, principalement pour la composante carbonée. Plus précisément, la taille des aérosols atmosphériques varie de quelques nanomètres à plusieurs centaines de micromètres, balayant ainsi une gamme de plus de cinq ordres de grandeur (Whitby and Cantrell, 1976). Les aérosols sont principalement le résultat de phénomènes naturels pour près de 80-95% de la concentration massique en moyenne annuelle de particules dans l'atmosphère (Chapitre 2). Les principales sources connues sont les éruptions volcaniques, les embruns marins, les émissions par les végétations, les feux de forêt ou l'érosion mécanique du sol par les vents (IPCC, 2007). Toutefois, ils sont également produits par des activités anthropiques, leurs sources étant surtout la circulation automobile, l'industrie, le chauffage domestique qui utilisent des combustibles fossiles, les feux agricoles et les feux de forêt. En fonction de leur taille, les aérosols ont des origines diverses, sont soumis à des processus de croissance, de vieillissement, de transport, de dépôt différents, possèdent des propriétés optiques et des durées de vie extrêmement variables. Leur capacité à absorber de l'eau varie fortement selon le type d'aérosols en fonction de l'humidité relative. À travers le témoignage des satellites scrutant la planète (Fig. 1.1), on peut constater que le globe s'entoure de plus en plus de panaches d'aérosols dont la distribution spatiale est hétérogène contrairement aux gaz à effet de serre.

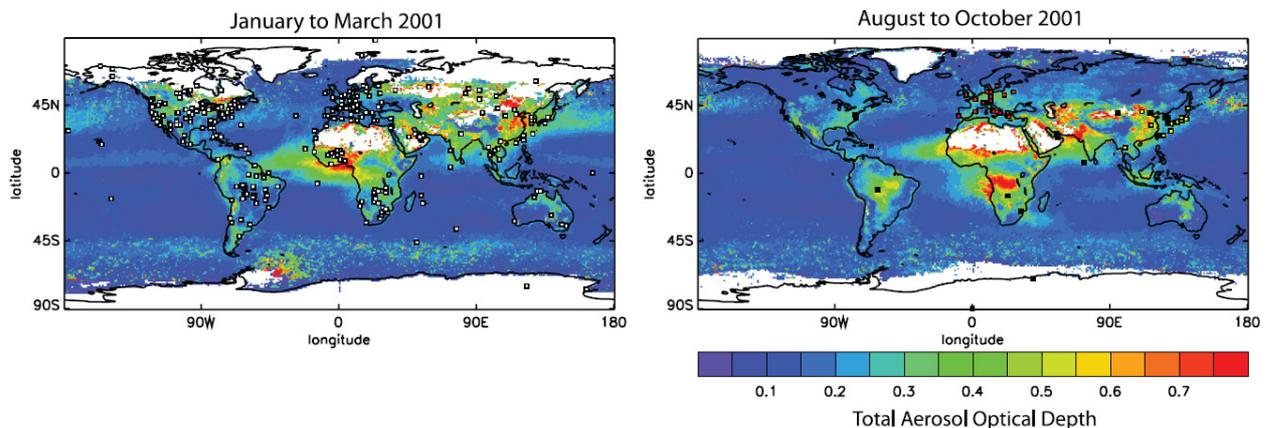


Fig. 1.1 : Epaisseur optique de l'aérosol à 355 nm déterminé par MODIS de janvier à mars 2001 (gauche) et d'août à octobre 2001 (droite). La figure de gauche montre également la localisation des sites AERONET (carrés blancs) qui ont fonctionné (pas nécessairement de manière continue) depuis 1996. La figure de droite présente également la localisation des

# 1. Introduction générale

---

différents réseaux lidar pour la mesure de l'aérosol (rouge : EARLINET, orange : ADNET, noir : MPLNET). Source : IPCC 2007.

En particulier, on remarque que les panaches d'aérosols sont localisés au voisinage des zones sources d'émission. Leur temps de résidence dans l'atmosphère est relativement faible comparé aux gaz à effet de serre, il varie entre 4 et 7 jours (voire 1 jour pour les sels de mer, Andreae, 1994). En effet, quelques jours après leur émission, la majorité de ces particules se dépose au sol (Slinn and Slinn, 1980) par gravitation (dépôt sec) ou est lessivée par des précipitations (dépôt humide). Par conséquent, il existe une grande variabilité spatiale et temporelle des concentrations des aérosols, à l'échelle régionale et journalière. Cette spécificité rend difficile l'évaluation de l'estimation des forçages radiatifs des aérosols à l'échelle globale. Sous le terme générique d'« aérosols », c'est en fait une multitude de particules aux caractéristiques différentes que l'on regroupe. C'est de cette variabilité extrême que naissent les difficultés de l'étude des aérosols mais aussi tout le défi scientifique. A l'échelle urbaine, les questions qui se posent concernant la pollution atmosphérique sont relatives à la prédiction des pics de pollution et aux facteurs les provoquant ainsi qu'à la dégradation de la qualité de l'air et à son impact sur la santé publique : le nombre croissant d'allergies et d'asthmes liés à la pollution particulaire atmosphérique dans les zones urbaines et la recrudescence des admissions dans la plupart des hôpitaux lors d'épisodes de pollutions indiquent que ces particules en suspension sont aussi impliquées dans un bon nombre d'affections pulmonaires par la pénétration profonde dans le système respiratoire humain (Donaldson et al., 1998).

## 1.3 Rôle de l'aérosol sur la pollution atmosphérique et le climat

---

### Impact sur la pollution

La pollution atmosphérique, dans les zones urbaines particulièrement, n'est pas un phénomène nouveau. Au premier siècle de notre ère, Sénèque dénonçait déjà « l'oppressant air de la ville et la puanteur des fumantes cheminées qui, une fois leurs feux allumés, vomissent toutes les pestilentielles fumées et suies qu'elles contiennent ».

Les aérosols peuvent avoir des effets nocifs sur la santé par la présence de composés toxiques à leur surface pouvant se solubiliser plus ou moins en présence d'eau. Lorsqu'ils sont alors inhalés et piégés dans les voies respiratoires, ils multiplient les risques de maladies ou en aggravent certaines. Selon des études épidémiologiques, la présence de certains constituants peut aggraver les conséquences sur la santé comme par exemple les métaux lourds et beaucoup de composés organiques tels que les composés aromatiques polycycliques qui augmentent les propriétés cancérigènes et mutagènes de ces particules (Enya et al., 1997). La toxicité des particules dépend non seulement de leur concentration et composition chimique, mais aussi et surtout de leur taille car les plus fines particules sont reconnues pour être les plus néfastes étant donné qu'elles peuvent pénétrer plus profondément dans le système respiratoire humain (Donaldson et al., 1998 ; Moshhammer and Neuberger, 2003; Hauck et al., 2004) jusqu'aux alvéoles pulmonaires (Fig. 1.2).

# 1. Introduction générale

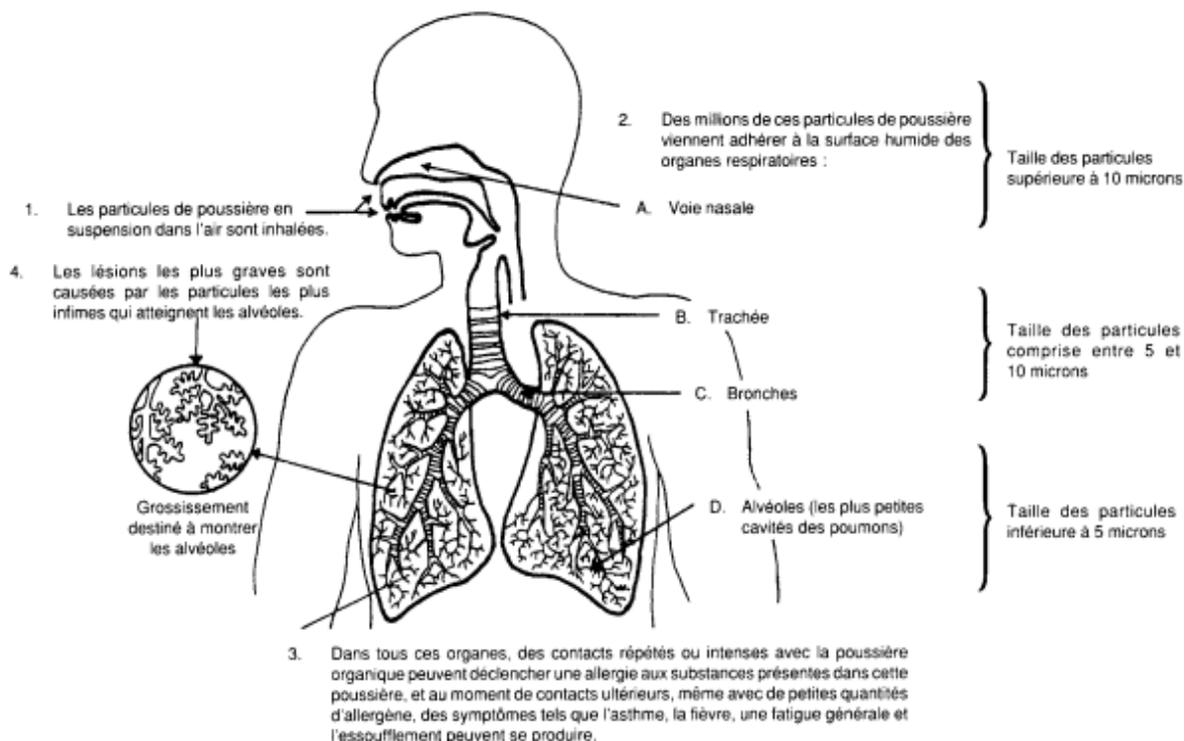


Fig. 1.2 : Pénétration des particules aérosols à différents niveaux de l'appareil respiratoire humain en fonction de leur taille (<http://www.gov.on.ca/OMAFRA/french/>).

Les aérosols agissent également en tant que polluant atmosphérique en favorisant l'apparition de pluies acides ou en réduisant la visibilité dans les villes par l'absorption et la réflexion de la lumière solaire (Pueschel et al., 1986). Ils jouent également un rôle non négligeable en favorisant la formation ou la destruction de certains composés par des réactions chimiques hétérogènes à leur surface (Hofmann and Solomon, 1989 ; Dentener et al., 1996 ; Kirchner et al., 2000 ; Jacob 2000) ou en modifiant la quantité de rayonnement solaire disponible pour la photodissociation de certaines molécules comme l'ozone (Dickerson et al., 1997 ; Jacobson, 1998), le dioxyde d'azote (Randriamiarisoa et al., 2004a) ou le formaldéhyde.

## 1.3.2 Impact sur le climat

Afin d'évaluer au mieux le bilan radiatif terrestre, le dernier rapport du GIEC (Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat ou IPCC en anglais, pour Intergovernmental Panel on Climate Change) publié en 2007, soulignait l'importance d'une meilleure prise en compte des aérosols et de leur influence sur le rayonnement solaire mais aussi terrestre. Leur effet est difficile à quantifier car d'une part, il dépend de leurs propriétés physico-chimiques et d'autre part, la distribution de ces aérosols autour de la planète est très hétérogène. Les processus d'interaction entre les aérosols, le rayonnement, et les autres composantes du système climatique sont complexes. L'influence des facteurs sur le climat peut être étudiée en utilisant le concept de forçage radiatif pour désigner la variation de l'éclairement énergétique vertical net - exprimé en watts par mètre carré ( $W.m^{-2}$ ) - à la tropopause par suite d'un changement interne ou d'une modification du forçage externe du système climatique. Cette évaluation doit être effectuée après ajustement des températures stratosphériques mais avec des conditions de température et d'humidité de la troposphère et

# 1. Introduction générale

de la surface maintenues fixes. Des études ont montré que l'effet des aérosols sur le budget radiatif pouvait en partie compenser l'effet des gaz à effet de serre à l'échelle globale (Charlson et al., 1990; Kiehl and Briegleb, 1993; Taylor and Penner, 1994; Cox et al., 1995) et même largement inverser cet effet à l'échelle régionale (Léon et al., 2002). La Fig. 1.3 donne le forçage radiatif additionnel associé aux principales composantes du bilan radiatif (IPCC, 2007). Les aérosols constituent une source majeure d'incertitudes sur la quantification du forçage radiatif terrestre et les prévisions décennales de changement climatique. Aussi, même si à l'échelle globale le forçage radiatif induit par les aérosols anthropiques semble modéré par rapport aux gaz à effet de serre, il y est bien supérieur dans les zones urbaines à fortes concentrations particulières.

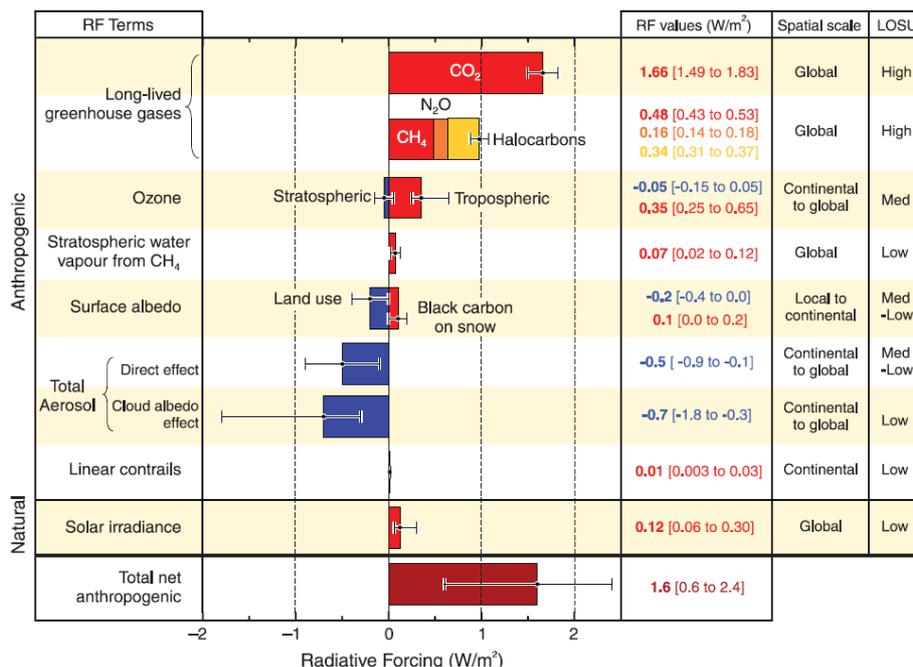


Fig. 1.3 : Ensemble des principaux éléments du forçage radiatif additionnel contribuant au changement climatique. Tous ces forçages radiatifs résultent d'un ou de plusieurs facteurs qui affectent le climat et sont associés à des activités humaines ou des processus naturels. Les valeurs représentent les forçages en 2005 par rapport au début de l'ère industrielle (environ 1750). Les activités humaines sont responsables de changements importants pour les gaz à longue durée de vie, l'ozone, la vapeur d'eau, l'albédo de surface, les aérosols et des panaches d'avions. L'unique augmentation d'importance du forçage d'origine naturelle entre 1750 et 2005 est liée à l'existence solaire. Des forçages positifs conduisent au réchauffement du climat et des forçages négatifs engendrent un refroidissement. La fine ligne noire associée à chaque barre colorée représente la plage d'incertitude pour la valeur correspondante. Les valeurs fournissent le forçage radiatif global moyen (meilleure estimation et plages d'incertitude à 5 et 95 %), ainsi que le domaine géographique typique associé au forçage (échelle spatiale) et le niveau de connaissance scientifique estimé (LOSU). Les aérosols émis lors d'éruptions volcaniques contribuent à un terme de refroidissement épisodique additionnel quelques années après l'éruption. La plage indiquée pour les panaches d'avions linéaires n'inclut pas d'autres effets éventuels de l'aviation sur la couverture nuageuse.

## 1.3.2.1 Effet radiatif direct

A l'échelle globale, les aérosols agissent sur le climat de manière directe au même titre que les gaz à effet de serre (McCormick and Ludwig, 1967 ; Hansen et al., 2000 ; Ramanathan et

## 1. Introduction générale

---

al., 2001). Les aérosols rediffusent dans toutes les directions et éventuellement absorbent, suivant leurs propriétés optiques, le rayonnement solaire qu'ils interceptent (Fig. 1.4). C'est l'effet parasol encore appelé « effet direct ». L'intensité de la diffusion et de l'absorption dépend des caractéristiques physiques et chimiques des aérosols et de la longueur d'onde du rayonnement. La diffusion est l'effet majeur pour le rayonnement solaire, en particulier dans le cas des aérosols liés à la pollution; elle joue un rôle moins important pour le rayonnement tellurique. La rétrodiffusion du rayonnement vers l'espace induit en moyenne globale une diminution nette 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 d'environ 25 à 50 % (IPCC, 2007 ; Kiehl et Briegleb, 1993 ; Charlson et al., 1992), sauf si les aérosols sont absorbants et la surface brillante. En effet, ce processus dépend des capacités d'absorption de l'aérosol mais aussi de l'albédo planétaire qui est la fraction de rayonnement solaire directement renvoyé vers l'espace (par réflexion ou par diffusion) par la surface de la Terre ou par l'atmosphère via les nuages, les molécules gazeuses et les particules. Contrairement au cas de réflexion, l'absorption tend à diminuer l'albédo car elle permet à une plus grande partie du rayonnement solaire d'atteindre la surface terrestre (Ackerman et al., 2000). Dans le cas d'aérosols absorbants avec une réflectance de surface importante (au-dessus des surfaces désertiques notamment), l'effet d'absorption peut dominer par rapport à l'effet de réflexion et le forçage radiatif induit sera positif (Haywood and Shine, 1995; Haywood and Boucher, 2000). L'effet radiatif dans l'infrarouge thermique est moindre mais non négligeable : le rayonnement infrarouge émis par la surface et l'atmosphère est absorbé et réémis (et diffusé) par les aérosols, une partie est donc piégée par effet de serre (Sokolik et al., 1998 ; Vogelmann et al., 2003 ; Reddy et al., 2005). Le forçage direct est estimé actuellement à  $-0,5\text{W.m}^{-2}$  (Fig. 1.3).

### ***1.3.2.2 Effet radiatif semi-direct***

L'absorption par les aérosols, notamment les carbonés suies dans les spectres ultraviolet et visible, provoque aussi un réchauffement au niveau des couches atmosphériques où ils se trouvent et donc modifie l'équilibre vertical de la basse et moyenne troposphère (e.g. Léon et al., 2002). Cet échauffement peut être suffisamment important pour provoquer l'évaporation des nuages éventuellement présents (Fig. 1.4). Dans le cas où l'absorption se produit dans des zones claires, il peut y avoir inhibition de la formation nuageuse (Hansen et al. 1997 ; Ackerman et al., 2000). Cet effet dit semi-direct, puisque sa cause est l'effet direct des aérosols, exerce donc un forçage positif par diminution de l'albédo planétaire. Ce dernier forçage pourrait ne pas être négligeable et pourrait compenser de 60% l'effet direct (Ramanathan et al., 2001). De plus, en favorisant les processus de catalyse hétérogène, les aérosols sont également susceptibles de modifier les processus chimiques dans l'atmosphère.

### ***1.3.2.3 Effet radiatif indirect***

L'impact des aérosols, notamment des aérosols hydrophiles (sulfates, nitrates, chlorures, ...), sur le climat est également indirect du fait de leur rôle en tant que noyaux de condensation (CCN) qui initient la nucléation des gouttes d'eau et des cristaux de glace, menant à la formation des nuages (Twomey, 1974, 1977 ; Twomey et al., 1984 ; Arking, 1991). La multiplication des surfaces disponibles pour la condensation de la vapeur d'eau saturante modifie les propriétés optiques des nuages en modifiant la taille et le nombre des gouttelettes d'eau qui les forment (Fig. 1.4). Pour un contenu en vapeur d'eau donné, l'augmentation du nombre de noyaux de condensation provoque une augmentation du nombre de gouttes mais

# 1. Introduction générale

une diminution de leur taille moyenne. Ce nombre de gouttes est dix fois plus fort au-dessus des zones de fortes émissions qu'au-dessus des zones de faibles émissions.

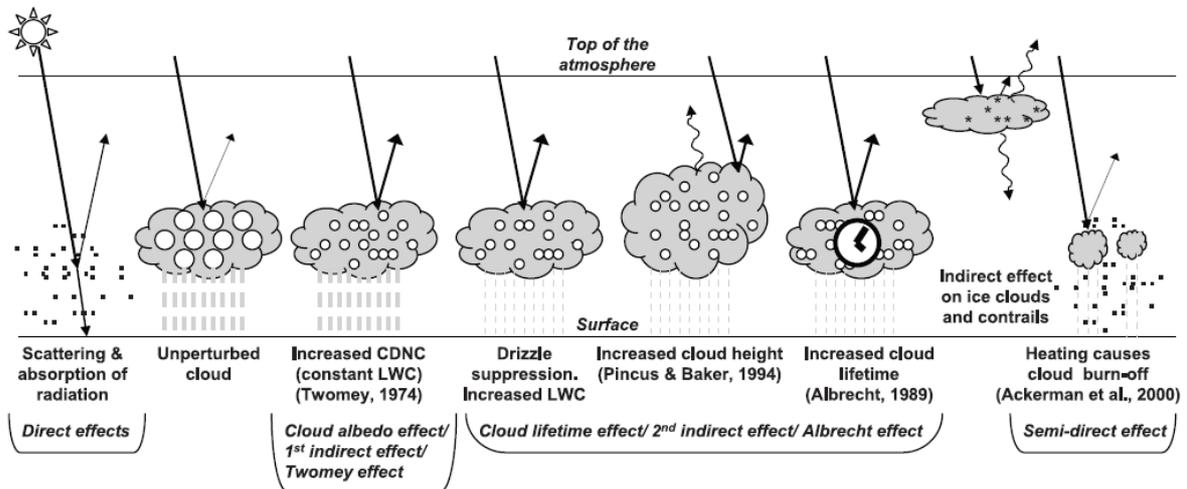


Fig. 1.4 : Schéma présentant les divers mécanismes radiatifs associés aux effets des nuages qui ont été identifiés comme significatifs en liaison avec des aérosols (d'après Haywood and Boucher (2000)). Les petits points noirs représentent des particules, les cercles blancs plus gros des gouttelettes nuageuses. Les lignes en trait plein représentent le rayonnement solaire incident et réfléchi, et les lignes ondulées le rayonnement terrestre. Les cercles blancs indiquent la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses (CDNC). Un nuage non perturbé contient de plus larges gouttes nuageuses car seuls les aérosols naturels sont disponibles pour servir de noyaux de condensation (CCN), tandis qu'un nuage perturbé contient davantage de petites gouttes nuageuses étant donné que les aérosols naturels et anthropiques sont disponibles pour servir de CCN. Les tirets gris verticaux représentant les précipitations, et LWC se rapporte au contenu en eau liquide.

Le premier effet indirect (« effet Twomey ») qui en résulte est une augmentation de la couverture nuageuse : le changement de microstructure, avec une concentration en aérosols plus élevée et des gouttelettes bien plus fines, a pour effet de rendre le nuage plus diffusant aux courtes longueurs d'onde (rayonnement solaire) ce qui augmente l'albédo lié aux nuages (Twomey, 1974, 1977 ; Coakley et al., 1987 ; Kim and Cess, 1993), et donc diminue l'énergie entrant dans le système Terre-atmosphère. Il faut également noter que les particules de poussière les plus grosses sont d'efficaces noyaux glaçogènes (Chen et al., 1998 ; Pruppacher et Klett, 1997), affectant la formation et les propriétés des nuages de glace dans la partie haute de la troposphère. L'interaction entre un cirrus et les particules de carbone suie émises par les avions (ou les particules minérales insolubles lorsqu'elles sont disponibles aux hautes altitudes) a comme conséquence une augmentation de l'albédo du nuage (Jensen and Toon, 1997).

Le deuxième effet indirect (« effet d'Albrecht ») est dû au fait que cette diminution de la taille des gouttes d'eau retarde la précipitation des nuages (diminution de la fréquence et de l'efficacité des événements pluvieux, Rosenfeld et al. (2002)), ce qui modifie la teneur en eau liquide et l'épaisseur du nuage (Pincus and Baker, 1994). La durée de vie du nuage est ainsi augmentée (Albrecht, 1989). Ce second effet indirect a pour conséquence une intensification du premier effet indirect et une modification de tout le cycle hydrologique (Rosenfeld, 1999, 2000). Les incertitudes restent nombreuses sur les conséquences radiatives de cette longévité accrue des nuages. De façon encore très incertaine, la perturbation radiative liée au deuxième

## 1. Introduction générale

---

effet indirect aurait un signe variant selon l'altitude du nuage et pourrait avoir la même ampleur que celle associée au premier effet.

Ces deux effets indirects induisent une augmentation de la réflexion du rayonnement solaire vers l'espace et sont associés à un forçage radiatif négatif. Les évaluations des effets radiatifs indirects des aérosols varient énormément. La combinaison des deux effets indirects se situe entre  $-1,4$  et  $-4,8$   $\text{W/m}^2$  (Lohmann and Feichter, 2005) pour les sulfates. Jones et al. (1994) ont évalué l'effet indirect à  $-1,3$   $\text{W/m}^2$ , tandis que Kaufman and Chou (1993) ont proposé une valeur de  $-0,45$   $\text{W/m}^2$ . L'effet indirect à l'échelle globale bien que difficilement quantifié malgré des observations récentes (Bréon et al., 2002), est estimé à des valeurs comparables au forçage direct.

### 1.4 Enjeux scientifiques

---

Bien que de nombreux travaux aient été effectués et que des progrès significatifs aient été accomplis dans le domaine des prévisions climatiques, il reste encore de nombreuses sources d'incertitudes, tel que le démontrent les barres d'erreurs concernant les valeurs de forçage radiatif additionnel correspondant aux aérosols, données dans la Fig. 1.3. Le forçage direct par les aérosols anthropiques se situe entre  $-0.1$  et  $-0.9$   $\text{Wm}^{-2}$ . Les estimations pour le forçage indirect sont entre  $-0.3$  et  $-1.8$   $\text{Wm}^{-2}$ . Ces valeurs sont comparables en valeur absolue mais opposées en signe à celles du forçage radiatif dû aux gaz à effet de serre (entre  $+2.3$  et  $+2.9$   $\text{Wm}^{-2}$ ). L'effet radiatif des aérosols dépend principalement et de manière significative du nombre de particules, de leur taille, de leur composition chimique (état de mélange interne et externe) et de leur forme. Les trois premiers paramètres sont respectivement représentés par leur distribution en taille et leur indice complexe de réfraction. La variabilité des comportements radiatifs de l'aérosol va donc dépendre des variabilités combinées de sa distribution en taille et son indice de réfraction, associées à son caractère hygroscopique. Il existe donc un réel intérêt à l'étude de ces particules, avec pour finalité de caractériser leurs propriétés macrophysiques (sources, localisation spatiale, transport, ...) et microphysiques, ainsi que leur impact radiatif. A cause du manque de données d'observation, la plupart des évaluations du forçage radiatif dû aux aérosols troposphériques sont basées sur des études théoriques. La dispersion des résultats indique clairement les besoins en données d'observation sur les propriétés chimiques et physiques des aérosols, et la nécessité d'améliorer les calculs de leur distribution. La détermination de ces paramètres repose nécessairement sur des campagnes de mesures in situ qui permettent d'améliorer la connaissance des processus, d'initialiser les algorithmes de traitement d'observations obtenues à partir de plateformes spatiales et de valider les résultats de modèles. De telles campagnes de mesures sont organisées dans les régions sources ou en périphérie de régions sources afin d'avancer dans la connaissance des aérosols et des processus chimiques, microphysiques et optiques liés à ces particules, comme par exemple INDOEX (INDIAN Ocean EXperiment) en 1997 (e.g., Ramanathan et al., 2001 ; Chazette, 2003), ACE-2 (Aerosol Characterization Experiment-2) en 1997 (e.g. Flamant et al., 2000), ACE-ASIA (Aerosol Characterization Experiments) en 2001 (e.g. Huebert et al., 2003) ou AMMA (African Multidisciplinary Monsoon Analysis) en 2006 (e.g. Chazette et al., 2007a).

En terme de pollution atmosphérique, il est également primordial de mieux quantifier les incertitudes liées aux aérosols et de les réduire en améliorant la qualité des ensembles de

données d'observation tout en couplant celles-ci à des modélisations adaptées : modèle Meso-NH (Grini et al., 2006), modèle SIREAM (Tombette and Sportisse, 2007) ou à l'échelle globale (Hauglustaine, et al., 1998). En dépit de l'essor considérable pris par l'étude des polluants particulaires ces dix dernières années, nos connaissances sur la pollution urbaine concernent, encore aujourd'hui, davantage les aspects photochimiques que particulaires. Les aérosols ne sont pas en effet constitués par une entité chimique bien définie, mais un mélange hétérogène dont chaque élément est caractérisé par un état, une composition chimique, une granulométrie et une dynamique d'évolution dans l'atmosphère. Ainsi, la caractérisation des aérosols en concentrations massiques ( $PM_{2.5}$  ou  $PM_{10}$ ) n'est pas totalement satisfaisante car cette approche n'est pas sensible aux très fines particules dont la taille est située en dessous de  $0.1 \mu m$  (impact sanitaire), qui représentent plus de 90% du nombre total de particules en atmosphère urbaine mais qui sont généralement négligeables en masse. La connaissance de ces particules, de leurs mécanismes de formation et d'évolution, ainsi que leurs interactions et effets sur l'environnement sont encore mal connus et nécessitent de la part de la communauté scientifique des efforts de recherche importants. Là encore, des campagnes de mesure sont mises en place pour réduire les incertitudes, comme par exemple ESQUIF (Etude et Simulation de la Qualité de l'air en Ile-de-France) en 2000 (Menut, et al., 2000 ; Chazette et al., 2005b), ESCOMPTE (Expérience sur Site pour Contraindre les Modèles de Pollution atmosphérique et de Transport d'Emissions) en 2001 (Mestayer et al., 2005), POVA (Pollution dans les Vallées Alpines) en 2002 (e.g. Chazette et al., 2005a) ou LISAIR (Lidar pour la Surveillance de l'AIR) en 2005 (Raut et Chazette, 2007 ; Chazette, 2007b).

Ainsi, tant en terme d'impact radiatif que de conséquences sur la pollution, des questions non résolues apparaissent et des directions primordiales à explorer se dessinent pour avancer dans la connaissance de la caractérisation des aérosols de pollution. L'objectif de ce travail de thèse est d'explorer certaines de ces directions. Elles concernent principalement la structure verticale des différentes couches d'aérosols, leur structure interne microphysique et chimique, leurs propriétés optiques, notamment leur indice complexe de réfraction et leur coefficient d'extinction, leur contribution au forçage radiatif, notamment le rôle des différentes couches séparées ou mélangées. L'approche développée s'appuie intensivement sur l'approche expérimentale : les mesures effectuées pendant les campagnes de terrain LISAIR, ESQUIF et AMMA ont été synthétisées sous un angle nouveau afin de mettre en évidence la complémentarité des observations de télédétection active et passive avec des données in situ et d'atteindre des caractéristiques nouvelles des aérosols.

## 1.5 Organisation du manuscrit

---

### 1.5.1 Objectifs de la thèse

Les travaux que j'ai menés durant ma thèse ont pour principal objectif scientifique une meilleure caractérisation des propriétés optiques des aérosols atmosphériques et de leurs évolutions car elles constituent des pré requis indispensables pour améliorer la connaissance que nous avons de leurs impacts sur les deux thématiques à caractère sociétal que sont la qualité de l'air et le climat. Ce travail a été conduit selon deux étapes principales : (i) la définition d'une méthodologie originale d'analyse couplant des observations de télédétection active et passive à l'observation in situ, et (ii) la mise en place d'applications sur la qualité de l'air et le bilan radiatif du système couplé Terre-Atmosphère.

# 1. Introduction générale

---

Il s'agit de pouvoir suivre l'évolution de l'aérosol naturel ou anthropique dans le temps et dans l'espace. Les observations in situ réalisées au sol permettent efficacement par des études de fermeture de caractériser les propriétés de l'aérosol en surface. Le lidar apporte un complément incontournable pour évaluer la variabilité horizontale et surtout verticale de ces propriétés microphysiques et optiques dans la couche limite atmosphérique (CLA) (e.g. Dupont et al., 1994 ; Menut et al., 1999 ; Raut et Chazette, 2007 ; Chazette, 2007b). Les méthodes de fermeture originales développées dans cette thèse se sont essentiellement axées sur la détermination de l'indice complexe de réfraction et de l'albédo de simple diffusion des aérosols présents dans la colonne d'air. Ce sont généralement des paramètres difficiles à évaluer en conditions réelles. Les données lidar obtenues durant les programmes LISAIR et ESQUIF ont été exploitées, intégrant des études de processus sur le rôle de l'aérosol dans la photochimie en milieu urbanisé (région parisienne). Cela a permis la valorisation de l'utilisation d'un système lidar dédié à l'étude de la qualité de l'air en environnement urbain. Je me suis intéressé à la variabilité temporelle de cet indice et à son évolution en fonction de l'humidité relative de l'air ambiant, de l'arrivée éventuelle de masses d'air transfrontalières et de l'état de mélange des particules. Ces travaux méthodologiques ont pu être appliqués aux aérosols mesurés lors de la campagne internationale AMMA. Ils ont ainsi permis d'identifier des signatures optiques et structurales très contrastées entre les particules issues de feux de biomasse et celles issus d'épisodes de soulèvement d'aérosols désertiques au-dessus du Sahara. Afin de mieux comprendre certains processus, il a été judicieux d'associer les observations à la modélisation de processus photochimiques et radiatifs.

## 1.5.2 Plan de la thèse

Ce manuscrit est construit essentiellement sur les résultats recensés dans trois articles publiés (Raut and Chazette, 2007 ; 2008a) ou soumis à publication (Raut and Chazette, 2008b) dans des revues scientifiques à comité de lecture. Certains résultats supplémentaires présentés font référence à d'autres travaux auxquels j'ai pu participer : Kim et al. (2008), Chazette et al. (2008). Enfin, deux articles basés sur la caractérisation des aérosols en environnement souterrain (gare SNCF) et dont les principaux résultats s'appuient sur les méthodologies développées dans cette thèse sont présentés en annexe : Raut et al. (2008a ; 2008b).

Le Chapitre 2 présente les paramètres qui définissent les aérosols et l'impact de leurs propriétés microphysiques sur leurs propriétés optiques. Il approfondit la notion d'interaction entre les aérosols et le rayonnement. Les équations qui régissent cette physique sont présentées de façon à identifier les paramètres clés qui devront être considérés pour la télédétection des aérosols et pour le calcul de leur forçage radiatif.

Le Chapitre 3 identifie les moyens d'observation qui ont été mis en œuvre durant cette thèse. Les principes de fonctionnement des instruments et leurs incertitudes sont décrits. Une attention toute particulière est portée aux systèmes lidar à rétrodiffusion Mie qui ont été utilisés et aux paramètres qu'ils permettent de restituer.

Le Chapitre 4 s'appuie sur l'article de Raut and Chazette (2007) qui a été rédigé suite à la campagne LISAIR de mai 2005 sur Paris. Il constitue une étude sur l'aérosol anthropique en régions urbaine dans une mégapole. Une synergie combinant instruments de télédétection active, passive et des mesures in situ au sein d'une station basée au niveau du sol a été mise en place pour étudier les propriétés optiques de l'aérosol parisien. Ces travaux pionniers ont

# 1. Introduction générale

---

permis le développement d'une méthode visant à déterminer l'indice complexe de réfraction et l'albédo de simple diffusion des aérosols présents dans la basse troposphère.

Le Chapitre 5 présente l'extension de la méthode à des mesures aéroportées réalisées lors de la campagne nationale ESQUIF 2000, afin d'obtenir pour la première fois des profils verticaux de l'indice complexe de réfraction des aérosols parisiens avec une très bonne résolution verticale (200 m). Les différences au niveau des propriétés optiques des particules sont discutées selon leur origine et leur nature (Raut and Chazette, 2008a).

Dans le Chapitre 6, des structures multicouches d'aérosols de poussières désertiques dans la couche limite et des aérosols provenant de feux de biomasse dans la troposphère libre sont étudiées lors de la campagne AMMA en janvier – février 2006 (SOP-0) au Niger (Raut and Chazette, 2008b). L'application de la méthodologie développée précédemment a permis de déterminer les taux d'échauffement radiatif dus aux différents types d'aérosols présents. Les impacts radiatifs relatifs respectifs des couches d'aérosol ont été évalués et des études de sensibilité ont été conduites.

Enfin, différentes conclusions sont tirées de cette thèse, et les principales perspectives de recherche ouvertes par ce travail sont présentées.