
L'aérosol des propriétés microphysiques à l'interaction avec le rayonnement

2.1 Introduction

Les incertitudes liées aux aérosols sont très importantes (Chapitre 1). En effet, les aérosols ont une très courte durée de vie, de quelques heures à quelques jours surtout dans la basse troposphère, et leur nature dépend de sources de production diverses. Ils varient alors rapidement dans le temps et dans l'espace, leur répartition horizontale et dans la colonne d'air est donc très hétérogène ce qui rend leur étude compliquée. L'aérosol a un impact encore mal connu sur le bilan radiatif du système Terre/Atmosphère via ses interactions avec les rayonnements solaire et tellurique. Il est aussi l'une des composantes importantes à surveiller pour la pollution en milieu urbain et périurbain. L'effet environnemental régionalisé des aérosols influence également considérablement l'échelle globale (IPCC 2007). Ainsi, tant sur l'aspect climatique qu'en terme de pollution atmosphérique, il est plus que nécessaire de mieux quantifier les incertitudes liées aux aérosols et de les réduire en améliorant la qualité des ensembles de données d'observation. On détaille dans ce chapitre l'ensemble des paramètres pertinents qui pourront être restitués par la mesure pour les impacts climatiques et sanitaires de l'aérosol. Les méthodes de résolution de l'équation de transfert radiatif sont aussi décrites à partir des lois d'interaction entre une particule et le rayonnement incident.

2.2 Propriétés microphysiques des aérosols

2.2.1 Origine et composition chimique

La variabilité des sources d'émission et des processus de formation et d'évolution des particules dans l'atmosphère conduit à une grande variété de compositions et de types d'aérosols dans le temps et l'espace. Selon leur origine, les aérosols sont classés en deux familles principales, les sources naturelles et les sources anthropiques. La source naturelle représente environ 80-95% de la masse des aérosols émis dans l'atmosphère c'est-à-dire environ 3000 millions de tonnes par an (Seinfeld and Pandis, 1998). Les sources naturelles sont constituées principalement d'aérosols minéraux (35-50%) et de sels marins (35-55%). Les sources anthropiques (5-10% des émissions totales de particules) sont issues principalement des rejets industriels (fumées, poussières,...), des trafics routier et aérien, des

2. Des propriétés microphysiques à l'interaction avec le rayonnement

combustions (usines, secteur résidentiel,...), de l'incinération des ordures, des chantiers de construction ou encore de l'agriculture. Cette moindre importance numéraire des émissions anthropiques par rapport aux sources naturelles ne doit pas masquer leur rôle du fait de tailles bien plus faibles, favorables à l'extinction du rayonnement. A cela s'ajoute, comme on le verra dans la suite, la différence de propriétés optiques induite par la proportion de suie au sein de la particule. Les principaux types d'aérosols naturels ou anthropiques qui peuvent être rencontrés dans l'atmosphère terrestre sont donnés dans le Tableau 2.1.

Une autre classification consiste à différencier aérosols primaires et secondaires (Tableau 2.1). On parle d'aérosols primaires lorsque ce sont des particules émises directement dans l'atmosphère sous forme solide ou liquide comme par exemple les aérosols minéraux résultant de l'érosion des sols et de la resuspension, les embruns marins et les cendres volcaniques. Le carbone suie est également émis directement par les processus de combustion de la biomasse ou des fuels fossiles. A l'inverse, les aérosols secondaires résultent de réactions chimiques en phase gazeuse (oxydation par l'ozone ou les radicaux hydroxyles) par un processus de conversion gaz - particules via les phénomènes de nucléation, condensation ou production en phase aqueuse. Les gaz précurseurs proviennent essentiellement de processus de combustion et de l'émission naturelle du sol ou suite à l'utilisation d'engrais. Ainsi, une bonne partie des sulfates, des nitrates (composés inorganiques de même que l'ammonium, le chlore, le sodium ou le calcium), certains métaux comme le magnésium, l'aluminium, le fer et une partie des particules organiques présentes dans l'atmosphère sont des aérosols secondaires (carbone organique résultant de la condensation, de l'oxydation des composés organiques volatiles ou de la combustion de biomasse).

Tableau 2.1 : Principales sources d'aérosols primaires et secondaires dans l'atmosphère et leurs flux d'émission moyens annuels d'après Kiehl and Rodhe (1995) et Seinfeld and Pandis (1998), IPCC (1995), IPCC (2001) (Source : Chazette (2002b)).

Source	Tg (10 ¹² g)/an
Naturelle	
<i>Aérosols de type primaire</i>	
Poussières désertiques	≈ 1500/1500/2150
Sels de Mer	≈ 1300/1300/3340
Poussières volcaniques	≈ 30/33/33
Débris biogéniques	≈ 50/56
Carbone suie (produit par la combustion de la biomasse)	≈ 6-9
<i>Aérosols de type secondaire</i>	
Sulfates produits par les gaz biogéniques	≈ 130/90/57
Sulfates produits par le SO ₂ volcanique	≈ 20/12/21
Nitrates principalement produits par les oxydes d'azote	≈ 30/22/4
Combustion de la biomasse (organiques, nitrates, sulfates)	≈ 90
Combustion de la biomasse (carbone organique seul)	≈ 45-80
Carbone organique produit par les gaz biogéniques (COV)	5-12/16
Anthropique	
<i>Aérosols de type primaire</i>	
Poussières industrielles	≈ 100/100/100-200
Carbone Suie	≈ 10/13/6-8
<i>Aérosols de type secondaire</i>	
Carbone organique produit par la combustion des fuels fossiles	≈ 10/60/10-30
Sulfates produit par le SO ₂	≈ 190/140/122
Nitrates principalement produit par les oxydes d'azote	≈ 50/40/14

Les travaux conduits dans cette thèse sont majoritairement axés sur les propriétés optiques des aérosols, notamment leur indice de réfraction, et sur l'interaction avec le rayonnement solaire.

Il convient alors de préciser qu'une bonne évaluation des propriétés optiques de l'aérosol atmosphérique ne nécessite pas de connaître la spéciation complète de l'aérosol, en particulier celle de l'aérosol organique. Avec la même approche que celle utilisée dans l'article de Chazette and Liou (2001), l'aérosol sera partitionné, sauf mention contraire (article en annexe de Raut et al. (2008a)), en cinq grandes classes que sont la partie organique (POM déduit du carbone organique OC), les particules solubles autres qu'organiques (WS), le carbone suie (BC), les poussières (Dust) et les sels de mer (SS).

- Les aérosols minéraux sont la première source mondiale d'aérosols. Ils sont constitués de particules d'argile, de quartz, de feldspath, de calcite, etc. et parfois de sels provenant de lacs asséchés. Une fois soulevées par le vent, les grosses particules retombent rapidement au sol alors que les plus petites forment un nuage sec qui peut s'élever jusqu'à 4-6 km d'altitude et s'étendre sur des milliers de kilomètres. C'est ainsi qu'on retrouve en Europe ou en Amérique du Sud des particules en provenance du continent africain.

- Les aérosols marins sont formés par évaporation des gouttelettes d'eau à la surface des océans mais aussi par éclatement de bulles dû au déferlement des vagues et aux courants marins. Outre le dioxyde de carbone, ces bulles d'un diamètre de l'ordre du millimètre libèrent des dizaines de particules de sel microscopiques (sodium, chlore, soufre) qui ne se brisent pas et participent à la formation de brumes.

- Les aérosols solubles dans l'eau en augmentation au cours de la période industrielle (sulfates, nitrates, substances organiques) sont généralement concentrés autour des régions industrielles.

- Les aérosols de combustion sont présents dans les régions tropicales et boréales en raison de nombreux feux de forêt. Par exemple les brûlis de la végétation intertropicale en période sèche occasionnent chaque année des brumes sèches qui disparaissent une fois les pluies revenues. Ils sont aussi produits par combustion interne dans les moteurs (circulation automobile) et par combustion industrielle.

- Les aérosols de sulfates sont majoritairement d'origine volcanique : le dioxyde de soufre SO_2 émis lors des éruptions volcaniques produit ces fines particules d'acide sulfurique ($\text{SO}_2 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_2\text{SO}_4$) qui s'entourent de glace et forment avec les cendres un écran empêchant le rayonnement solaire d'arriver jusqu'au sol. Ils ne sont pas considérés dans ce travail de thèse car ils sont majoritairement concentrés dans la stratosphère. Il faut y ajouter les émissions industrielles dans la troposphère : SO_2 est en effet un polluant réglementé. Avec la diminution du soufre dans l'essence depuis 1994 (limitations européennes à 50 ppm en 2005 puis 10 ppm en 2009 dans les carburants diesel), la quantité de sulfates a également diminué dans les grandes agglomérations comme Paris. Néanmoins, beaucoup de rejets sont encore liés à l'activité industrielle. Les sulfates sont pris en compte dans la partie WS.

Collecter ces constituants de base et mesurer leurs propriétés physico-chimiques (taille des particules, indice de réfraction) n'est pas une mince affaire car ces dernières varient parfois fortement pour un même constituant.

2.2.2 Distribution granulométrique

La diversité des sources et des processus mécaniques et chimiques intervenant pour générer une population de particules a pour conséquence une multitude de morphologies et de tailles d'aérosols. La taille des particules n'est donc pas unique mais s'étale sur une gamme de « rayons » de plusieurs ordres de grandeurs dont la répartition en nombre (ou en surface, en masse ou en volume) est appelée distribution en taille. Si la forme de la particule est

2. Des propriétés microphysiques à l'interaction avec le rayonnement

complexe, le « rayon » peut désigner par exemple la longueur du plus grand axe ou le rapport du volume sur l'aire. Il est important de connaître la distribution en taille car les effets des particules sur les processus chimiques et radiatifs de la planète en dépendent : la sensibilité des propriétés optiques à la distribution en taille complexifie en effet la relation entre l'émission des aérosols et leur forçage radiatif additionnel. Une part importante des incertitudes sur l'estimation du forçage radiatif provient d'une méconnaissance des processus de modification de la nature chimique et de la distribution en taille survenant au cours du vieillissement de l'aérosol. D'une manière générale, plus les particules seront de taille importante, plus leur sédimentation sera rapide et donc leur temps de séjour dans l'atmosphère sera court.

Afin de représenter la distribution en taille, différentes lois statistiques ont été proposées et testées (Lenoble, 1993). Les distributions lognormales du fait de leurs propriétés mathématiques (fonctions simples de classe C_∞), sont ainsi largement utilisées pour la modélisation de la distribution en taille des aérosols atmosphériques (Aitchison and Brown, 1957) car ce sont celles qui ont été déterminées comme les plus proches des distributions observées dans la nature (Hinds, 1982; Giorgi, 1988; Jaenicke, 1988). Schwartz (1995) et Lacis and Mishchenko (1995) recommandent d'utiliser plusieurs modes de faible variance pour représenter la distribution en taille de chaque type d'aérosols plutôt que d'utiliser une distribution monomodale très large. En effet, pour des valeurs d'écart-type supérieures à 3, apparaît une dépendance artificielle des propriétés optiques à des particules de rayons de 10 à 100 μm qui n'ont pas de réalité physique mais qui sont implicitement induites par la queue de la distribution du côté des larges particules. Souvent les distributions sont d'ailleurs tronquées à des valeurs arbitraires (D'Almeida and Schütz, 1983). Selon la proximité ou l'éloignement de la source et en fonction de processus physico-chimique de transformations (ou « vieillissement ») qu'aura pu subir l'aérosol durant son transport, sa distribution en taille pourra présenter un, deux, voire trois modes spectraux. Trois modes principaux correspondant à des maxima locaux de la distribution en taille ($p=3$) sont généralement observés dans la nature, mais les intervalles encadrant ces modes ne sont pas rigoureusement fixés dans la littérature.

D'après les classifications à partir des granulométries en masse établies par Seinfeld and Pandis (1998) inspirées des travaux de Whitby and Cantrell (1976), les particules ayant des rayons $> 1 \mu\text{m}$ sont considérées comme étant dans le mode grossier, celles ayant des rayons $< 1 \mu\text{m}$ sont situées dans le mode fin, lui-même subdivisé en mode de nucléation (appelé parfois mode de nucléation d'Aitken) pour les rayons $< 0.05 \mu\text{m}$ et en mode d'accumulation pour les rayons compris entre $0.05 \mu\text{m}$ et $1 \mu\text{m}$. Ces différentes classifications viennent principalement de la différence entre les processus à l'origine de la formation des particules.

Les particules du mode de nucléation proviennent essentiellement des processus de conversion gaz/particules à température ambiante ou encore lors du refroidissement des gaz lors de processus de combustion. Il s'agit donc en majorité des particules secondaires produites par condensation homogène ou hétérogène, ou d'agrégats de carbone suie issus de la combustion (feux de forêt et fuels fossiles). C'est le mode qui domine la distribution en nombre mais leur petite taille ne leur permet d'avoir qu'une contribution massique et optique assez faible. Ces particules primaires ont une très courte durée de vie car celles-ci grandissent rapidement pour atteindre le mode d'accumulation (Whitby, 1978). En effet, ces très fines particules primaires peuvent croître soit par condensation de gaz à faible vapeur saturante, soit par coagulation entre elles ou avec des particules de plus grosse taille lorsque celles-ci rentrent en contact par diffusion brownienne.

2. Des propriétés microphysiques à l'interaction avec le rayonnement

Le mode d'accumulation comprend des particules secondaires générées par condensation hétérogène mais aussi des particules issues de l'agrégation par coagulation des particules du mode de nucléation, ou encore des particules issues de la ré-évaporation de gouttelettes. La coagulation est facilitée car la dimension propre de ces particules est de l'ordre de grandeur de leur libre parcours moyen, distance sous laquelle les particules accroissent considérablement leur probabilité de collision entre elles et donc leur propension à s'agglutiner les unes aux autres. Les processus de coagulation menant à l'échange entre le mode d'Aitken et ceux d'accumulation sont décrits en détail par Twomey (1977). Ce mode contient aussi le mode fin des aérosols de sels de mer et des aérosols minéraux. Ces particules ont une durée de vie beaucoup plus importante que les précédentes et ont des effets notables sur le bilan radiatif de l'atmosphère, sur la formation des nuages ainsi que sur la santé.

Le mode grossier contient surtout des particules primaires de formes très variées qui ont été produites mécaniquement : érosion des surfaces par le vent, sels de mer ou émissions par les volcans et les plantes. Il y a une probabilité très faible de passage du mode d'accumulation au mode grossier par coagulation. C'est généralement le mode qui domine la distribution en masse mais leur durée de vie est plus faible car elles sont éliminées assez rapidement par sédimentation.

Une telle séparation entre les différents modes reste théorique et peut être mise en défaut par les observations de terrain. On peut par exemple observer plusieurs modes dans une catégorie d'aérosol donnée. Le Tableau 2.2 donne pour les espèces sélectionnées en Sect. 2.2.1 les paramètres des distributions lognormales couramment utilisés dans la littérature.

Tableau 2.2 : Rayon modal et écart-type géométrique de différents types d'aérosols dont la distribution en taille est considérée lognormale (d'après Léon (2000), Mallet (2003), et Raut and Chazette (2008b)).

Type d'aérosols	Rayon modal (μm)	Ecart-type géométrique	Références
OC	0.03 – 0.06	1.7 – 2	Anderson et al., 1996
	0.03	1.8	Alfaro et al., 2002
WS	0.03	2	Boucher and Anderson, 1995
	0.0285	2	d'Almeida et al., 1991
	0.0212	2.24	Hess et al., 1998
BC	0.0118 ⁽¹⁾ / 0.03 ⁽²⁾	2.0 ⁽¹⁾ / 1.7 ⁽²⁾	IAMAP, 1986 ⁽¹⁾
	0.03	2.0	Berner et al., 1996 ⁽²⁾
	0.035	1.54	Clarke et al., 1997 Hitzenberg and Tohno, 2001
SS	1.17	1.46	Chiapello et al., 1999
	1.75	2.03	Hess et al., 1998
	0.209	2.03	Hess et al., 1998
	0.23	2.1	Alfaro et al., 2002
	0.20	2.0	Alfaro et al., 2002
	0.08	1.5	IPCC, 2001, Pacific Marine
	0.07	1.9	IPCC, 2001, Atlantic Marine
Dust	0.155	4	d'Almeida et al., 1991
	0.07 / 0.39 / 1.9	1.95 / 2.0 / 2.15	Hess et al., 1998
	0.05 / 0.27 / 4.0	1.65 / 2.67 / 2.40	d'Almeida et al., 1991
	0.05	2.80	IPCC, 2001, Fine Soil Dus
	0.57	1.53	Chiapello et al., 1999
	0.75	1.60	Alfaro et al., 2002
	0.30	2.00	Dulac et al., 1992a
	0.24	2.00	Dulac et al., 1992b
0.05 / 0.30 / 1.60	1.80 / 1.60 / 1.60	Raut and Chazette, 2008b	

De façon formelle, si dN/dr désigne le nombre de particules par unité de volume comprises entre les rayons r et $r+dr$, la distribution lognormale en nombre constituée de p modes (correspondant aux maxima) s'écrit :

$$\frac{dN}{dr} = \sum_{i=1}^p \left(N_{tot} \cdot \frac{x_i}{r \cdot \sqrt{2\pi} \cdot \ln(\sigma_i)} \exp \left(\frac{\ln^2 \left(\frac{r}{r_{mi}} \right)}{2 \cdot \ln^2(\sigma_i)} \right) \right) \quad (2.1)$$

ou encore, en utilisant $dN/d\ln(r)$, le nombre de particules dont le rayon est compris entre $\ln(r)$ et $\ln(r)+d\ln(r)$:

$$\frac{dN}{d\ln(r)} = \sum_{i=1}^p \left(N_{tot} \cdot \frac{x_i}{\sqrt{2\pi} \cdot \ln(\sigma_i)} \exp \left(\frac{\ln^2 \left(\frac{r}{r_{mi}} \right)}{2 \cdot \ln^2(\sigma_i)} \right) \right) \quad (2.2)$$

N_{tot} est le nombre total de particules par unité de volume, σ_i est l'écart type géométrique, r_{mi} le rayon modal et x_i le taux d'occupation du mode i tel que :

$$\sum_{i=1}^p x_i = 1 \quad (2.3)$$

C'est cette loi statistique qui sera utilisée par la suite dans ce travail.

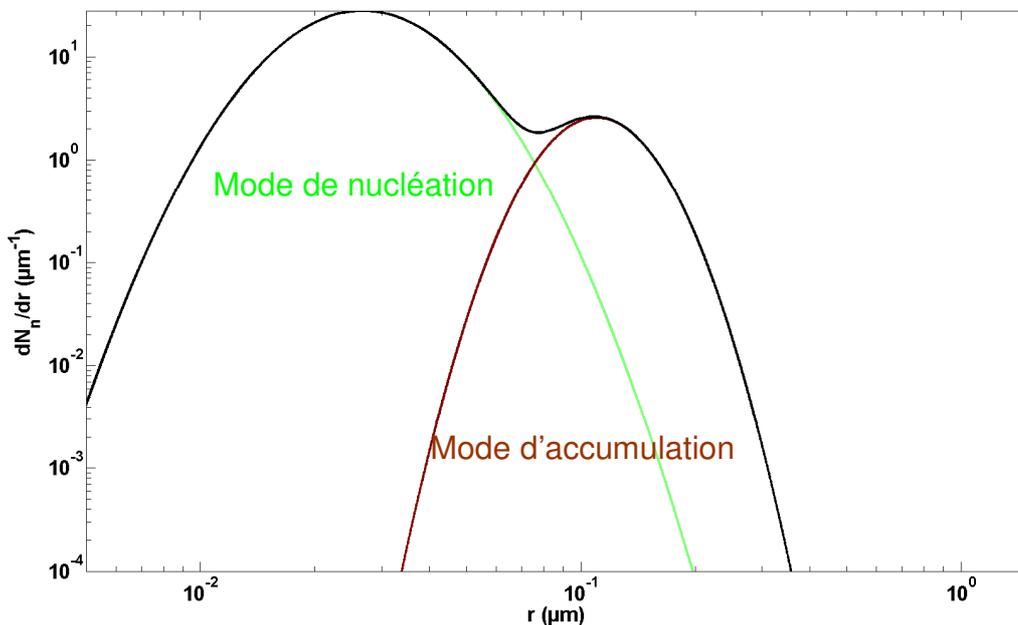


Fig. 2.1 : Représentation des deux principaux modes de la distribution en taille normalisée des aérosols parisiens $\left(\frac{dN_n}{dr} = \frac{1}{N_{tot}} \cdot \frac{dN}{dr} \right)$ (campagnes ESQUIF en 2000 et LISAIR en 2005).

2. Des propriétés microphysiques à l'interaction avec le rayonnement

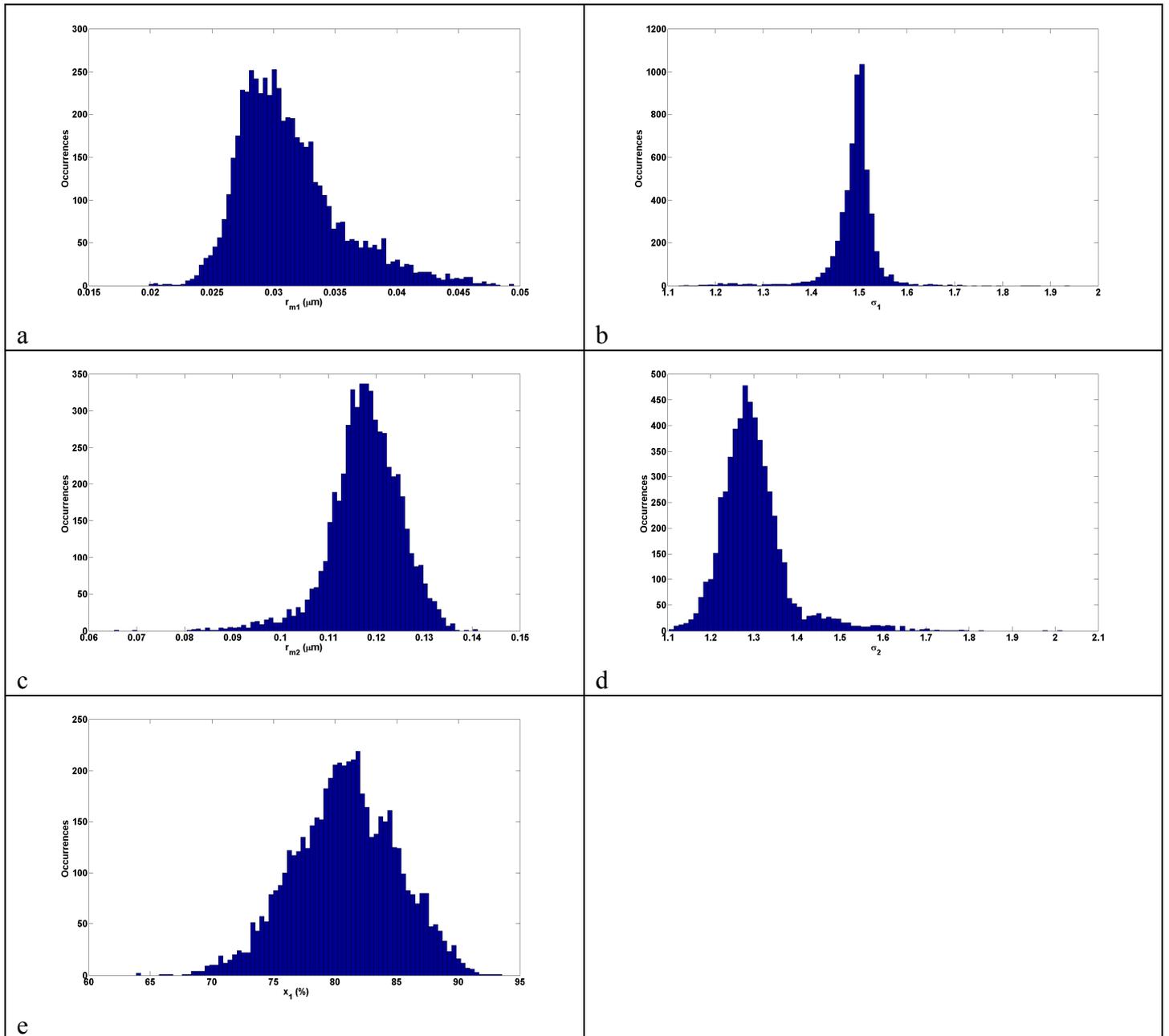


Fig. 2.2 : Variabilité naturelle des rayons modaux (a,c), écarts-types géométriques (b,d) et taux d'occupation (e) des deux principaux modes de la distribution en taille mesurée sur Paris lors de la campagne ESQUIF.

La Fig. 2.1 donne la distribution en taille typique mesurée au-dessus de la région parisienne (campagnes ESQUIF et LISAIR). Cette dernière présente deux modes principaux, que sont le mode de nucléation et le mode d'accumulation. La contribution d'un mode grossier n'a généralement pas été observée durant les périodes de mesures in situ des programmes expérimentaux. La variabilité naturelle des paramètres qui déterminent cette distribution en taille est représentée par des histogrammes en Fig. 2.2. La Fig. 2.3 enfin compare la distribution en nombre déterminée par un photomètre (Chapitre 3) à celles obtenues par la même procédure au-dessus de Banizoumbou (Niger, programme AMMA) pour des aérosols issus de feux de biomasse ou de soulèvements de poussières désertiques. Seuls les aérosols crustaux présentent clairement un mode grossier. Ce dernier est plus facilement détectable par une distribution en volume (ou en masse).

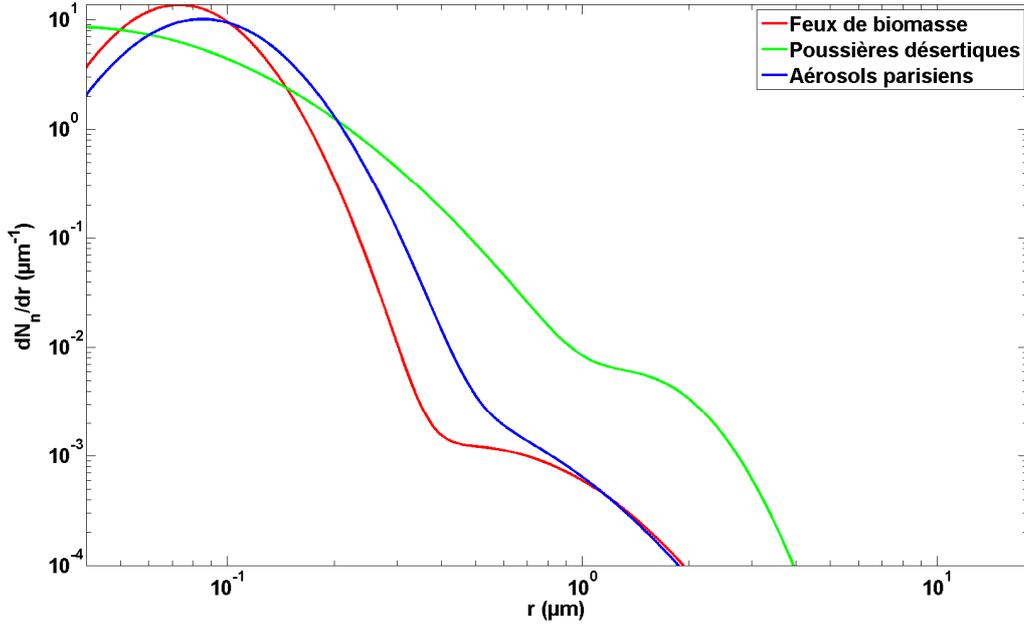


Fig. 2.3 : Distributions lognormales en nombre déterminées par des mesures photométriques au-dessus de Paris (aérosols parisiens) et de Banizoumbou (aérosols de feux de biomasse et poussières désertiques).

Il n'est en effet pas toujours adéquat de s'intéresser à la distribution du nombre de particules. La distribution de la surface convient mieux si l'on s'intéresse aux réactions chimiques dans lesquelles interviennent les aérosols. Si l'on cherche à évaluer la masse des aérosols, la distribution en volume V sera intéressante. Cette dernière s'écrit :

$$\frac{dV}{d \ln(r)} = \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot r^3 \cdot \frac{dN}{d \ln(r)} \quad (2.4)$$

La distribution en volume est aussi une distribution lognormale avec le même écart-type. Par contre, les rayons modaux r_{mi}^V et r_{mi} , ainsi que les taux d'occupation x_i^V et x_i sont différents et sont reliés par les relations :

$$r_{mi}^V = r_{mi} \cdot \exp(3 \cdot \ln^2(\sigma_i)) \quad (2.5)$$

$$x_i^V = \frac{x_i \cdot r_{mi}^3 \cdot \exp\left(\frac{9}{2} \cdot \ln^2(\sigma_i)\right)}{\sum_{i=1}^p \left[x_i \cdot r_{mi}^3 \cdot \exp\left(\frac{9}{2} \cdot \ln^2(\sigma_i)\right) \right]} \quad (2.6)$$

Pour la distribution en masse, on a la relation :

$$x_i^M = \frac{\rho_i \cdot x_i \cdot r_{mi}^3 \cdot \exp\left(\frac{9}{2} \cdot \ln^2(\sigma_i)\right)}{\sum_{i=1}^p \left[\rho_i \cdot x_i \cdot r_{mi}^3 \cdot \exp\left(\frac{9}{2} \cdot \ln^2(\sigma_i)\right) \right]} \quad (2.7)$$

où ρ_i ($\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$) est la densité des particules dans le mode i . r_{mi}^V est donc supérieur à r_{mi} , ce qui traduit le fait que la distribution du volume est décalée vers les grosses particules, qui y contribuent le plus. Il est important de souligner la difficulté expérimentale pour relier les

mesures de granulométrie en nombre et en masse (ou volume), dont les modes prépondérants diffèrent parfois de façon significative (Fig. 2.4). La sensibilité d'un instrument à la mesure de certaines classes de taille est également liée à son diamètre de coupure. Une intercomparaison entre mesures en masse et en nombre n'est possible que pour des diamètres de coupure identiques. L'étude des aérosols de pollution en région urbaine ne doit pas être trop affectée par les limitations associées aux lignes de prélèvement pour un rayon de coupure inférieur au micron (Fig. 2.4). En présence d'aérosols du mode grossier en revanche, des corrections sont nécessaires (Raut et al., 2008b). Les études de fermeture optiques réalisées dans le cadre de cette thèse requièrent une détermination précise de la distribution en taille. Il est en particulier nécessaire de bien contraindre le mode le plus efficace sur le rayonnement de manière à réduire les incertitudes sur la restitution des propriétés optiques de l'aérosol.

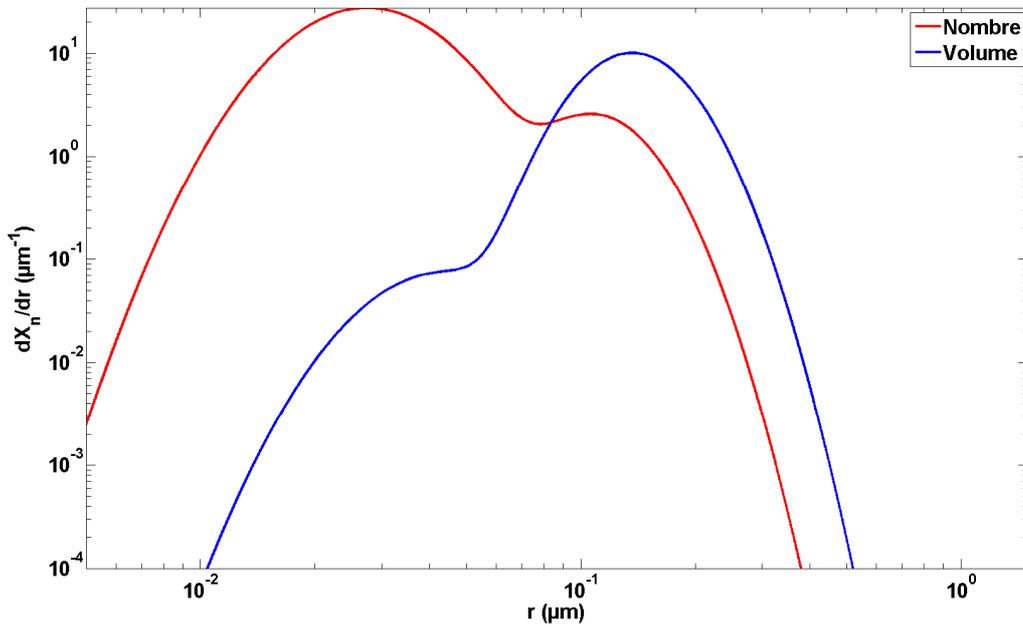


Fig. 2.4 : Distributions normalisées en nombre ($X=N$) et en volume ($X=V$) déterminées au cours de la campagne ESQUIF au-dessus de la région parisienne.

On définit également le rayon effectif d'une distribution par :

$$r_{eff} = \frac{\int_0^{\infty} r^3 \cdot \frac{dN}{dr} dr}{\int_0^{\infty} r^2 \cdot \frac{dN}{dr} dr} \quad (2.8)$$

et la largeur effective, ou variance effective par :

$$\sigma_{eff} = \frac{\int_0^{\infty} (r - r_{eff})^2 \cdot r^2 \cdot \frac{dN}{dr} dr}{\int_0^{\infty} r^2 \cdot \frac{dN}{dr} dr} \quad (2.9)$$

Hansen and Travis (1974) ont montré que des distributions de taille différentes mais de même rayon effectif et de même largeur effective ont des propriétés optiques de valeurs voisines. Pour une distribution lognormale monomodale, il est facile de passer de r_m à r_{eff} :

$$r_{eff} = r_m \cdot \exp\left(\frac{5}{2} \cdot \ln^2(\sigma)\right) \quad (2.10)$$

Enfin, d'autres lois statistiques sont utilisées comme types de distributions en taille. On peut citer les fonctions de Junge (Junge, 1963, Pruppacher and Klett, 1980) qui sont utilisées par classe de taille dans certaines procédures d'inversion (i.e. Nakajima et al., 1996) :

$$\frac{dN}{d \ln(r)} = C \cdot r^{-v} \quad (2.11)$$

où C représente une constante et $3 < v < 5$. On a aussi $v = a + 3$, a désignant le coefficient d'Angström décrit dans la Sect. 2.3.3. On recense aussi les fonctions gamma modifiées (Deirmendjian, 1969) plus adaptées pour la granulométrie des cumulus ou des phénomènes de brume (Andre, 2000) :

$$\frac{dN}{d \ln(r)} = N_{tot} \cdot \delta_1 \cdot r^{\delta_2} \cdot \exp(-\delta_3 \cdot r^{\delta_4}) \quad (2.12)$$

où δ_1 , δ_2 , δ_3 et δ_4 sont des constantes positives.

2.2.3 Indice de réfraction

L'interaction de l'aérosol avec le rayonnement dépend naturellement de la taille, et de la forme de cet aérosol. La composition de l'aérosol, très variable comme indiqué à la Sect. 2.2.1, ainsi de l'état de mélange correspondant (interne ou externe) contrôlent la nature du milieu en interaction avec le rayonnement, qu'est la particule. L'influence de la chimie est alors portée par un paramètre appelé indice de réfraction. L'obtention de l'indice de réfraction est délicate et souvent passée sous silence lors des études portant sur l'aérosol atmosphérique. Sa détermination a motivé ce travail de thèse. Il ne s'agit cependant pas d'un concept abstrait ; l'indice de réfraction apparaît naturellement dans les bases de la théorie électromagnétique (van de Hulst, 1957; Bohren and Huffman, 1983). La combinaison des équations de Maxwell pour un milieu uniforme (même constante diélectrique ou permittivité ϵ en tout point), isotrope (ϵ indépendant de la direction de propagation), conducteur (conductivité spécifique σ non nulle), libre de charge (densité de charge électrique ρ_f nulle) et de perméabilité magnétique μ conduit à une équation de Helmholtz (dite aussi équation de propagation) vérifiée par le champ électrique \vec{E} :

$$\nabla^2 \vec{E} = \epsilon \cdot \mu \cdot \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} + \mu \cdot \sigma \cdot \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad (2.13)$$

Une telle équation différentielle du second ordre est aussi vérifiée par le champ magnétique. Elle peut se résoudre par séparation des variables. Parmi les solutions de cette équation, on considère les ondes polarisées planes progressives. Pour une onde plane dans le plan Oxy se propageant dans la direction des x , le champ électrique dans la direction portée par \vec{u}_y s'écrit ainsi sous la forme :

$$\vec{E}(x, t) = E_0 \cdot \exp(-i \cdot (kx - \omega t)) \vec{u}_y \quad (2.14)$$

où k représente le nombre d'onde, ω la pulsation de l'onde et E_0 l'amplitude de l'onde. La relation liant ces deux paramètres est appelée relation de dispersion :

$$k^2 = \epsilon \cdot \mu \cdot \omega^2 - i \cdot \mu \cdot \omega \cdot \sigma \quad (2.15)$$

Les ondes sont dispersives car la vitesse de groupe v_g est non nulle :

2. Des propriétés microphysiques à l'interaction avec le rayonnement

$$v_g = \frac{\partial \omega}{\partial k} \quad (2.16)$$

On préfère souvent définir les propriétés d'un milieu par rapport à leurs valeurs dans le vide. Le vide est un milieu non conducteur (diélectrique, donc nullité de σ) de perméabilité μ_0 et permittivité ϵ_0 constantes. On définit alors la permittivité relative ϵ_r et la perméabilité relative μ_r :

$$\epsilon_r = \frac{\epsilon}{\epsilon_0} \quad (2.17)$$

$$\mu_r = \frac{\mu}{\mu_0} \quad (2.18)$$

La relation de dispersion devient alors :

$$k^2 = \omega^2 \cdot \epsilon_0 \cdot \mu_0 \cdot \left(\epsilon_r - i \cdot \frac{\sigma}{\omega \cdot \epsilon_0} \right) \quad (2.19)$$

car l'atmosphère n'étant pas magnétique, on a :

$$\mu_r = 1 \quad (2.20)$$

L'indice de réfraction n est enfin défini comme le rapport des vitesses de phase dans le vide c et dans le milieu v_ϕ :

$$n = \frac{c}{v_\phi} \quad (2.21)$$

où v_ϕ est donné par :

$$v_\phi = \frac{\omega}{k} \quad (2.22)$$

qui vaut dans le vide :

$$c = \frac{\omega}{\omega \cdot \sqrt{\epsilon_0 \cdot \mu_0}} = (\epsilon_0 \cdot \mu_0)^{-\frac{1}{2}} \quad (2.23)$$

L'Eq. (2.21) peut alors s'exprimer sous la forme :

$$n^2 = \epsilon_r - i \cdot \frac{\sigma}{\omega \cdot \epsilon_0} \quad (2.24)$$

L'indice de réfraction est par conséquent un nombre complexe de partie réelle n_r et de partie imaginaire n_i qui valent par identification :

$$n_r = \sqrt{\frac{\epsilon_r + \left(\epsilon_r^2 + \frac{\sigma^2}{\omega^2 \cdot \epsilon_0^2} \right)^{\frac{1}{2}}}{2}} \quad (2.25)$$

$$n_i = \pm \sqrt{\frac{-\epsilon_r + \left(\epsilon_r^2 + \frac{\sigma^2}{\omega^2 \cdot \epsilon_0^2} \right)^{\frac{1}{2}}}{2}} \quad (2.26)$$

A ce stade, il est utile de noter qu'un milieu non conducteur (conductivité σ nulle) conduit à partie imaginaire nulle. C'est donc la conductivité qui contrôle principalement n_i . Comme on

2. Des propriétés microphysiques à l'interaction avec le rayonnement

le remarquera par la suite, n_i pilote l'absorption. Cette propriété explique que les oxydes métalliques, comme les oxydes de fer (Raut et al., 2008a), qui sont de bons conducteurs, sont aussi de bons absorbants pour le rayonnement. Toutefois, contrairement à une idée répandue, σ intervient également dans l'expression de n_r donnée par l'Eq. 2.25, de la même manière que la constante diélectrique ϵ influence n_i . L'influence de n sur le rayonnement apparaît plus nettement en réécrivant le champ électrique donné par la relation 2.14 :

$$\vec{E}(x,t) = E_0 \cdot \exp(\kappa \cdot t) \cdot \exp\left(-i \cdot \frac{\omega}{c}(n_r \cdot x - ct)\right) \vec{u}_y \quad (2.27)$$

avec κ le coefficient d'atténuation défini par :

$$\kappa = \frac{\omega \cdot n_i}{c} \quad (2.28)$$

La partie réelle de l'indice de réfraction est liée à la vitesse de propagation de l'onde électromagnétique : elle correspond physiquement à un ralentissement de la vitesse de phase et est responsable des phénomènes optiques de diffusion. La partie imaginaire représente l'effet du milieu sur l'intensité des champs. Une partie imaginaire non nulle est responsable de l'absorption de l'onde lorsqu'elle se propage à travers le milieu qu'est la particule. Pour que le champ ne croisse pas infiniment, il faut que $\kappa < 0$, ce qui implique une partie imaginaire négative. Par convention et dans la suite de ce manuscrit, on préfère garder $n_i > 0$, ce qui permet de lever l'incertitude sur l'Eq. 2.26. On a finalement :

$$n = n_r - i \cdot n_i \quad (2.29)$$

avec

$$n_i = \sqrt{\frac{-\epsilon_r + \left(\epsilon_r^2 + \frac{\sigma^2}{\omega^2 \cdot \epsilon_0^2}\right)^{\frac{1}{2}}}{2}} \quad (2.30)$$

Ajoutons enfin que si la particule peut être considéré comme un milieu avec pertes diélectriques en plus des pertes conductrices, sa permittivité elle-même apparaît comme un nombre complexe :

$$\epsilon = \epsilon' - i \cdot \epsilon'' \quad (2.31)$$

L'indice s'écrit alors sous la forme :

$$n^2 = \frac{\epsilon'}{\epsilon_0} - i \cdot \frac{\sigma + \omega \cdot \epsilon''}{\omega \cdot \epsilon_0} \quad (2.32)$$

Les relations 2.25 et 2.30 restent valables en remplaçant ϵ_r par ϵ'/ϵ_0 et σ par la conductivité équivalente $\sigma + \omega \cdot \epsilon''$. Le Tableau 2.3 résume les différents cas en faisant intervenir la permittivité équivalente du milieu diélectrique ϵ_e , ce qui permet d'écrire dans le cas général :

$$n^2 = \frac{\epsilon_e}{\epsilon_0} \quad (2.33)$$

Tableau 2.3 : Permittivité équivalente d'un milieu diélectrique à pertes

Milieu	Sans pertes	Pertes conductrices	Pertes conductrices et diélectriques
Caractéristiques	$\sigma=0$ et ϵ réel	σ fini et ϵ réel	σ fini et ϵ complexe
ϵ_e	$\epsilon_e = \epsilon$	$\epsilon_e = \epsilon - i \cdot \frac{\sigma}{\omega}$	$\epsilon_e = \epsilon' - i \cdot \frac{\sigma + \omega \cdot \epsilon''}{\omega}$

L'indice complexe de réfraction de l'aérosol, qui sera noté ACRI dans la suite pour (Aerosol Complex Refractive Index), présente une forte dépendance à la longueur d'onde. Les

2. Des propriétés microphysiques à l'interaction avec le rayonnement

particules sont constituées de diverses espèces chimique (Sect. 2.2.1). Chaque composant de l'aérosol a un spectre spécifique pour l'indice de réfraction (Fig. 2.5).

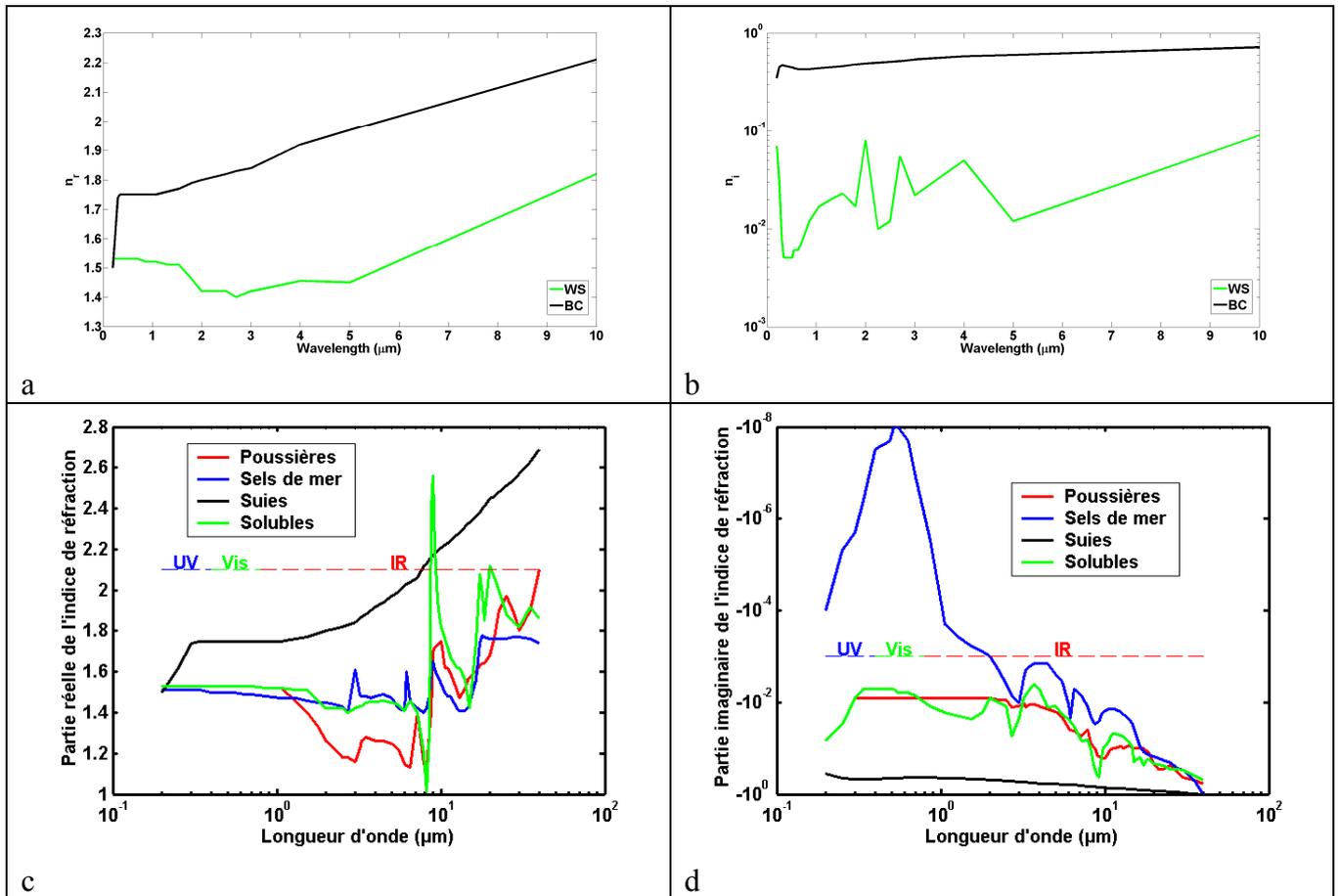


Fig. 2.5 : Evolution spectrale de l'indice de réfraction réel (a,c) et imaginaire (b,d) pour les poussières, les sels de mer, les suies et les aérosols solubles de type sulfates (d'après IAMAP, 1986 (a,b) et Volz, 1973 (c,d)).

Dans le domaine visible, il y a peu de variabilité absolue de l'indice. Pour la partie réelle, ceci reste vrai dans le spectre ultraviolet (UV) sauf pour les suies au-dessous de 0.3 μm (Chazette, 2002). Les valeurs de la partie imaginaire sont très faibles pour les sels de mer, mais significatives pour les autres types d'aérosol, les suies constituant de loin le principal absorbant. Une bonne évaluation de l'impact radiatif visible de l'aérosol atmosphérique peut donc être conduite en supposant que l'indice de réfraction réel est constant pour chaque type d'aérosol entre 0.3 et 0.8 μm . On peut aussi faire l'hypothèse d'une partie imaginaire constante entre 0.3 et 0.8 μm pour l'évaluation de l'impact radiatif, la partie absorbante des sels de mer étant très faible dans le spectre UV/Visible (Chapitre 6). Dans le spectre infrarouge (IR), une telle hypothèse n'est pas réaliste. Dans leur recensement de toutes les mesures des indices de réfraction des aérosols minéraux dans l'IR, Sokolik et al. (1998) ont ainsi noté une très grande variabilité des indices avec la provenance de l'aérosol désertique car sa composition minéralogique peut être très variable selon son origine désertique et sa source, et souligné la grande incertitude sur le forçage radiatif qui en découle. Claquin (1999) a montré, pour certaines bandes spectrales, des écarts importants de la partie imaginaire de l'indice de réfraction de l'aérosol en fonction de différentes minéralogies. A la pauvreté des mesures d'indices de réfraction des aérosols sur un domaine de longueurs d'onde infrarouge assez vaste (Volz, 1972a ; Volz, 1972b ; Patterson et al., 1977 ; Carlson et Benjamin, 1980),

il faut ajouter le manque de fiabilité de certaines mesures qui présentent des valeurs de l'indice réel très différentes des valeurs des autres jeux de données, et parfois inférieures à 1 (Fouquart et al., 1987), ou des discontinuités dans le recollement de certains jeux de données (par exemple le modèle SHADE retenu suite aux observations de Highwood et al. (2003)).

Il est toutefois important de souligner que les valeurs présentées en Fig. 2.5 ont été déterminées pour un aérosol de composition moyenne équivalente à ce qui peut être rencontré dans l'atmosphère. L'observation montre que l'aérosol peut s'éloigner sensiblement de ces valeurs. La détermination de cet indice en conditions réelles lors de chaque cas d'étude est donc requise. C'est le but du Chapitre 4.

2.3 Diffusion simple et paramètres optiques

2.3.1 Théorie électromagnétique de la diffusion : matrices de phase et d'amplitude

De façon qualitative on peut tenter de cerner le principe de diffusion en considérant une particule quelconque irradiée par une onde électromagnétique. Lorsqu'une onde lumineuse se propage dans un milieu semi transparent, elle provoque un mouvement oscillatoire forcé des charges électriques des particules. Ces dernières se comportent alors comme des dipôles électriques oscillant à la fréquence du champ appliqué et émettent un rayonnement secondaire polarisé dans certaines directions selon la théorie électromagnétique classique. De manière générale, les relations de phase entre les ondes diffusées dépendent de facteurs géométriques (direction de diffusion, taille et forme des particules). Mais l'amplitude et la phase des moments dipolaires induits pour une fréquence donnée dépendent de la composition chimique de la particule (indice de réfraction). D'autre part, les phénomènes de diffusion provoqués par la perturbation d'une onde électromagnétique dans un milieu hétérogène constituent une source de polarisation de la lumière naturelle. Afin de mieux comprendre ces phénomènes il convient d'introduire quelques notions théoriques.

On considère une particule de taille, de forme et de composition chimique arbitraire éclairée par une onde plane scalaire se propageant selon la direction (Oz). On recherche alors, à grande distance d , une solution de l'équation d'onde pour le champ électrique sous la forme d'une onde diffusée supposée sphérique, ce qui est possible pour les particules sphériques et pour la plupart des particules de forme irrégulière. La condition à la limite impose que la composante tangentielle du champ électrique soit continue sur la surface de la particule, vérifiant la linéarité des processus mis en jeu lors du passage d'une amplitude de champ incident à une amplitude de champ diffusé. En décomposant les champs électriques incident E_0 et diffusé E en deux composantes orthogonales suivant e_r et e_l , on obtient alors la relation générale suivante.

$$\begin{pmatrix} E_l \\ E_r \end{pmatrix} = S(\theta, \varphi) \cdot \frac{\exp(-ikd + ikz)}{ikd} \cdot \begin{pmatrix} E_{l0} \\ E_{r0} \end{pmatrix} \quad (2.34)$$

Où $S(\theta, \varphi)$ représente la matrice des amplitudes ou matrice de Müller (Müller, 1948), composée de coefficients, en général complexes, dépendant des angles zénithal et azimutal de diffusion θ et φ et des propriétés optiques du diffuseur (taille, forme et indice complexe de réfraction):

$$\mathbf{S}(\theta, \varphi) = \begin{bmatrix} S_2 & S_3 \\ S_4 & S_1 \end{bmatrix} \quad (2.35)$$

L'Eq. 2.34 est une équation fondamentale du rayonnement diffusé incluant la polarisation dans le champ lointain. $\exp(ikz)$ rappelle l'onde plane incidente et $\exp(-ikd)/(ikd)$ l'onde diffusée. Afin de décrire le rayonnement diffusé et son état de polarisation, la relation 2.34 peut être appliquée aux paramètres de Stokes (I, Q, U, V) (Stokes, 1852) qui décrivent complètement l'état de polarisation d'une onde électromagnétique. Ils ont la dimension d'une énergie ce qui les rend additifs (utilisation dans les modèles numériques de ray-tracing). En introduisant la matrice de phase \mathbf{F} (matrice 4x4 asymétrique déduite de \mathbf{S} (Bohren et Huffman (1983))), on obtient les paramètres de Stokes de l'onde diffusée (I, Q, U, V) comme une combinaison linéaire des paramètres de l'onde incidente (I_0, Q_0, U_0, V_0) :

$$\{I, Q, U, V\} = \frac{4\pi}{k^2} \mathbf{F} \cdot \{I_0, Q_0, U_0, V_0\} \quad (2.36)$$

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

$$\frac{1}{4\pi} \int_0^{4\pi} P_{11}(\Omega) \cdot d\Omega = 1 \quad (2.37)$$

où

$$d\Omega = \sin(\theta) \cdot d\theta \cdot d\varphi \quad (2.38)$$

correspond à l'élément d'angle solide autour d'une direction de diffusion (θ, φ) . P_{11} est donc une fonction sans unité de la direction et dépend de l'orientation de la particule par rapport au faisceau incident, mais aussi de la taille, de la forme et de la composition physico-chimique de la particule (indice de réfraction). Elle correspond à la densité de probabilité pour qu'un photon soit diffusé dans un angle solide élémentaire $d\Omega$.

Pour des particules orientées aléatoirement dans l'espace et présentant un plan de symétrie, la matrice \mathbf{F} présente une dépendance angulaire uniquement sur θ (angle relatif entre directions incidente et émergente) et n'est composée que de 6 paramètres indépendants (et même 4 pour une particule sphérique), et l'Eq. 2.37 s'écrit :

$$\frac{1}{2} \int_0^\pi P_{11}(\theta) \sin(\theta) d\theta = 1 \quad (2.39)$$

2.3.2 Propriétés optiques d'un aérosol

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

$$\sigma_{scat} = \frac{1}{k^2} \int F_{11} \cdot d\Omega = \frac{2\pi}{k^2} \int_0^\pi F_{11}(\theta) \sin(\theta) d\theta \quad (2.40)$$

avec :

$$F_{11}(\theta) = \frac{|S_1(\theta)|^2 + |S_2(\theta)|^2}{2} \quad (2.41)$$

Cela conduit à :

$$\frac{P}{4\pi} = \frac{F}{\sigma_{scat} \cdot k^2} \quad (2.42)$$

et :

$$\frac{P_{11}}{4\pi} = \frac{1}{\sigma_{scat}} \cdot \frac{d\sigma_{scat}}{d\Omega} \quad (2.43)$$

Les matrices de diffusion et de phase permettent alors de définir un certain nombre de grandeurs optiques caractéristiques des propriétés de diffusion des particules atmosphériques jouant un rôle prépondérant dans la résolution de l'équation du transfert radiatif. De façon similaire à la définition de σ_{scat} , on peut assimiler l'énergie absorbée et l'énergie interceptée par la particule comme étant l'énergie tombant respectivement sur les surfaces σ_{abs} et σ_{ext} . En prenant en compte les phénomènes d'interférences entre champ incident et champ diffusé dans la direction de diffusion avant ($\theta=0^\circ$), la section efficace d'extinction σ_{ext} s'exprime de façon générale par l'intermédiaire de la partie réelle de la matrice d'amplitude \mathbf{S} :

$$\sigma_{ext} = \frac{4\pi}{k^2} \cdot \Re\{S(\theta = 0^\circ)\} \quad (2.44)$$

Et d'après la loi de conservation de l'énergie:

$$\sigma_{abs} = \sigma_{ext} - \sigma_{scat} \quad (2.45)$$

En accord, avec ces paramètres de la dimension d'une surface (μm^2), il est possible de définir des grandeurs sans dimensions appelées efficacité de diffusion, d'absorption ou d'extinction quantifiant la diminution d'énergie incidente par une particule:

$$Q_{scat} = \frac{\sigma_{scat}}{G} \quad (2.46)$$

$$Q_{ext} = \frac{\sigma_{ext}}{G} \quad (2.47)$$

$$Q_{abs} = \frac{\sigma_{abs}}{G} \quad (2.48)$$

G représente la section droite géométrique de la particule ou la moyenne des surfaces géométriques projetées pour des particules. La section droite géométrique correspond à πr^2 pour une particule sphérique, r désignant le rayon de la particule. Dans le cas de particules sphériques, l'Eq. 2.34 sert de base à la théorie de Mie caractérisée par des symétries au sein de la matrice d'amplitude. Dans ce cas, la matrice est diagonale :

$$S_3 = S_4 = 0 \quad (2.49)$$

Cette théorie permet d'aboutir à des expressions explicites, sous forme de séries, pour les sections efficaces et la fonction de phase. Elle a été démontrée par Gustav Mie en 1908 (Mie, 1908) et avait été étudiée auparavant par Lorenz en 1891, mais également par Love en 1899 et Debye en 1909, d'où l'appellation parfois de «théorie de «Lorenz-Mie-Debye». Les paramètres fondamentaux de la théorie de Mie sont d'une part l'indice complexe de réfraction et d'autre part le paramètre de taille, $2\pi r/\lambda$ où λ est la longueur d'onde du rayonnement incident. Le paramètre de taille est la variable essentielle pour savoir si l'on peut effectuer l'approximation simplificatrice du dipôle électromagnétique (Rayleigh, 1889).

2. Des propriétés microphysiques à l'interaction avec le rayonnement

Les variations des efficacités d'extinction, de diffusion et d'absorption ainsi que celles des sections efficaces correspondantes et de l'albédo de simple diffusion en fonction du paramètre de taille sont reportées sur les Fig. 2.6 et 2.7 pour différents indices de réfraction, dans le cas d'une particule unique. Ces calculs ont été obtenus par application de la théorie de Mie : ils supposent donc des aérosols sphériques.

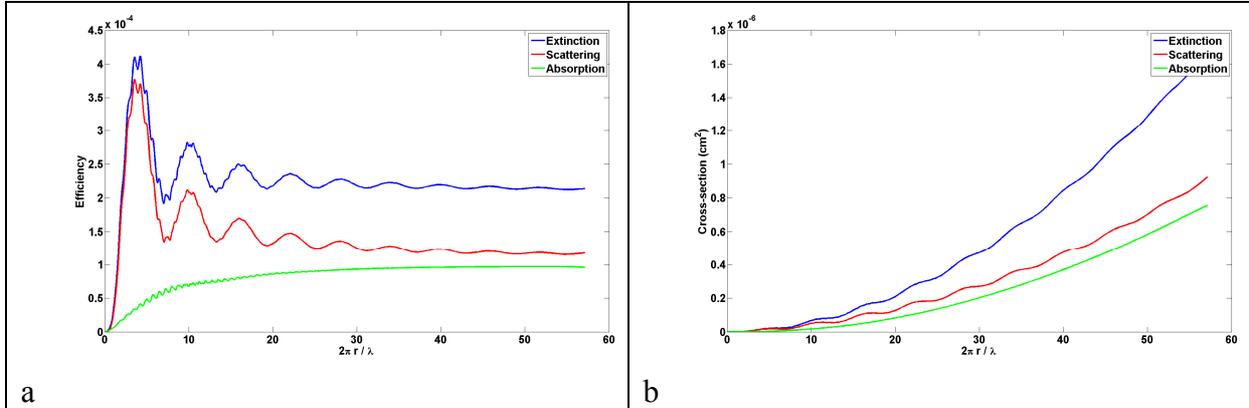
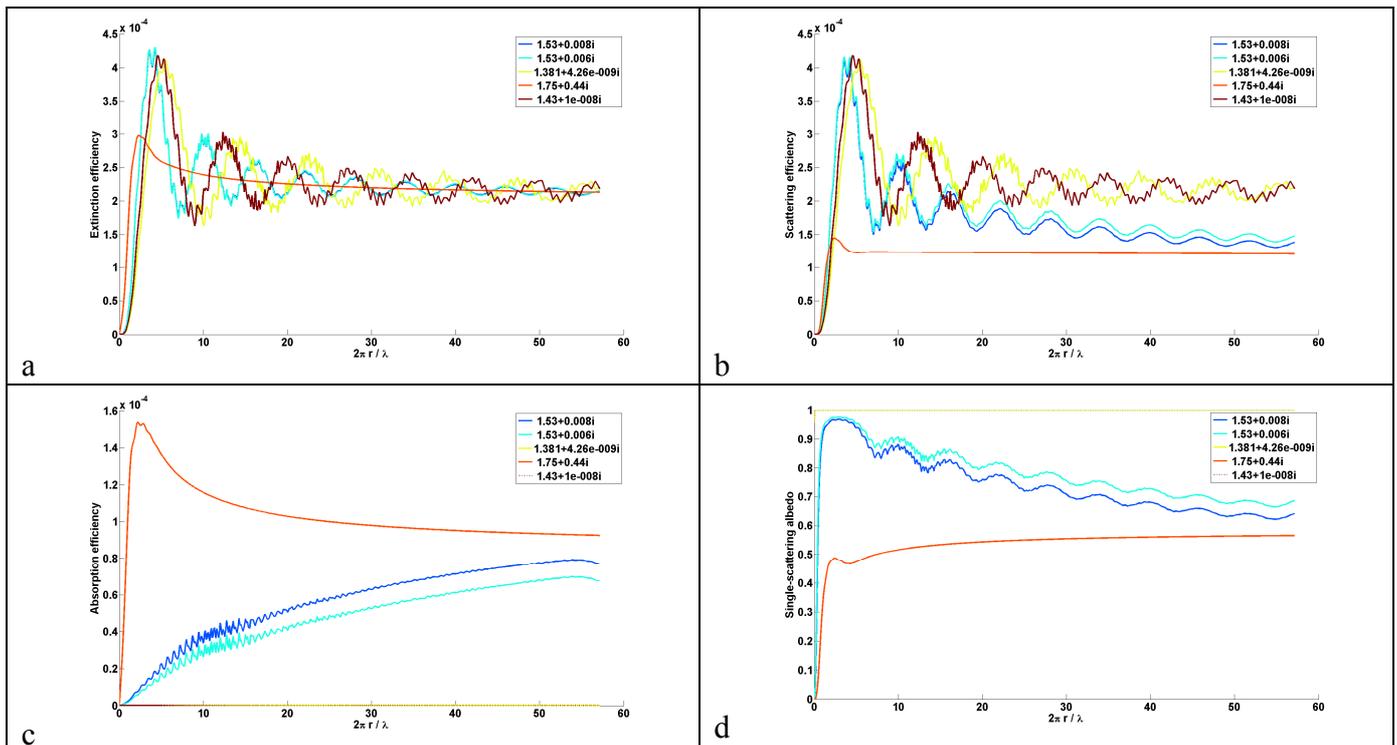


Fig 2.6 : Efficacités (a) et sections efficaces (b) d'extinction, de diffusion et d'absorption en fonction du paramètre de taille obtenues par application de la théorie de Mie sur une particule unique d'indice $1.53-0.02i$ à 550 nm .

La valeur du facteur d'efficacité d'extinction est presque nulle dans le cas des très petites particules du fait de leur très faible interaction avec le rayonnement. Ce paramètre optique augmente brutalement lorsque le rayon des particules est similaire à la longueur d'onde (paramètre de taille de l'ordre de 6 environ). L'efficacité d'extinction est caractérisée par une série d'oscillations qui résultent de phénomènes d'interférences entre les ondes transmises sans déviation à travers la particule et les ondes diffractées. La période des oscillations dépend de l'indice de réfraction (Fig. 2.7). L'absorption réduit les oscillations d'interférence (courbe rouge sur la Fig. 2.7a).



2. Des propriétés microphysiques à l'interaction avec le rayonnement

Fig 2.7 : Efficacités d'extinction (a), de diffusion (b) et d'absorption (c) et albédo de simple diffusion (d) (défini par l'Eq. 2.50) en fonction du paramètre de taille obtenus par application de la théorie de Mie sur une particule unique à 550 nm. Différents jeux d'indice de réfraction ont été utilisés. Ils correspondent à des valeurs typiques pour les Dust (bleu), WS (cyan), SS (jaune), BC (rouge) et sulfates volcaniques (marron).

Un autre résultat remarquable est la tendance asymptotique de l'efficacité d'extinction vers 2 pour des particules de grande taille, quel que soit l'indice de réfraction complexe de la particule (Fig. 2.7a). Par conséquent, ces particules atténuent deux fois plus d'énergie que ne le ferait leur section droite géométrique. Elles interceptent donc deux fois plus d'énergie que le prédiraient les lois de l'optique géométrique. Ce phénomène est appelé paradoxe de l'extinction (Van de Hulst, 1981; Bohren and Huffman, 1983). De manière qualitative, l'onde incidente est influencée au-delà des limites physiques de la sphère ; le bord de la sphère dévie des rayons passant au voisinage de celui-ci, alors que les lois de l'optique géométrique auraient prédit leur passage sans modification. Ces effets de diffraction augmentent avec le rayon de la sphère et sont équivalents à la diffraction par un trou, et cela en vertu du principe de Babinet. Ce phénomène de diffraction de la lumière sur les bords de la particule contribue pour moitié à l'extinction totale, la somme des deux processus de diffusion faisant 2 (Fig. 2.7).

De plus, toute la lumière géométriquement incidente qui n'est pas réfléchi entre dans la sphère pour y être absorbée, pour peu que la partie imaginaire de l'indice de réfraction ne soit pas identiquement nulle (Fig. 2.6a). La section efficace d'absorption augmente avec le volume de la particule où pénètre le rayonnement. Aussi le facteur d'efficacité d'absorption croît-il avec la taille des particules jusqu'à la valeur asymptotique 1.

Pour une valeur donnée de n_r , une augmentation de n_i abaisse la valeur du pic d'efficacité de diffusion et diminue le rayon auquel ce pic apparaît. Ces deux phénomènes liés à l'augmentation de n_i soulignent qu'une part plus grande de l'énergie totale est convertie en absorption plutôt qu'en diffusion. La Fig. 2.7c présente l'efficacité d'absorption. Augmenter n_i à n_r constant revient à surhausser la courbe d'absorption. Dans le cas des particules microniques, l'efficacité d'absorption atteint la valeur asymptotique de 1 environ. Lorsque l'absorption est très forte (suie), un pic dans l'efficacité d'absorption est observé et ce dernier est peu affecté par la partie réelle (augmenter n_r revient à augmenter légèrement la valeur du pic). On peut noter que le facteur d'efficacité d'extinction est quasiment constant avec l'indice réel et reste proche de la valeur 2, sauf dans le cas des petites particules où ce paramètre optique est très sensible à la valeur de l'indice réel. Plus n_r est grand, plus le pic d'efficacité de diffusion est prononcé et se décale vers les petites tailles.

Les amplitudes relatives des processus de diffusion et d'absorption de la lumière par les aérosols sont exprimées par l'albédo de simple diffusion ω_0 , correspondant à la fraction de lumière diffusée par une particule :

$$\omega_0 = \frac{\sigma_{scat}}{\sigma_{ext}} \quad (2.50)$$

Cette grandeur est particulièrement importante dans la résolution de l'équation du transfert radiatif puisqu'elle représente la probabilité pour qu'un photon soit diffusé plutôt qu'absorbé lors de son interaction avec une particule à une longueur d'onde donnée. Par définition, il varie entre 0 (particule purement absorbante) et 1 (particule purement diffusante) suivant les sources d'aérosols et les processus de vieillissement de celui-ci. Le co-albédo de simple

diffusion ($1-\omega_h$) est également très utilisé dans les calculs de transfert radiatif parce qu'il donne une indication sur la quantité d'énergie absorbée.

Les variations de ω_h résultent du comportement des efficacités d'extinction et d'absorption. ω_h qui est petit pour les petites particules possède une valeur maximale proche de 1 pour un rayon proche de λ (Fig. 2.7). Au-delà de cette valeur, l'albédo de diffusion simple décroît lentement vers la valeur asymptotique de 0.5 correspondant au cas où le rayonnement pénétrant à l'intérieur de la particule serait fortement absorbé. Si l'indice imaginaire est inférieur à 10^{-4} (courbes jaune et marron en Fig. 2.7c et 2.7d), l'albédo de diffusion simple a une valeur proche de 1 et celle du facteur d'efficacité d'absorption est très faible ; les particules sont alors purement diffusantes. En revanche, ω_h est très peu influencé par n_r (Raut and Chazette, 2007).

Un autre paramètre, le facteur d'asymétrie g , peut être utilisé pour caractériser la diffusion par une particule. Il est défini par l'intermédiaire de la fonction de phase et du cosinus de l'angle de diffusion. Si on pose

$$\mu = \cos(\theta) \quad (2.51)$$

le facteur d'asymétrie s'exprime selon:

$$g = \langle \cos(\theta) \rangle = \frac{2\pi \cdot \int_0^\pi \cos(\theta) \cdot F_{11}(\theta) \sin(\theta) d\theta}{k^2 \cdot \sigma_{scat}} = \frac{1}{2} \int_{-1}^1 p(\mu) \cdot \mu \cdot d\mu \quad (2.52)$$

Ce paramètre a l'avantage d'exprimer sommairement l'orientation préférentielle du rayonnement diffusé. La valeur de g est comprise entre -1 et 1 et permet de déterminer la quantité de lumière diffusée vers l'avant ou vers l'arrière. Pour une valeur positive de g , la diffusion en direction de lumière incidente sera prépondérante, pour une valeur négative, la diffusion sera principalement dirigée dans une direction opposée à la direction de la lumière incidente (rétrodiffusion). Une valeur de $g=0$ indique une diffusion isotrope (diffusion symétrique avant-arrière). Dans le cas des aérosols atmosphériques considérés ici, g est toujours positif, ce qui signifie que la plus grande partie du rayonnement diffusé est diffusée vers l'avant.

2.3.3 Propriétés optiques de la distribution d'aérosols

Les propriétés optiques introduites précédemment (σ_{ext} ou Q_{ext} , ω_h et g) ne dépendent pas de la concentration en aérosols, ce qui n'est pas le cas du champ de rayonnement. L'intégration des quantités précédentes sur une distribution en taille (Sect. 2.2.2) fournit les coefficients de diffusion α_{scat} , d'absorption α_{abs} et d'extinction α_{ext} , ainsi que la fonction de phase p pour la distribution en taille de particules $dN/d\ln(r)$:

$$\alpha_i(\lambda) = \int_0^\infty G \cdot Q_i(r, \lambda) \cdot \frac{dN}{d\ln(r)} \cdot \frac{1}{r} dr \quad (2.53)$$

où i désigne ext, abs ou scat.

$$p(\theta, \lambda) = \frac{1}{\sigma_{scat}} \int_0^\infty G \cdot Q_{scat}(r, \lambda) \cdot P_{11}(r, \theta) \cdot \frac{dN}{d\ln(r)} \cdot \frac{1}{r} dr \quad (2.54)$$

De même la fonction de phase polarisée p_{polar} s'exprime par :

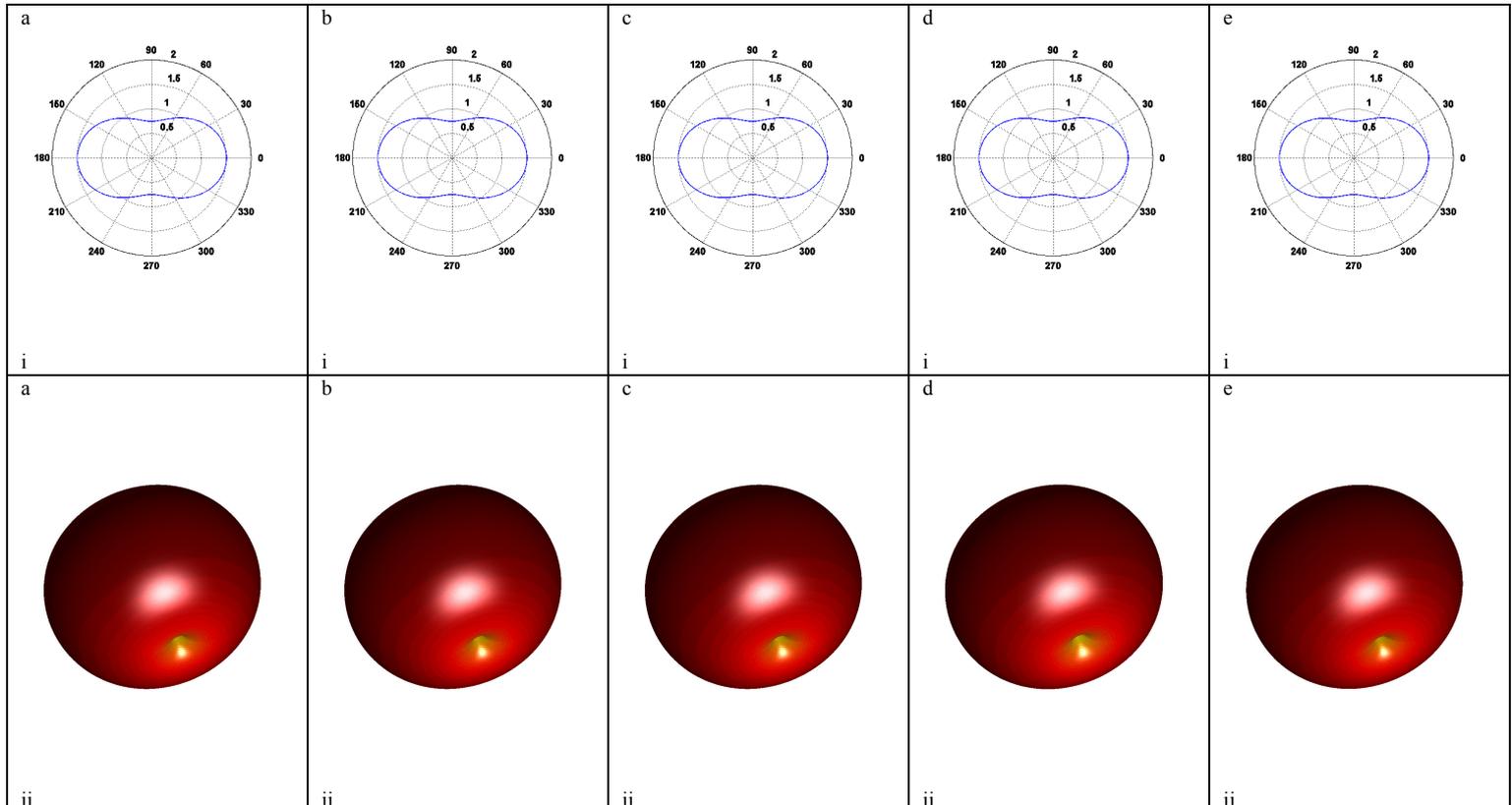
2. Des propriétés microphysiques à l'interaction avec le rayonnement

$$p_{polar}(\theta, \lambda) = \frac{1}{\sigma_{scat}} \int_0^{\infty} G \cdot Q_{scat}(r, \lambda) \cdot P_{12}(r, \theta) \cdot \frac{dN_n}{d \ln(r)} \cdot \frac{1}{r} dr \quad (2.55)$$

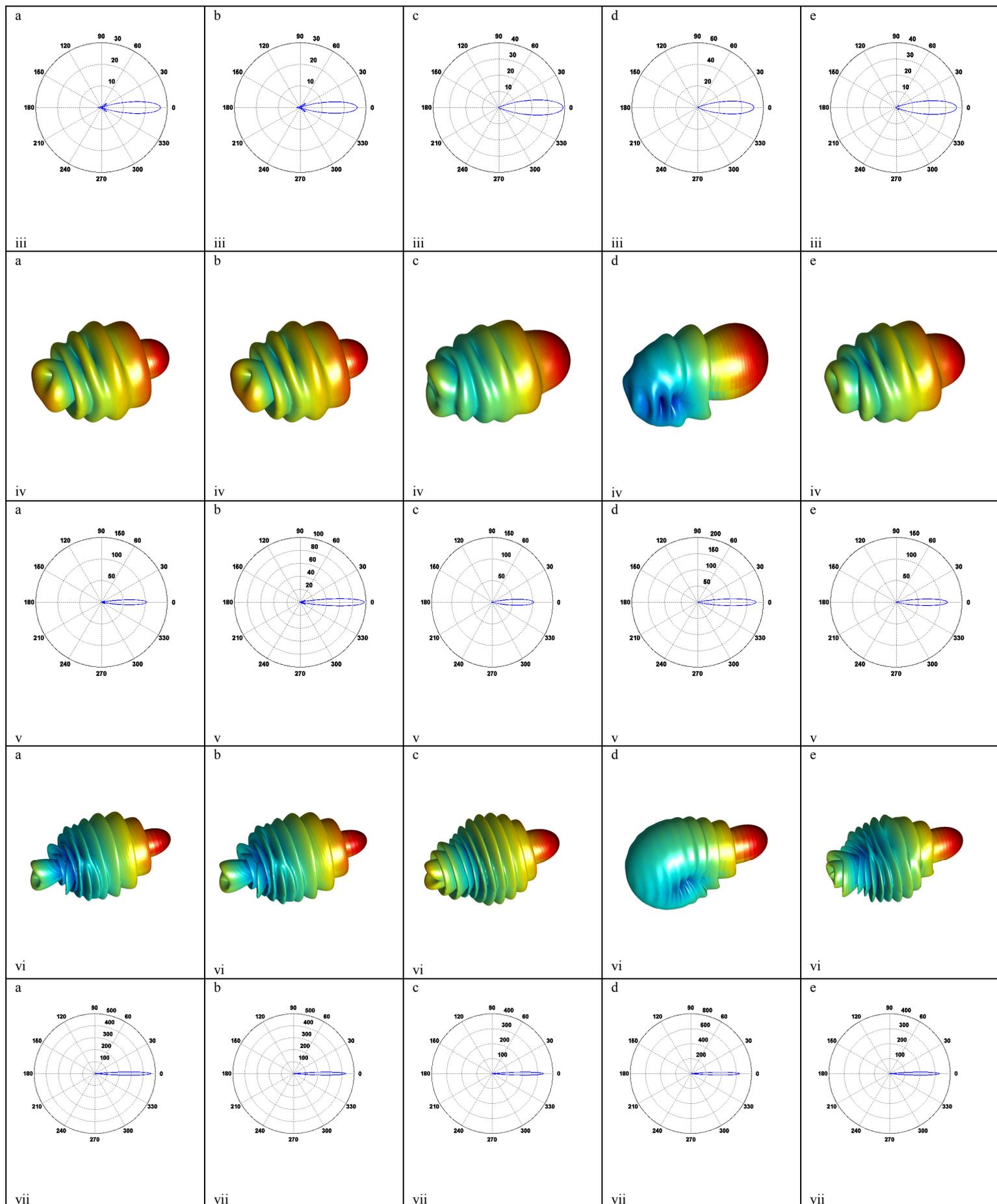
Ce qui permet d'obtenir le taux de dépolarisation τ_{polar} , utile dans le cadre des mesures lidar :

$$\tau_{polar}(\theta, \lambda) = -\frac{p_{polar}(\theta, \lambda)}{p(\theta, \lambda)} \quad (2.56)$$

Les Fig. 2.8 et 2.9 fournissent des résultats importants sur la fonction de phase. Les calculs ont été effectués sur des particules individuelles en Fig. 2.8 et issues de distributions en taille en Fig. 2.9. Une grande partie de l'information concernant la taille des particules peut être extraite du comportement de la fonction de phase pour des angles correspondant à la diffusion avant et dans une moindre mesure à la diffusion latérale. Les différentes fonctions de phases ou indicatrices de diffusion montrent qu'une augmentation de la taille de la particule provoque une augmentation significative de la quantité d'énergie diffusée vers l'avant ($0^\circ < \theta < 5^\circ$). Ce pic est dû à la diffraction de Fraunhofer et a tendance à s'atténuer lorsque le paramètre de taille décroît. Comme l'indique la Fig. 2.8, la taille joue un rôle plus important sur la diffusion dans le domaine UV-visible que l'indice de réfraction. A l'inverse, pour les aérosols de plus petite taille, le pic de diffusion arrière, appelée gloire ou anti-couronne ($\theta \sim 180^\circ$), diminue et l'énergie diffusée latéralement ($65^\circ < \theta < 140^\circ$) augmente en vertu des lois de conservation de l'énergie. Ajoutons pour la Fig. 2.9 que les effets d'absorption, provoqués par l'augmentation de la partie imaginaire de l'indice de réfraction complexe des particules des aérosols issus de feux de biomasse (par rapport aux poussières), sont les principaux responsables du comportement particulier de la fonction de phase. La connaissance de la fonction de phase apporte donc des informations cruciales sur la taille des aérosols mais également dans une moindre mesure sur leur indice de réfraction. La détermination de ce dernier est donc délicate et mérite un attrait tout particulier (Chapitres 4 et 5).



2. Des propriétés microphysiques à l'interaction avec le rayonnement



2. Des propriétés microphysiques à l'interaction avec le rayonnement

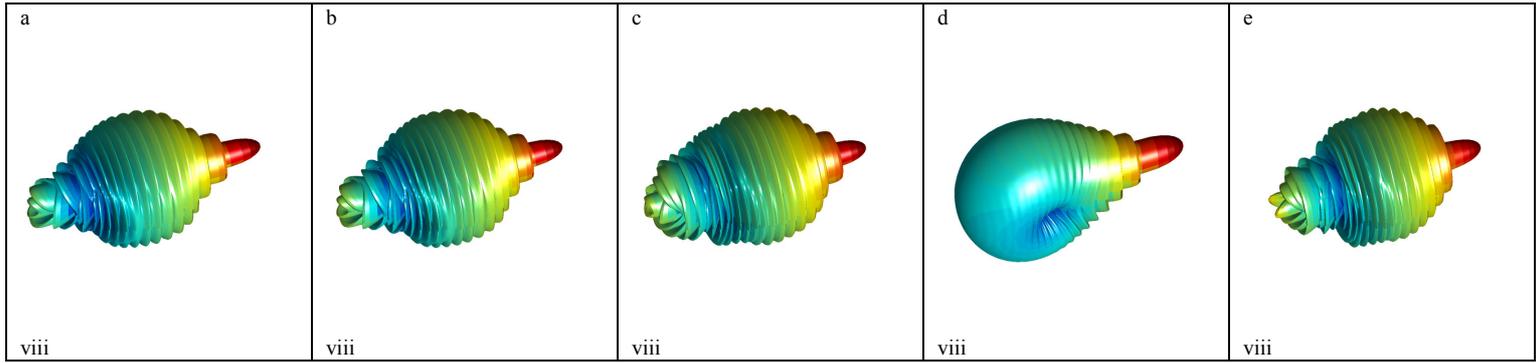


Fig. 2.8 : Indicatrices de diffusion simulées par un code de Mie à 550 nm pour différents types de particules (a : Dust, b : WS , c : SS, d : BC et e : sulfates volcaniques) et différents paramètres de taille (i : 0.1, iii : 6.3, v : 12.6, vii : 25.2). Les représentations tridimensionnelles (en ii, iv, vi et viii) fournissent une vue éclatée des indicatrices correspondantes (i, iii, v, vii, respectivement) au niveau de l'impact entre le rayonnement (venant de la gauche vers la droite) et l'aérosol. L'échelle de couleur représente l'amplitude de la fonction de phase en valeur logarithmique.

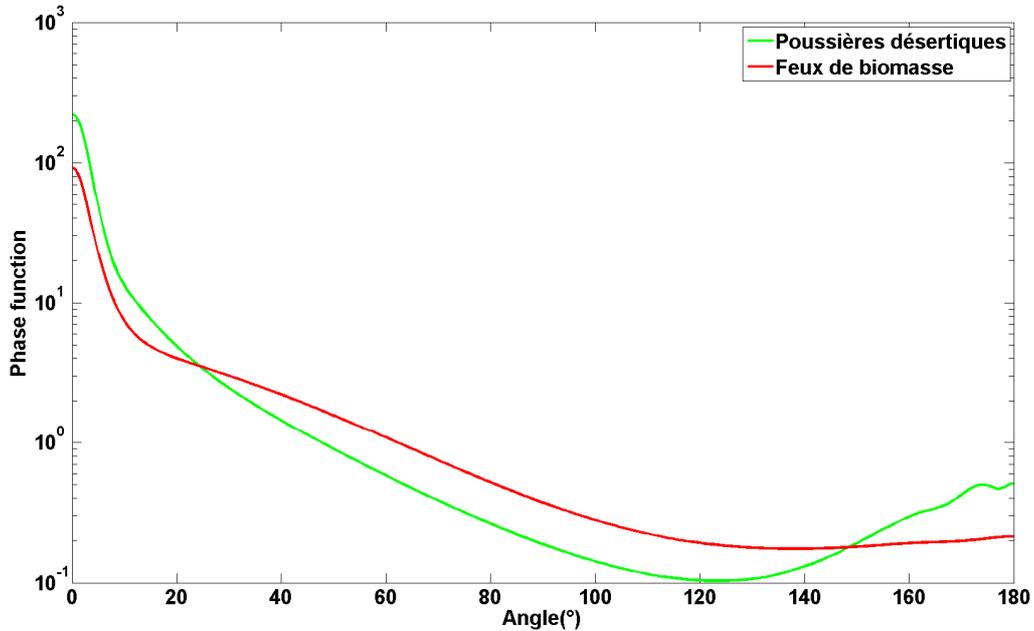


Fig. 2.9 : Fonction de phase simulée par la théorie de Mie à 550 nm pour les distributions en taille normalisée typiques des poussières désertiques et aérosols issus de feux de biomasse présentées en Fig. 2.3 avec les indices de réfraction de $1.52-0.008i$ et $1.53-0.047i$ respectivement (Raut and Chazette, 2008b).

La dépendance en fonction spectrale peut s'exprimer par le coefficient d'Ångström a défini pour deux longueurs d'onde λ_1 et λ_2 par :

$$a = \frac{\ln\left(\frac{\alpha_{ext}(\lambda_2)}{\alpha_{ext}(\lambda_1)}\right)}{\ln\left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right)} \quad (2.57)$$

a est un indicateur de la taille et du type d'aérosol. Plus sa valeur est proche de 4 (valeur caractéristique des molécules gazeuses), plus les particules sont de petite taille. L'aérosol de pollution présente généralement une valeur de a au voisinage de 2 tandis que les aérosols désertiques ou les sels de mer ont des valeurs de a proches de 0.

Lorsque le rayonnement solaire traverse une couche d'aérosols dans l'atmosphère, il se trouve atténué par diffusion et par absorption en présence de particules. On peut écrire la relation de Beer-Bouguer-Lambert pour la luminance monochromatique $L_\lambda(T)$ à la température T , i.e. la densité surfacique de flux rayonnée par l'onde électromagnétique par intervalle spectral autour de λ et par unité d'angle solide, lors de la traversée du milieu :

$$\frac{dL_\lambda(T)}{ds} = -\alpha_{ext}(\lambda, s) \cdot L_\lambda(T) \quad (2.58)$$

où ds est l'épaisseur infinitésimale du milieu traversé par l'onde. En notant $L_{\lambda,0}(T)$ la luminance incidente, $L_\lambda(T)$ la luminance après traversée du milieu, on obtient par intégration :

$$L_\lambda(T) = L_{\lambda,0}(T) \cdot \exp\left(-\int_0^s \alpha_{ext}(\lambda, s') \cdot ds'\right) \quad (2.59)$$

On appelle transmission le terme $\exp(-\tau(\lambda))$, où

$$\tau(\lambda) = \int_0^s \alpha_{ext}(\lambda, s') \cdot ds' \quad (2.60)$$

désigne l'épaisseur optique de l'aérosol à la longueur d'onde λ .

2.3.4 Domaine de diffusion Rayleigh

L'approximation de Rayleigh peut être considérée comme la limite inférieure du domaine de diffusion de Mie. Les oscillations des fonctions de phase dans le cas d'une particule unique, observées sur les Fig. 2.6 et 2.7 sont provoquées par les propriétés des fonctions de Riccati-Bessel qui permettent de calculer les coefficients de Mie. Les oscillations ont tendance à disparaître lorsque l'on calcule une fonction de phase pour un ensemble de particules mais aussi quand le paramètre de taille est petit. Les molécules de gaz en particulier ont des tailles de l'ordre de l'Angström, très petites devant la longueur d'onde du rayon incident. Elles diffusent donc la lumière selon la théorie de Rayleigh. Les expressions approchées des fonctions de phase totale et polarisée (Eq. 2.54 et 2.55) des molécules s'écrivent :

$$p(\theta) = \frac{3}{4} \cdot (1 + \cos^2(\theta)) \quad (2.61)$$

$$p_{polar}(\theta) = \frac{3}{4} \cdot (1 - \cos^2(\theta)) \quad (2.62)$$

Le facteur de dépolarisation pour l'air est approximativement égal à 0.028 (Hansen and Travis, 1974).

La section efficace de diffusion suit approximativement une loi au 1^{er} ordre en λ^{-4} et dépend de la pression atmosphérique et dans une moindre mesure de l'humidité relative. L'intensité diffusée augmente donc rapidement avec les longueurs d'onde décroissantes à la fois pour le rayonnement total et le rayonnement polarisé. Notons que pour les courtes longueurs d'onde (355 nm dans notre étude), la loi en λ^{-4} n'est plus adaptée. Des facteurs correctifs sont