

**REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA
RECHERCHE SCIENTIFIQUE**

Université Mentouri de Constantine

**FACULTE DES SCIENCES DE L'INGÉNIEUR
DEPARTEMENT D'ELECTRONIQUE**

N° d'ordre :

Série :

THESE

Présentée pour obtenir le diplôme

DOCTORAT EN SCIENCES

Option

Semiconducteurs

Par

ZEGHBIB Samir

**Etude théorique impliquant les mesures Lidar pour la
caractérisation optique et microphysique de l'aérosol
désertique**

Devant le jury :

Président	: M. Benslama	Prof. Université de Constantine
Rapporteur	: S. Bouzid	Prof. Université de Constantine
Examineurs	: T. Bouchmat	Prof. Université de Constantine
	: A. Aissat	Prof. Université de Blida
	: H. Triki	Prof. Université d'Annaba

Remerciement

Au terme de cette humble aventure, et avant de laisser mon lecteur découvrir les résultats de cette laborieuse année, de nombreux remerciements s'imposent.

Je tiens tout d'abord à remercier Mm Samia Bouzid pour son encadrement, son soutien, sa bonne humeur durant toutes les années que j'ai vécu avec, pour m'avoir soutenue lors de ces travaux et m'avoir autant appris sur ce sujet, ainsi sans oublier de la remercier encore pour la confiance qu'elle m'a témoigné en me laissant une grande autonomie.

Je désire alors exprimer ma profonde gratitude:

A Monsieur le professeur Benslama Malek qui m'a honoré en acceptant d'être président de ce jury.

Aux chers professeurs qui ont accepté de faire partie du jury, à savoir : le professeur Aissat Abdelkader, Bouchmat Thoria et Triki Houria.

Je tiens à remercier vivement et tout particulièrement Mr le professeur Abdelhafid Chaabi de m'avoir accueilli dans son laboratoire durant toutes les années d'études et de m'avoir encadré pendant la thèse. Je lui suis extrêmement reconnaissant de m'avoir encouragé, soutenu, conseillé et guidé tout au long de ce travail.

J'exprime également ma plus vive reconnaissance à Mr Cheriata Nourddine qui m'a aidé dès le début de cette étude en me donnant tous les détails et les mécanismes liés aux algorithmes génétiques et leur application dans l'optimisation. Merci pour le bon démarrage que tu m'as offert.

Toute ma gratitude et mon respect à mon cher camarade et accompagnant Latrous Reda, durant toutes les années qu'on a passées ensemble, se rencontrer dans le labo au chalet des pins, travailler, discuter les résultats, partager des conseils et faire des articles. C'était vraiment une période inoubliable plein d'aventures, tracs et sus pinces.

Un grand merci à Rabouh Soufiane, qui, il y a très longtemps de cela m'avait accordé une bonne documentation concernant la théorie de Mie et son application pour les particules de forme sphérique.

De grand merci à Chettah Chouaib, et qui s'est rappelé bien à notre bon souvenir dans le bureau de Monsieur A. Chaabi.

Enfin, je tiens à saluer tous ceux qui ont contribué à ce travail sans le savoir. Leur apport n'en est pas moins essentiel.

Etude théorique impliquant la mesure Lidar pour la caractérisation optique et microphysique de l'aérosol désertique

Les aérosols sont des petites particules en suspension dans l'air. A l'instar des gaz à effet de serre, les aérosols jouent un rôle important dans le bilan radiatif de l'atmosphère. Toutefois ce rôle est mal quantifié jusqu'à présent ce qui justifie l'intensification des efforts consacrés à leur étude. En plus de leur impact sur le climat, les aérosols perturbent les observations astronomiques et les mesures de télédétection. Plusieurs méthodes de mesures ont été mises en oeuvre y compris la méthode LIDAR (Light Detection And Ranging) qui permet de disposer de cartographies 3D de leur concentration.

L'intérêt des mesures optiques de télédétection LIDAR, est de donner un accès direct à la répartition des couches limites et à l'extinction optique des particules atmosphériques. La caractérisation des propriétés micro-physiques des aérosols (taille, concentration) est cependant moins aisée car la distribution de tailles des aérosols intervient sous une forme intégrale dans la mesure de l'extinction optique. Néanmoins ceci a été réalisé dans le cas d'atmosphères peu complexes (particules désertique, acides, silice, brume, nuage).

Notre objectif s'est appuyé sur l'étude des particules désertiques caractérisant une grande partie du globe terrestre, pour lesquelles, nous avons effectué une détection de leurs distributions de taille en utilisant la méthode Lidar multi-spectrale, dont les longueurs d'onde du Laser ont été fixés dans les valeurs suivantes : ($\lambda = 0.193, 0.694, 1.064, 3.370$ and $10.60 \mu\text{m}$). Pour chaque longueur d'onde, on doit avoir un profil de coefficients d'extinctions correspondant.

La méthode stochastique utilisée pour la résolution du problème est la méthode des algorithmes génétiques, qui est une approche plus efficace fiable et permettant d'accélérer considérablement le temps de calcul.

Finalement, les résultats obtenus sont comparés avec les deux modèles de distribution que nous avons considérés : le modèle de Longtin et le modèle de Chomette.

RESUME

Mots-clés: LIDAR, LIDAR (prélevement par mpaction), inversion de Klett, théorie de Mie, aérosols désertiques, le modèle désertique de Longtin, le modèle désertique de Chomette, les algorithmes génétiques.

Theoretical study combining measurements Lidar for microphysical and optical characterization of the desert aerosols

Aerosols are tiny particles suspended in the air. Like greenhouse effect gas emissions, aerosols play an important role in the radiative balance of the atmosphere. However, is poorly quantified until now which justifies the intensification of efforts to study. In addition to their impact on the climate, aerosols perturb astronomical observations and remote sensing measurements. Several measurement methods have been implemented including the method LIDAR (Light Detection And Ranging), which allows to have 3D maps of their concentration.

The interest of optical LIDAR measurements is to give direct access to the distribution of limit layer and the optical extinction of atmospheric particles. The characterization of microphysical properties of aerosols (size, concentration) is however less easy, because the size distribution of aerosols intervenes as integral form in the measurement of the optical extinction. However it has been achieved in the case of less complex atmospheres (desert particles, acids, silica, fog, cloud).

Our attention was based on the study of desert particles characterized a big part of the terrestrial globe, for which we performed a detection of their size distributions using multi-spectral method LIDAR, where wavelengths of laser ranging from UV to IR were fixed in the following values: : ($\lambda = 0.193, 0.694, 1.064, 3.370$ and $10.60 \mu\text{m}$). For each wavelength, we must have corresponding profile of extinction coefficients.

The stochastic method used to solve the problem of simulation is the method of genetic algorithms which is a more reliable and efficient technical to accelerate dramatically the computing time.

Finally the results of our work were compared with two distribution models that we have considered: the model of Longtin and the model Chomette.

Key-words: LIDAR, LIDAR (taking by impaction), Klett inversion, Mie theory, desert aerosols, Longtin desert model, Chomette desert model, genetic algorithms.

دراسة الخصائص المكروفيزيائية والبصرية لغبار الصحراء بالإعتماد على قياسات الليدار

الغبار الجوي هو جزيئات صغيرة جدا معلقة في الهواء. على غرار إنبعثات الغازات الدفيئة، الهباء الجوي يلعب دورا هاما في التوازن الإشعاعي للغلاف الجوي. و بالإضافة إلى تأثيره على المناخ، لهذه الجزيئات الصغيرة تأثيرات أخرى تمكن في إعاقة الأرصاد الفلكية والقياسات عن بعد.

توجد عدة طرق للقياس و الدراسة لهذا العنصر الكيميائي الفعال بما في ذلك طريقة الليدار:

LIDAR (Light Detection and Ranging) ، والذي تستطيع أن تعطينا خرائط ذو ثلاث أبعاد 3D من مكونات الجو.

القياسات البصرية بلسعمال الليدار LIDAR تمككنا كذلك من اعطاء حجم طبقة الحدود التي تحتوي على الغبار وكذلك معامل التخماد البصري لمختلف الجسيمات في الغلاف الجوي.

توصيف الخصائص الفيزيائية وكيميائية للهباء الدقيق (الحجم، وتركيز،..) ليس بالأمر السهل، لأن توزيع حجم الهباء يدخل في شكل جزء لا يتجزأ في معامل التخماد البصري. لكن هذا يمكن تحقيقه في اجواء أقل تعقيدا (جسيمات الصحراء، والأحماض، والضباب، والسحب...).

أما في ما يخص العمل الذي قمنا به، فقد تطرقنا و إهتمنا بدراسة أحد أنواع الغبار الجوي الأكثر إنتشار و التأثير في الكرة الأرضية ألا وهو غبار الصحراء les aérosols désertiques وذلك بالكشف عن منحنى توزيع احجامها باستخدام جهاز الليدار LIDAR متعددة الأطياف و تتراوح موجات الليزر من فوق البنفسجية إلى تحت الحمراء في القيم التالية: ($\lambda = 0.193, 0.694, 1.064, 3.370 \text{ and } 10.60 \mu\text{m}$) ، و كل طول موجة يمكن أن يعطينا عن الطريق القياس بالليدار LIDAR دالة أو منحنى التخماد البصري الخاص به.

الطريقة الستاتيسيتيكي التي تم إستخدامها في تحسين الحساب هي طريقة الخوارزميات الجينية، وهي تقنية أكثر اعتمادية و ذوكفاءة كبيرة لتسريع وقت الحساب.

أخيرا تتم مقارنة النتائج مع نموذجين معروفين وهما: نموذج لونتا Longtin ونموذج شومات Chomette

كلمات البحث: الليدار ، نظرية كلات Klett، نظرية مي Mie، غبار الصحراء، نموذج لونتا Longtin ، نموذج شومات Chomette.

INTRODUCTION GENERALE1

Chapitre I : Généralités sur les particules atmosphériques

1. L'atmosphère terrestre	4
1.1 Introduction.....	4
1.2 Le rôle de l'atmosphère.....	4
1.3 Composition de l'atmosphère.....	5
1.4 Les couches atmosphériques.....	6
1.4.1 Troposphère.....	7
1.4.2 Stratosphère.....	8
1.4.3 Mésosphère.....	9
1.4.4 Thermosphère.....	9
1.4.5 Exosphère.....	10
1.5 Le bilan radiatif terrestre.....	10
2. La pollution atmosphérique.....	11
2.1 Classification des polluants atmosphériques.....	11
2.1.1 Classification d'après leur origine	11
2.1.1.1 polluants atmosphériques d'origine naturelle.....	12
2.1.1.2 polluants atmosphériques d'origine anthropique.....	12
2.1.2 Classification selon leur formation.....	12
2.2 Les effets des polluants atmosphériques.....	14
3. Aérosols atmosphériques	16
3.1 Définition	16
3.2 Classification des aérosols.....	17
3.2.1 Classification des aérosols d'après l'origine et la formation	17
3.2.2 Classification des aérosols en fonction de leur dimension.....	19
3.2.3 Classification des aérosols en fonction de leur domaine de résidence dans l'atmosphère...20	
3.3 Propriétés physico-chimiques des particules atmosphériques.....	21

3.3.1 Composition chimiques.....	21
3.3.2 Forme des particules.....	23
3.3.3 Diamètre des particules.....	24
3.3.4 Granulométrie des aérosols.....	25
3.3.5 Solubilité.....	28
3.4. Les effets de la pollution particulaire.....	28
3.4.1 Effets sur la santé	28
3.4.2 Effets sur le climat.....	30
3.4.3 Effets sur l'environnement.....	32
4. Conclusion.....	32

Chapitre II : Interaction de rayonnement électromagnétique avec la matière

1. Introduction.....	33
2. Théorie électromagnétique	33
2.1 Définition d'une onde électromagnétique plane.....	33
2.2 Polarisation d'une onde électromagnétique.....	34
2.3 Paramètres de Stokes.....	36
3. Diffusion de la lumière par une particule	40
3.1 introduction.....	41
3.2 Diffusion de la lumière par une particule quelconque.....	41
3.2.1 La diffusion de Rayleigh.....	41
3.2.2 Théorie de Lorenz-Mie	43
3.2.2.1 Equation d'onde et la méthode de séparation des variables.....	43
3.2.2.2 Représentation de l'onde électromagnétique en coordonnées sphériques.....	49
3.2.2.4. Diffusion de la lumière par aérosol.....	51
3.2.2.4.1 Matrice de amplitudes de diffusion.....	51
3.2.2.4.2 Relation avec les paramètres de Stokes.....	54
3.2.2.4.2 Section efficace de diffusion.....	55
3.2.3 Particules non-sphériques.....	58

3.2.4 Décomposition en séries de Debye.....	58
3.2.5 Lois de l'optique géométrique.....	60
3.2.6 La diffraction de Fraunhofer.....	62
4. Conclusion.....	63

Chapitre III : La méthode de télédétection Lidar

1. Introduction à la télédétection optique	64
1.2 Télédétection passive.....	64
1.2 Télédétection active.....	64
2. Le LIDAR.....	65
2.1 Principe de fonctionnement du LIDAR.....	65
2.2 Intérêts et avantages du Lidar.....	67
2. Propriétés optiques des particules atmosphériques.....	70
3.1 L'absorption.....	70
3.2 La diffusion.....	73
3.3 L'extinction.....	73
3.4 La rétrodiffusion.....	73
3.5 L'épaisseur optique.....	73
3.6 la fonction de phase.....	73
3.7 Le facteur d'asymétrie.....	74
3.8 L'albédo de simple diffusion.....	74
3.9 L'exposant d'Angstrom	75
3. Mesure par Lidar.....	75
4.1 LIDAR à rétrodiffusion	76
4.1.1 Définition.....	76
4.1.2 Equation.....	78
4.1.3 Inversion de L'équation Lidar.....	83
4.1.3.1 Atmosphère sans contribution de gazes	83
4.1.3.1.1 Une atmosphère homogène par zone	83
4.1.3.1.2 Une atmosphère inhomogène par zone	84

4.1.3.1.2.1 Proportionnalité linéaire entre la variation des paramètres optiques d’extinction et rétrodiffusion.....	84
4.1.3.1.2.2 Proportionnalité non linéaire entre la variation des paramètres optiques	86
4.1.3.2 Une atmosphère avec contribution de gaz.....	87
4.1.4 Mesure par Lidar à rétrodiffusion.....	88
4.2 Lidar DIAL	92
4.3 Les Lidars Raman opérationnels	95
4.3.1 Le Lidar Raman IGN-SA	96
4.3.2 Calcul du rapport de mélange de vapeur d’eau et l’air sec	98
5. Conclusion.....	100

Chapitre IV : Détection de la distribution de tailles des aérosols désertiques par Lidar

1. Méthodes de caractérisation des aérosols.....	101
1. Mesure par Lidar.....	102
2.1 Méthode utilisant un lidar mono-fréquence couplé à la micro-analyse de filtres impactés	103
2.1.1 Prélèvements par impaction.....	103
2.1.2 Mesures à distance par Lidar.....	106
2.2 Mesure de concentration d’aérosols par la méthode Lidar multispectral toute optique.....	109
2.2.1 Méthode multispectrale avec une distribution de taille prédéfinie.....	109
2.2.2 Méthode multispectrale toute optique sans distribution prédéfinie.....	112
3. Détection de la distribution de tailles des particules désertiques par la méthode Lidar multispectrale en utilisant la méthode des algorithmes génétiques	115
3.1 Introduction.....	116
3.2 Modélisation des aérosols désertiques.....	116
3.2.1 Modélisation de Longtin	116
3.2.2 Modélisation de Chomette.....	119
3.3 Propriétés optiques d’un aérosol désertique de forme sphérique.....	122
3.3.1 Section efficace et efficacité.....	122
3.3.2 Diffusion d’un rayonnement par un aérosol isolé en suspension.....	126

3.4 Distribution de taille de particules désertiques.....	130
3.4.1 Comparaison avec le modèle longtin.....	130
3.4.2 Comparaison avec le modèle de Chomette.....	133
4. Conclusion.....	136

CONCLUSION GENERALE.....138



INTRODUCTION GENERALE

La surveillance de la qualité de l'atmosphère passe nécessairement par la connaissance quantitative des agents gazeux, solides, bactériologique et organiques présents dans notre environnement, mais également de la physico-chimie associée. Cette connaissance doit être résolue dans le temps et l'espace, afin de pouvoir répondre aux préoccupations des pouvoirs publics en matière de santé ou bien également afin d'accéder à une prise de décision anticipée.

Si la pollution par les gaz commence maintenant à être bien mesurée, les aérosols sont très difficiles à mesurer de manière pertinente. En effet, les paramètres nécessaires pour les caractériser sont beaucoup plus nombreux que pour les polluants gazeux. Outre l'évolution au cours du temps du champ de concentration, il faut connaître la distribution de taille et la nature des particules présentes en chaque point. Ces informations sont indispensables pour prévoir l'effet des aérosols sur la physico-chimie atmosphérique et la santé.

Une voie intéressante est alors l'utilisation des techniques optiques et plus particulièrement de la technique LIDAR (Light Detection And Ranging) qui permet d'effectuer des cartographies en trois dimensions des principaux polluants présents dans l'atmosphère et plus particulièrement les aérosols atmosphériques qui jouent un rôle important dans le bilan radiatif terrestre. Cette technique, actuellement loin de répondre à toutes ces préoccupations, fournit déjà de nombreuses informations et des études sont en cours afin d'étendre son domaine d'application.

L'intérêt des mesures optiques de télédétection Lidar est que la caractérisation spatiale ainsi que la dynamique de l'atmosphère est aisée, donnant par exemple un accès direct à la répartition des couches limites et à l'extinction optique des particules atmosphériques

Parmi les processus d'interaction les plus utilisés dans les Lidar pouvant donner lieu à la rétrodiffusion du faisceau Laser, sont la diffusion Rayleigh par l'ensemble des molécules, la diffusion Mie par les particules (aérosols, nuages, poussières,...), et la diffusion Raman permettant d'isoler des molécules spécifiques. Ces trois modes de diffusion existent quelle que soit la longueur d'onde utilisée avec cependant des efficacités très variables qui en limitent l'application.

INTRODUCTION GENERALE

Une méthode Lidar originale à une seule longueur d'onde dans l'UV permettant d'accéder à l'évolution de concentrations des aérosols spatialement et temporellement a été développée.

Cependant, elle nécessite de disposer des hypothèses à priori comme informations supplémentaires à l'instar de la distribution de taille et les indices de réfraction. Ces derniers sont déterminés à l'aide d'un micro-analyseur par rayons X de filtre impacté et microscopie électronique à balayage (MEB) qui sont couplés avec le Lidar.

Cette méthode ne permet cependant pas de remonter à la concentration en aérosols avec exactitude. Mais la distribution spectrale des coefficients d'extinction et de rétrodiffusion dépend fortement de la distribution de taille des particules, de telle sorte qu'en utilisant un Lidar avec plus d'une longueur d'onde, des informations sur la distribution de taille des aérosols peuvent être obtenues. En effet, l'infrarouge moyen est bien moins diffusé par les grosses particules, il est plus sensible aux aérosols de la taille du micron ou de quelques microns alors que l'ultraviolet quand à lui plus sensible aux petites tailles. Différentes méthodes Lidar multi-spectral ont été adoptées dans ce sens.

Une méthode multi-spectrale à peu de longueurs d'onde, appelée méthode des distributions prédéfinies a été appliquée pour déterminer la distribution de taille moyenne des aérosols et leur concentration, et ceci en réalisant un ajustement non-linéaire des paramètres de la distribution de taille des aérosols dont la forme est choisie a priori, de manière à reproduire les coefficients d'extinction et de rétrodiffusion mesurés aux différentes longueurs d'onde. Elle a été utilisée néanmoins lors de nombreuses campagnes avec de bon résultats mais dans le cas où l'atmosphère est peu complexe et ne contient pas un éventail trop large de types de particules (par exemple du brouillard, des aérosols stratosphériques...).

Une autre technique toute optique encore plus pertinente utilisée également dans cette contribution pour déterminer la distribution de la taille des particules sans faire d'hypothèses à priori ce qui était le cas de la méthode précédente. C'est la méthode Lidar multi-spectrales UV-Vis-IR qui est basée sur la théorie statistique des chaînes de Markov. Le choix des longueurs d'onde utilisé ici est très important car l'algorithme de simulation n'est sensible que lorsque la dimension des particules est proche de la longueur d'onde.

Cette thèse s'articulera au tour de quatre chapitres :

Une description générale de l'atmosphère terrestre est faite au début du premier chapitre, suivie par une étude des différents polluants atmosphérique et plus précisément les aérosols. Des classifications ont été présentées également en fonction de plusieurs critères tels que leur

INTRODUCTION GENERALE

dimension, origine, domaine de résidence dans l'atmosphère, et avec leur impact sur le climat, l'environnement et la santé.

Plusieurs rappels théoriques sont présentés dans le second chapitre, concernant les propriétés optiques de diffusion de la lumière par les particules atmosphériques qui sont basées sur la résolution des équations de Maxwell. Mais on va s'intéresser beaucoup plus sur les deux théories de diffusion qui sont à l'œuvre dans la formation du signal Lidar, et qui fera l'objet de troisième chapitre : la diffusion Rayleigh et la diffusion Mie.

Nous présentons dans le troisième chapitre les différents types de Lidar et leurs applications dans le domaine de télédétection. En commençant par le Lidar à rétrodiffusion qui utilise une seule ou plusieurs longueurs d'onde et repose sur le concept de diffusion de Rayleigh pour les molécules de plus petites dimensions, et la diffusion de Mie pour les aérosols (poussières, gouttelettes d'eau) dont la forme est considérée comme sphérique. Et puis le Lidar à absorption différentielle DIAL (Differential Absorption Lidar), qui est une technique très importante permettant de déterminer la concentration de certains polluants gazeux qui ont des effets natifs sur l'environnement tel que l'azone O_3 , le méthane, SO_2 , NO , NO_2 , COV . Et Enfin le Lidar Raman pour la mesure de la concentration chimique d'un élément, le rapport d'humidité ou la température en repérant le décalage en fréquence lié à une diffusion anélastique de la part de la cible.

Dans le chapitre quatre, On s'est appuyé sur l'étude des particules désertiques caractérisant une grande partie du globe terrestre, pour lesquelles nous avons essayé de détecter leurs formes de distributions de taille en utilisant une méthode Lidar multi-spectrale tout optique, dont les longueurs d'onde du Laser allant de l'UV à l'IR ont été fixées dans les valeurs suivantes : ($\lambda = 0.193, 0.694, 1.064, 3.370$ and $10.60 \mu m$).

La méthode stochastique utilisée pour la résolution du problème de simulation est la méthode des algorithmes génétiques, qui est une approche plus efficace fiable et permettant d'accélérer considérablement le temps de calcul.

Finalement les résultats obtenus sont comparés avec les deux modèles de distribution que nous avons considérés : le modèle de Longtin et le modèle de Chomette.

Chapitre 1

Généralités sur les particules atmosphériques

1. L'atmosphère terrestre

1.1 Introduction

L'atmosphère est une immense couche de gaze et de poussière qui enveloppe la surface terrestre et dans laquelle la vie subsiste. Ce milieu contrôle la distribution de l'énergie à la surface du globe, et beaucoup de transformations chimiques, en particulier d'origine photochimique, surviennent à ce niveau. De plus, c'est là que s'effectuent les échanges de matière (et d'énergie) avec le reste du système solaire et l'espace en général. D'autre part, il est en contact très étroit avec les océans, la biosphère terrestre et la lithosphère, et fonctionne comme un milieu de transfert de matières d'une couche à l'autre.

Dans les basses couches, la teneur en vapeur d'eau, en dioxyde de carbone ainsi que la part des particules en suspension varient selon le lieu et l'époque. (ex : en Sibérie l'air est plus sec qu'au bord de la mer, au dessus d'une ville l'air est plus chargé en particules et en dioxyde de carbone). C'est au niveau de cette basse couche où se produisent les phénomènes météorologiques (nuages, pluies...).

1.2 Le rôle de l'atmosphère

L'atmosphère joue un rôle vital pour nos organismes et la vie sur terre. En effet, L'atmosphère est une enveloppe qui entoure la terre, elle permet de réguler et de nous protéger de trois éléments vitaux qui conditionnent notre vie sur terre. Pour la température et l'irradiation: L'atmosphère joue le rôle d'effet de serre et d'écran protecteur, notamment avec l'ozone. Cela évite que nous soyons brûlés par les rayons du soleil. Ainsi, l'atmosphère sert de filtre contre le rayonnement solaire et les ultras violets notamment avec ses différentes couches. En l'absence de l'atmosphère, la température à la surface de la terre serait de 2°C. Pour la pression atmosphérique au dessus de nos têtes, l'air s'entasse sur des kilomètres de hauteur. Tout cet air à un poids et ce poids s'applique sur tous les objets à la surface de la terre. C'est la pression atmosphérique qui nous permet de supporter le poids de l'air.

1.3 Composition de l'atmosphère

L'atmosphère terrestre est un mélange de différents constituants chimiques. Les plus abondants sont l'azote (78%) et l'oxygène (21%). Ces gaz, aussi bien que les gaz rares ont des durées de vie très longues face aux destructions chimiques et par conséquent sont bien mélangés dans toute l'atmosphère. Les composés minoritaires, tels que la vapeur d'eau, le gaz carbonique, l'ozone, le méthane, les espèces azotées jouent un rôle important en dépit de leurs faibles concentrations. Ils influent sur la transmission des rayonnements solaires et terrestres dans l'atmosphère et par conséquent interviennent dans le système climatique de la terre. De plus, ils déterminent la capacité oxydante de l'atmosphère et par conséquent contrôlent les temps de vie des espèces traces biogéniques et anthropiques.

Le tableau I.1 montre la composition chimique de l'atmosphère.

Constituant	Formule chimique	Rapport volumique	Sources majoritaires et remarques
Azote	N ₂	78,084%	Biologique
Oxygène	O ₂	20,948%	Biologique
Argon	Ar	0,934%	Inerte
Dioxyde de carbone	CO ₂	360 ppmv	Combustion, océan, biosphère
Méthane	CH ₄	1,7 ppmv	Biogénique et anthropique
Hydrogène	H ₂	0,55 ppmv	Biogénique, anthropique et photochimique
Oxyde nitreux	N ₂ O	0,31 ppmv	Biotique et anthropique
Monoxyde de carbone	CO	50-200 ppbv	Photochimique et anthropique
Ozone troposphérique	O ₃	10-500 ppbv	Photochimique
Ozone stratosphérique	O ₃	0,5-10 ppm	Photochimique
Hydrocarbures non méthaniques	C _x H _y	5-20 ppbv	Biogénique et anthropique
Espèces azotées	NO _y	10 ppt-1ppm	Sols, foudre, anthropique
Ammoniac	NH ₃	10 ppt-1 ppb	Biogénique
Radicaux hydroxyles	OH	0,1-10 ppt	Photochimique
Radicaux peroxydes	HO ₂	0.1-10 ppt	Photochimique
Peroxyde d'hydrogène	H ₂ O ₂	0,1 ppb-10 ppb	Photochimique

Formaldéhyde	CH ₂ O	0,1-1 ppb	Photochimique
Dioxyde de soufre	SO ₂	10 ppt-1 ppb	Photochimique, volcanique, anthropique
Sulfure de diméthyle	CH ₃ SCH ₃	10 ppt-100 ppt	Biogénique
Disulfure de carbone	CS ₂	1 ppt-300 ppt	Biogénique et anthropique
Sulfure de carbonyle	OCS	500 pptv	Biogénique, volcanique, anthropique
Sulfure d'hydrogène	H ₂ S	5 ppt-500 ppt	Biogénique et volcanique
Sulfate particulaire	SO ₄	10 ppt-10 ppb	Photochimique et anthropique

Tableau I.1 Composition chimique de l'atmosphère [Brasseur et al., 1999]

Bien que l'atmosphère soit principalement constituée de gaz, elle contient néanmoins de la matière condensée. Les tempêtes dans le désert, le blizzard hivernal aux pôles attestent de la capacité de notre planète à produire des quantités significatives de phases condensées liquide ou solide appelés plus couramment les aérosols. On va s'intéresser sur ce type de particules qui fera l'objet dans ce travail. (Voir la partie III)

1.4 Les couches atmosphériques

L'atmosphère dans sa structure est formée de plusieurs couches qui ont chacune des propriétés et des caractéristiques différentes. La distribution de la température donne le plus souvent la répartition des différentes couches de l'atmosphère comme l'indique la Fig .I.1. La troposphère, la stratosphère, la mésosphère, thermosphère et l'exosphère sont les couches principales qui composent l'atmosphère. Leurs limites ont été fixées selon les variations de la température et en fonction de l'altitude.

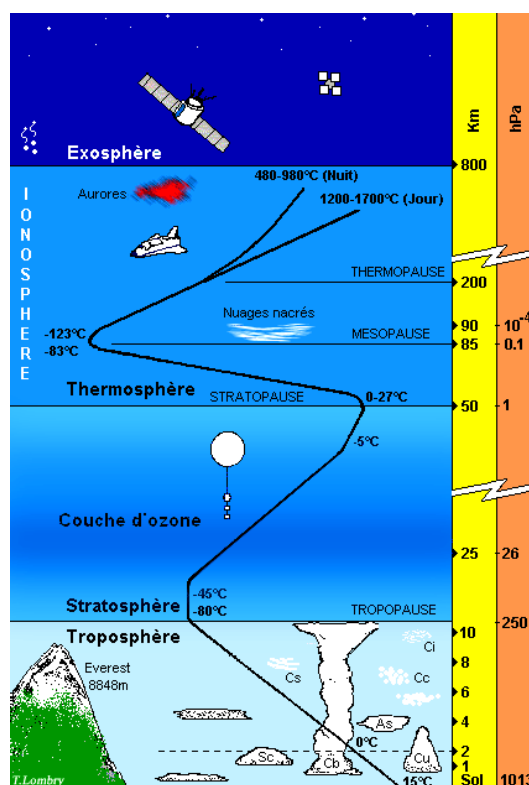


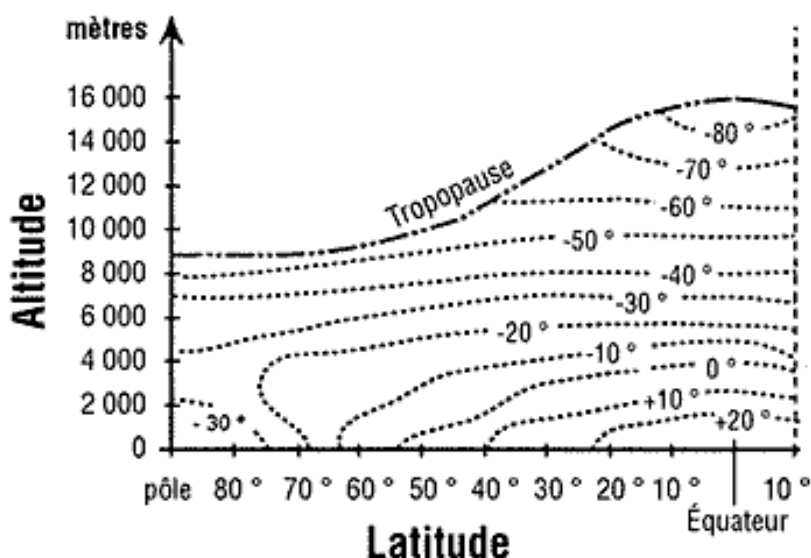
Fig I.1 – Structure et profil de température des différentes couches atmosphériques

1.4.1 Troposphère

La troposphère est la couche la plus proche de la surface de la terre. Sa température diminue de 6.5°C par km d'altitude et son épaisseur moyenne est de 13 km. Cette décroissance thermique s'arrête à un niveau appelé tropopause. C'est dans la troposphère que les phénomènes météorologiques tels que les précipitations, les tornades et les éclairs se déroulent. C'est également là que s'accumulent les gaz polluants issus des activités humaines. L'épaisseur de cette couche varie entre 13 et 16 km à l'équateur, mais entre 7 et 8 km aux pôles. Elle contient 80 à 90% de la masse totale de l'air (mélange de diazote et de dioxygène) et la quasi-totalité de la vapeur d'eau (C'est donc dans cette couche que le cycle de l'eau peut se développer). Dans cette couche se produisent les phénomènes météorologiques (nuages, pluies...) et les mouvements atmosphériques.

La limite basse de la troposphère n'est pas la surface de la terre, mais la couche limite. C'est la région de l'atmosphère où les mélanges des émissions à la surface du sol sont fortement turbulents et non homogènes. Cette couche est comprise entre 0.5 et 2 km suivant les régions

et les saisons [Stull, 1988]. Ces turbulences augmentent sensiblement les vitesses de mélange, les processus d'oxydation ou les dépôts acides.



*Fig.I.2 – Coupe méridienne du champ de températures de la troposphère
[www.crdp.ac-amiens.fr]*

1.4.2 Stratosphère

La stratosphère est la deuxième couche principale de l'atmosphère. Elle se trouve au-dessus de la troposphère et est séparée d'elle par la tropopause. Elle occupe la région de l'atmosphère d'environ 12 à 50 km, bien que sa limite inférieure soit plus haute à l'équateur et plus basse aux pôles. La stratosphère définit une couche dans laquelle les températures s'élèvent avec l'augmentation de l'altitude. En haut de la stratosphère l'air mince peut atteindre des températures près de 0° C. Cette élévation de la température est provoquée par l'absorption des rayons ultraviolets (UV) du soleil par la couche d'ozone. Un tel profil de température crée des conditions atmosphériques très stables, et la stratosphère manque de la turbulence de l'air qui est si répandue dans la troposphère. En conséquence, la stratosphère est presque totalement exempte de nuages ou d'autres formes de temps. La stratosphère fournit quelques avantages pour le vol de longue distance parce qu'elle est au-dessus des temps orageux et a des vents forts, réguliers et horizontaux. La stratosphère est séparée de la mésosphère, qui se trouve au-dessus d'elle, par la stratopause.

1.4.3 Mésosphère

La mésosphère (littéralement sphère moyenne) est la troisième couche la plus élevée dans notre atmosphère, occupant la région de 50 km à 80 km au-dessus de la surface de la terre, au-dessus de la troposphère et de la stratosphère, et au-dessous de la thermosphère. Elle est séparée de la stratosphère par la stratopause et de la thermosphère par la mésopause.

Les températures dans la mésosphère chutent avec l'augmentation de l'altitude jusqu'à environ -100°C . La mésosphère est la plus froide des couches atmosphériques. En fait elle est plus froide que la plus basse des températures enregistrées en Antarctique. Il y fait assez froid pour geler de la vapeur d'eau en nuages de glace. Vous pouvez voir ces nuages si la lumière du soleil les frappe après le coucher du soleil. Ils s'appellent : Noctilucent Clouds (NLC). Les NLC sont plus facilement visibles quand le soleil est de 4° à 16° au-dessous de l'horizon.



Fig 1.3—La couche bleu-foncé à côté de la noirceur de l'espace est la mésosphère. L'atmosphère supérieure s'étend beaucoup plus loin [www.la.climatologie.free.fr]

1.4.4 Thermosphère

La couche la plus haute est la thermosphère. La thermosphère commence à 90-100 km et va jusqu'à 1280 km l'altitude. La pression y devient presque nulle et les molécules d'air sont très rares. L'ultraviolet solaire de très courtes longueurs d'onde (entre 100 et 200 nm) est absorbé entre 100 km et 150 km d'altitude par l'oxygène moléculaire. La température augmente avec l'altitude et se maintient jusqu'à un niveau appelé thermopause situé de 250 km à 500 km suivant l'activité solaire et la température oscille entre 300°C et 1600°C suivant l'énergie reçu par le soleil. Les températures sont élevées, mais comme la densité de matière est

extrêmement faible il ferait très froid pour nous puisque les quelques molécules d'air ne sont pas assez pour transférer une chaleur convenable pour nous. La thermosphère est la région où près des pôles se forment les aurores boréales et australes.

1.4.5 Exosphère

L'exosphère est la dernière couche d'atmosphère terrestre qui se situe au-dessus de la thermosphère, au-delà de 600 km. Cette couche se définit comme la région de l'atmosphère où les collisions entre particules sont rares, considérées comme négligeables. En effet la densité de particules y est extrêmement faible. Celle-ci est de l'ordre de 10^6 par centimètre cube à environ 700 km d'altitude. A 5 000 km d'altitude celle-ci n'est plus que de l'ordre de 100 par centimètre cube, densité équivalente à celle du milieu interplanétaire. Les atomes s'y comportent donc librement, certains s'échappent même dans l'espace.

1.5 Le bilan radiatif terrestre

L'énergie disponible à la surface de la terre provient du soleil et environ un tiers de cette énergie est renvoyée vers l'espace, soit par réflexion, soit par diffusion par les nuages et les particules en suspension dans l'atmosphère. C'est l'effet parasol, qui participe au refroidissement (Fig. I.4).

L'énergie restante est absorbée soit par l'atmosphère, soit par la surface de la terre et transformée en chaleur. La température théorique d'équilibre de la surface de la terre à partir de la quantité d'énergie reçue du soleil à travers l'atmosphère est -18°C . Or, la température moyenne est d'environ 15°C . Cette différence provient du fait que le rayonnement infrarouge terrestre n'est pas entièrement rediffusé vers l'espace. Une grande partie est interceptée par certains gaz de l'atmosphère : les gaz dits à effet de serre (gaz carbonique CO_2 , vapeur d'eau H_2O , méthane CH_4 , oxyde nitreux N_2O , ozone O_3 etc.). Les molécules de ces gaz absorbent le rayonnement infrarouge terrestre et participent donc au réchauffement de la terre.

Les aérosols biotiques ainsi que les nuages, qui ont une grande opacité au rayonnement infrarouge thermique, participent également à cet effet de serre naturel.

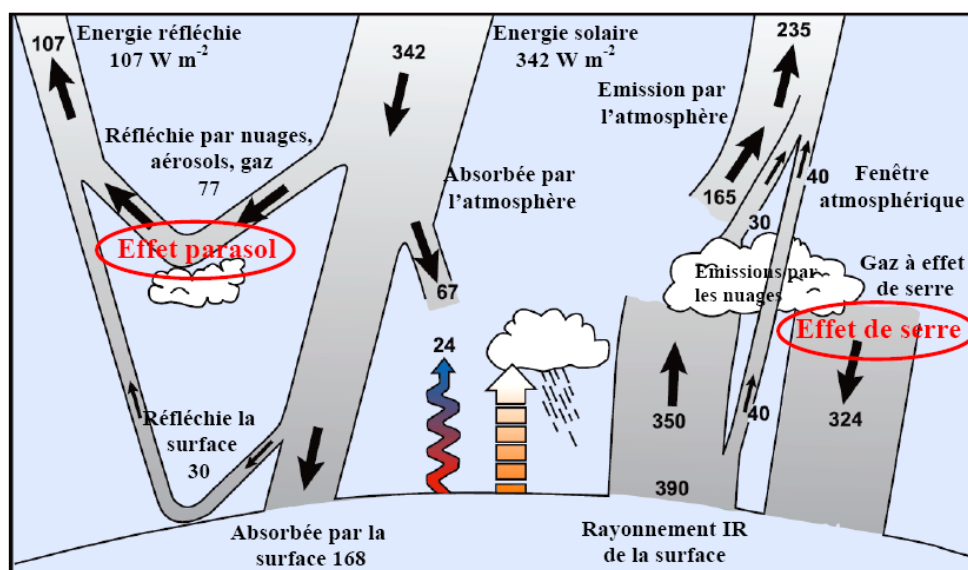


Fig I.4– Transformations de l'énergie solaire incidente et différents processus du bilan radiatif terrestre [IPCC 2007].

2. La pollution atmosphérique

La pollution atmosphérique correspond à des gaz ou particules positionnés dans les basses couches de l'atmosphère (troposphère et stratosphère). Le taux de ces polluants étant quantitativement extrêmement faible, leur concentration s'exprime habituellement en microgramme par mètre cube d'air ($\mu g/m^3$) ou en nombre de parties par million (*ppm*) pour les particules. Malgré la faible teneur des constituants mis en jeu, ces polluants sont néfastes pour l'environnement et les êtres vivants (dont l'homme), que ce soit directement (mauvaise qualité de l'air) ou indirectement (accentuation de l'effet de serre, formation du trou de la couche d'ozone).

On distingue la pollution de proximité et la pollution régionale ou globale. La première provient des effets directs du tabagisme, du chauffage individuel, des fumées des usines et des gaz produits par les voitures en excès. La seconde résulte de phénomènes physico-chimiques plus complexes et variés. On peut citer par exemple la production d'ozone dans les basses couches atmosphériques, les pluies acides qui ont un impact non négligeable sur les écosystèmes aquatiques, la réduction de la couche d'ozone à haute altitude ou encore, l'augmentation de l'effet de serre qui pourrait provoquer des changements climatiques importants.

2.1 Classification des polluants atmosphériques

2.1.1 Classification d'après leur origine

2.1.1.1 Polluants atmosphériques d'origine naturelle

Certains polluants atmosphériques sont d'origine naturelle. Ce sont essentiellement le dioxyde de soufre (SO_2) et le dioxyde d'azote (NO_2). Ces composés proviennent principalement des éruptions volcaniques, des décompositions organiques, des feux de forêt, ainsi que des océans. Des particules en suspension sont également présentes dans l'atmosphère du fait des émissions volcaniques et des transports de poussières (en provenance du désert et du Sahara, par exemple). Le transport de ces particules s'effectue sur de longues distances, mais il constitue un phénomène souvent limité dans le temps (phénomène épisodique). Le radon, gaz radioactif issu de la chaîne de désintégration radioactive de l'uranium présent dans certains sols et roches, représente également une forte source de pollution à l'intérieur des habitations.

2.1.1.2 Polluants atmosphériques d'origine anthropique

La majorité des polluants atmosphériques est cependant d'origine anthropique, et leur apparition coïncide avec le début de l'ère industrielle. Les principaux polluants anthropiques sont le dioxyde de carbone (CO_2), le dioxyde de soufre (SO_2), le dioxyde d'azote (NO_2), ainsi que l'ozone (O_3). Le dioxyde de carbone est majoritairement produit par la combustion des énergies fossiles (charbon, pétrole, gaz naturel). Les industries principalement les usines métallurgiques et sidérurgiques, les incinérateurs municipaux, les raffineries de pétrole, les cimenteries et les usines d'acides nitrique et sulfurique contribuent quant à elles à d'importants rejets en dioxyde de soufre. Les transports routiers rejettent également une large palette de ces polluants, avec notamment du monoxyde de carbone (CO) et des particules en suspension. Enfin, l'ozone (O_3) (polluant secondaire) se forme à partir d'autres polluants dits primaires (les oxydes d'azote notamment), selon un processus photochimique.

2.1.2 Classification selon leur formation

Nous pouvons classer les types de polluants atmosphériques en deux catégories.

Les polluants primaires qui sont émis directement de la source sans subir de transformation physique ou chimique.

Les polluants secondaires qui sont formés de réactions chimiques entre les polluants primaires et les constituants présents dans l'atmosphère.

On montre sur le *tableau I.2* les principaux polluants gazeux des deux catégories.

Classe	Polluants primaires	Polluants secondaires
Composants sulfuriques	SO ₂ , SO ₃ , H ₂ S, COS, CS ₂ , sulfure de diméthyle (CH ₃) ₂ S	SO ₃ , acide sulfurique H ₂ SO ₄ , SO ₄ , ammonium sulfurique (NH ₄) ₂ , SO ₄ ⁻
Composants d'azotes	NO, l'oxyde d'azote N ₂ O, dioxyde d'azote NO ₂ , ammoniac NH ₃	NO, l'oxyde d'azote N ₂ O, acide d'azote HNO ₃ , NO ₃ ⁻ , les ions d'ammoniac NH ₄ ⁺
Composants carboniques non organiques	CO, CO ₂	CO ₂
Composants carboniques organique	Méthane CH ₄ , terpènes, isoprènes, les composants paraffinées et aromatiques	Azote organique, peroxyde
Composants halogènes	HF, HCl, CCl ₄ , chlorofluorocarbones CFCs, chlorure de méthyle (CH ₃ Cl, CH ₃ CCl ₃)	
Substances radioactives	Strontium ⁹⁰ Sr, Césium ¹³⁷ CS, Idoine ¹³¹ I, Tritium ³ H, Radon et ses dérivés	

Tableau I.2 – Classification des polluants atmosphériques gazeux selon leurs propriétés chimiques.

En plus des polluants gazeux, il existe des polluants sous forme solide (poussière, fumée) et liquide (brouillard, brume).

Le *tableau I.3* nous montre la concentration de plusieurs gaz pour une atmosphère propre.

Gazes atmosphériques normaux	Concentration moyenne (ppm)	Gazes Polluants	Concentration moyenne (ppm)	Temps de résidence
N ₂	780.840	CO ₂	355	15 ans
O ₂	209.460	CH ₄	1.7	7 ans
Ar	9.340	N ₂ O	0.3	10 ans
Ne	18.2	CO	0.05-0.2	65 ans
Kr	1.1	SO ₂	10 ⁻⁵ -10 ⁻⁴	40 ans
Xe	0.09	NH ₃	10 ⁻⁴ -10 ⁻²	20 ans
He	5.2	NO _x	10 ⁻⁶ -10 ⁻²	1 jour
H ₂	0.58	NHO ₃	10 ⁻⁵ -10 ⁻³	1 jour
H ₂ O	variable	O ₃	10 ⁻² -10 ⁻¹	

Tableau I.3 – Concentration des gaz normaux et polluants dans une atmosphère propre [Seinfeld, 1986]

2.2 Les effets des polluants atmosphériques

<i>Polluants</i>	Origine	Effets sur la santé	Effets sur l'environnement
Ozone troposphérique (O₃)	L'ozone est une forme particulière de l'oxygène. Contrairement aux autres polluants, l'ozone n'est pas émis par une source particulière mais résulte de la transformation photo-chimique de certains polluants de l'atmosphère, issus principalement du transport routier, (NO _x et COV) en présence des rayonnements ultra-violet solaires. Les concentrations élevées d'ozone s'observent principalement l'été, durant les heures chaudes et ensoleillées de la journée.	C'est un gaz agressif qui provoque (à partir de concentration de 150 à 200 µg/m ³) des migraines, des irritations des yeux et de la gorge, de la toux et une altération pulmonaire, surtout chez les personnes sensibles.	En quantité très élevée, l'ozone peut avoir des conséquences dommageables pour l'environnement. Il contribue à l'acidification de l'environnement qui perturbe la composition de l'air, des eaux de surface et du sol. Ainsi, l'ozone porte préjudice aux écosystèmes (déperissement forestier, acidification des lacs d'eau douce, atteinte à la chaîne alimentaire,...) et dégrade les bâtiments et les cultures
Oxydes d'azote (NO_x)	Les NO _x proviennent surtout des véhicules et des installations de combustion. Ces émissions ont lieu principalement sous la forme de NO (90%) et dans une moindre mesure sous la forme de NO ₂ .	Le NO n'est pas toxique pour l'homme au contraire du NO ₂ qui peut entraîner une altération de la fonction respiratoire et une hyper activité bronchique. Chez les enfants et les asthmatiques, il peut augmenter la sensibilité des bronches aux infections microbiennes.	Les NO _x interviennent dans la formation d'ozone troposphérique et contribuent au phénomène des pluies acides qui attaquent les végétaux
Composés organiques volatils (COV)	Les COV hors méthane (NMVOC) sont gazeux et proviennent du transport routier (véhicules à essence) ou de l'utilisation de solvants dans les procédés industriels (imprimeries, nettoyage à sec,...) ou dans les colles, vernis, peintures,... Les	Les effets sont divers selon les polluants et l'exposition. Ils vont de la simple gêne olfactive et une irritation, à une diminution de la capacité respiratoire. Le benzène est un composé cancérigène	Les COV interviennent dans la formation d'ozone troposphérique et contribuent au phénomène des pluies acides qui attaquent les végétaux et les bâtiments.

	plus connus sont les BTX (benzène, toluène, xylène).	reconnu.	
Dioxyde de carbone (CO₂)	Il provient essentiellement de la combustion de carburant fossile pour le transport, le chauffage et les activités industrielles.	Le CO ₂ dispose d'un très haut pouvoir de dissolution dans les muqueuses du corps humain et provoque chez l'homme de nombreuses réactions dès que sa concentration dans l'air inspiré augmente. Pour des concentrations voisines de 0,1 %, il provoque une modification du rythme respiratoire chez les personnes fragiles ou ayant des insuffisances respiratoires, des niveaux supérieurs à 1000 ppm (0,1%), en milieu clos peuvent provoquer des crises d'asthme. Dans le monde du travail, la concentration maximale admise pour le CO ₂ , est limitée à 0,5% (5000ppm) mais la France n'a pas adopté cette norme.	L'augmentation de la concentration en CO ₂ accroît sensiblement l'effet de serre et contribue à une modification du climat planétaire.
Dioxyde de soufre (SO₂)	Il provient essentiellement de la combustion des matières fossiles contenant du soufre (comme le fuel ou le charbon) et s'observe en concentrations légèrement plus élevées dans un environnement à forte circulation.	C'est un gaz irritant. Des expositions courtes à des valeurs élevées (250µg/m ³) peuvent provoquer des affections respiratoires (bronchites,...) surtout chez les personnes sensibles.	En présence d'eau, le dioxyde de soufre forme de l'acide sulfurique (H ₂ SO ₂) qui contribue, comme l'ozone, à l'acidification de l'environnement.
Ammoniac (NH₃)	L'ammoniac est un polluant surtout lié aux activités agricoles. En milieu urbain, sa production semble être fonction de la densité de l'habitat. Sa présence est	Le NH ₃ présent dans l'air n'a pas d'effet toxique sur la santé. Mais attention, sous forme liquide (NH ₄ OH), l'ammoniac se	Comme l'ozone, le NH ₃ contribue à l'acidification de l'environnement.

	liée à l'utilisation de produits de nettoyage, aux processus de décomposition de la matière organique et à l'usage de voitures équipées d'un catalyseur.	révèle très corrosif ! Mélangé avec de l'eau de Javel (chlore actif), il peut alors provoquer des dégagements gazeux toxiques (chloramines).	
Polluants organiques persistants (POP) Incluant les dioxines, les HAP, les pesticides,...	La production de dioxines est principalement due aux activités humaines et sont rejetées dans l'environnement essentiellement comme sous-produits de procédés industriels (industrie chimique des organochlorés, combustion de matériaux organiques ou fossiles,...). Les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP) sont rejetés dans l'atmosphère comme sous-produits de la combustion incomplète de matériaux organiques.	De fortes concentrations de POPs ont des effets carcinogènes reconnus sur la santé. Ils peuvent aussi avoir des effets à très faible concentration. Perturbateurs endocriniens, ils interviennent dans les processus hormonaux et les perturbent : malformations congénitales, capacité reproductive limitée, développement physique et intellectuel affecté, système immunitaire détérioré.	Les POPs résistent à la dégradation biologique, chimique et photolytique et persistent donc dans l'environnement. Par ailleurs, ils sont caractérisés par une faible solubilité dans l'eau et une grande solubilité dans les lipides ce qui cause une bio-accumulation dans les graisses des organismes vivants et une bioconcentration dans les chaînes trophiques

Tableau I.4 – Principaux effets des polluants atmosphériques sur la santé et l'environnement

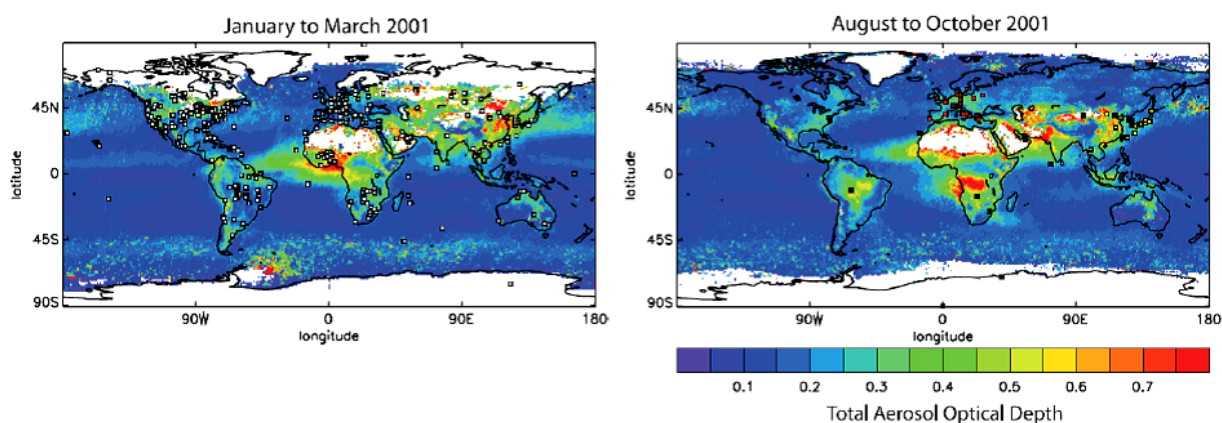
3. Aérosols atmosphériques

3.1 Définition

On appelle aérosol atmosphérique toute particule en suspension dans l'air, c'est-à-dire la phase condensée sous forme liquide et solide, à l'exclusion de celle liée à l'eau. De nombreuses classifications sont utilisées pour la description des aérosols, en fonction de leur origine (naturelle ou anthropique), de leur nature (inorganique ou organique), de leur histoire (aérosol primaire ou secondaire), de leur taille (distribution en nombre et en masse). La taille des aérosols varie sur un large spectre allant du nanomètre à quelques dizaines de micromètres. Les aérosols de taille supérieure ne sont, en général, plus considérés comme des particules en suspension car ils peuvent sédimenter sous l'effet et de l'attraction terrestre. La limite inférieure correspond aux plus petits noyaux de condensation. Si plus de 90% des aérosols en suspension dans l'atmosphère sont de diamètre inférieur à 0,1 μm , la majorité de la masse est concentrée sur les particules de diamètre supérieur. Les aérosols liquides sont généralement

de forme sphérique. En revanche, les aérosols solides prennent une forme caractéristique de leurs composants.

A travers des images réalisées par satellites scrutant la planète (Fig. I.5), 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 I.5 – Détermination de l'épaisseur optique de l'aérosol à 355 nm réalisé par MODIS
Source [IPCC 2007].*

3.2 Classification des aérosols

3.2.1 Classification des aérosols d'après l'origine et la formation

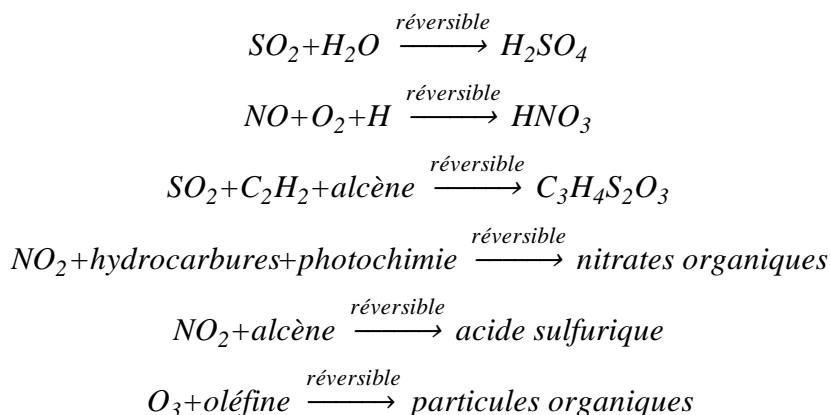
Les particules présentes dans l'air ambiant sont d'origines multiples:

- Les aérosols naturels proviennent de processus naturels : éruptions volcaniques, les activités sismiques, les activités géothermiques, les feux de terres non cultivées, les vents violents, la remise en suspension atmosphérique ou le transport de particules naturelles provenant de régions désertiques.
- Les aérosols anthropiques sont émises par des activités humaines telles que celles résultant de combustion, de processus industriels, formation de suies, usure des revêtements routiers, travaux de démolition, chantiers de construction, stockage et manutention de matières en vrac, d'abrasion.

Selon que les particules sont émises telles quelles ou qu'elles se sont formées dans l'air suite à des réactions chimiques à partir d'autres polluants, on distingue :

- Les aérosols primaires provenant de sources naturelles ou anthropiques.

- Les aérosols secondaires se forment dans des conditions météorologiques particulières et sont le résultat d'une combinaison avec des molécules naturellement présentes dans l'atmosphère provenant de précurseurs gazeux polluants tels que les COV, l'ammoniac (NH_3), l'acide nitrique (HNO_3) et les dérivés soufrés liés aux émissions de SO_2 . A titre d'exemple, certaines réactions chimiques des aérosols secondaires sont proposées comme suit:



Le *tableau I.5* présente une estimation des flux d'émission moyens annuels des principaux types de particules dans l'atmosphère [Chazette, 2004]. Ce tableau permet de mettre en évidence que pour la majorité des types de particules, il existe une composante naturelle et une composante anthropique. La composante naturelle représente, à elle seule, environ 90% des émissions en flux de masse totale annuelle. Les évolutions des estimations entre 1995 et 2001 montrent à quel point les flux d'émission moyens annuels ne sont connus que très approximativement.

	Émission (10^{12} g/an)		
	1995	1996	2001
Particules naturelles primaires			
<i>Poussières désertiques</i>	500	1 500	2 150
<i>Sels de mer</i>	1 300	1 300	3 340
<i>Poussières volcaniques</i>	30	33	33
<i>Débris biogéniques</i>	50		56
<i>Carbone suie (produit par la combustion)</i>			6-9
Particules naturelles secondaires			
<i>Sulfates produits par les gaz biogéniques</i>	130	90	57
<i>Sulfates produits par le SO_2 volcanique</i>	20	12	21
<i>Nitrates principalement produits par les oxydes d'azote</i>	30	22	4
<i>Combustion de la biomasse (organiques,</i>			90

<i>nitrates, sulfates)</i>			
<i>Combustion de la biomasse (carbone organique seul)</i>			45 à 80
<i>Carbone organique produit par les gaz biogéniques (COV)</i>		5 à 12	16
Particules anthropiques primaires			
<i>Poussières industrielles</i>	100	100	100 à 200
<i>Carbone suie</i>	10	13	6 à 8
Particules anthropiques secondaires			
<i>Carbone organique produit par la combustion des fuels fossiles</i>	10 à 60	10	10 à 30
<i>Sulfates produits par le SO₂</i>	190	140	122
<i>Nitrates principalement produits par les oxydes d'azote</i>	50	40	14

Tableau 1.5 – Estimation des flux d'émission moyens annuels des principaux types d'aérosols dans l'atmosphère [Chazette, 2004]

3.2.2 Classification des aérosols en fonction de leur dimension

Selon l'ordre de grandeur du rayon r de la particule (supposée sphérique), on distingue trois classes [Whitby, 1976]:

- les particules d'Aitken : r compris entre 0,001 μm et 0,1 μm .
- les particules fines (mode d'accumulation) : r compris entre 0,1 μm et 1 μm .
- les grosses particules : r compris entre 1 μm et 100 μm .

Les particules les plus petites, d'environ 10^{-3} μm de rayon, sont de gros ions qui jouent un rôle important en électricité et en chimie atmosphériques. Les particules d'Aitken, aérosols très fins dans la classe de taille [0,001 ; 0,1 μm], constituent des noyaux de condensation dans le processus de formation des nuages et des brouillards.

Les aérosols atmosphériques sont beaucoup plus nombreux dans la deuxième classe [Junge, 1958]. Par contre, les grosses particules sont beaucoup moins nombreuses, ne pouvant rester dans l'atmosphère à l'état libre que pour une durée limitée, dans un domaine de résidence localisé au voisinage des sources d'émission.

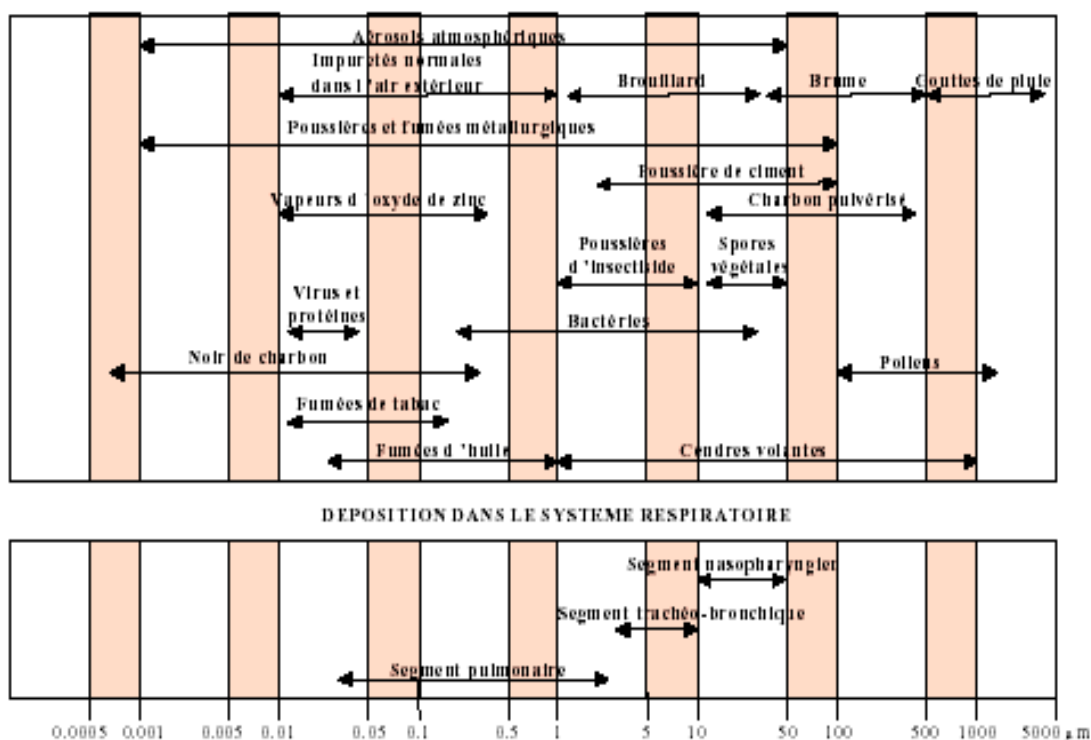


Fig I.6–Diamètre de divers types de particules atmosphériques [CITEPA, 2001]

3.2.3 Classification des aérosols en fonction de leur domaine de résidence dans l'atmosphère

- **Aérosols troposphériques**

Ce sont des aérosols de courte durée de vie, concentrés surtout dans la partie basse de la troposphère. Leur concentration et leur composition physico-chimique présente une grande variabilité temporelle et spatiale. Parmi ces aérosols, les aérosols minéraux (ou poussière désertique) soulevés par les vents dans les régions arides jouent un rôle très important à l'échelle régionale. Ils forment des couches de grande épaisseur optique qui restent plusieurs jours dans l'atmosphère, et dont l'impact radiatif est donc élevé.

- **Aérosols stratosphériques**

Ces aérosols localisés entre 12 et 30 km d'altitude sont de petites dimensions. Ils sont produits principalement par le processus de conversion gaz-particule et par les injections issues des grandes éruptions volcaniques. Une petite partie de ces aérosols stratosphériques est d'origine extraterrestre. Leur concentration maximale se situe vers l'altitude de 18 - 20 km, dans une région appelée couche d'aérosol de Junge. Ils présentent une distribution zonale presque uniforme et leur durée de vie est de quelques mois à quelques années.

3.3 Propriétés physico-chimiques des particules atmosphériques

Le comportement des particules dans l'air et dans l'organisme humain dépend de leurs propriétés physico-chimiques. La dimension, la masse volumique et la forme de ces particules ont une importance capitale car ces paramètres influent non seulement sur la vitesse de sédimentation des particules, et donc sur leur durée de suspension dans l'atmosphère, mais encore sur leur pénétration et leur dépôt dans l'appareil respiratoire. Les éventuels effets nocifs des particules dépendent, eux aussi, de leur composition chimique et minéralogique, de leur solubilité et de leur activité biologique.

3.3.1 Composition chimiques

Les principales composées chimiques des aérosols :

- **Les composés carbonés** : l'aérosol carboné est constitué d'une composante organique (OC) d'origine primaire et secondaire (secondary organic aerosols ou SOA), regroupant plusieurs centaines de composés organiques différents, et d'une composante "black carbon" (BC) également appelé carbone-suie ou carbone élémentaire (EC), principalement d'origine primaire.
- **Les poussières minérales** : qui résultent de la fragmentation de matériaux solides sous l'effet des forces naturelles ou d'une action mécanique (érosion des sols et des routes, poussières désertiques, volcan) et se rencontrent en générale sur des lieux de travail tels que mines, fonderies, carrières, usines textiles, pendant des opérations de broyage ou d'usinage ou lors du transport de matériaux finement divisés, ainsi qu'en agriculture et en sylviculture.
- **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 ($SO_2 + H_2O \rightarrow H_2SO_4$) qui s'entourent de glace et forment avec les cendres un écran empêchant le rayonnement solaire d'arriver jusqu'au sol. 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. Néanmoins, beaucoup de rejets sont encore liés à l'activité industrielle.
- **Les vapeurs (aérosols de condensation)** : qui sont produites par vaporisation et condensation à partir de substances solides chaudes, se rencontre généralement dans les fonderies et les autres branches de la métallurgie ainsi que dans les opérations de soudage.

- **Les brumes** : qui peuvent provenir de liquides sous l'effet d'une action mécanique (dispersion) ou de l'évaporation et/ou condensation de vapeurs (condensation) se rencontre dans l'agriculture moderne (pulvérisation de pesticides), les industries de transformation des métaux, la galvanoplastie, la peinture au pistolet et les autres opérations de pulvérisation.
- **Les métaux**, provenant d'émissions industrielles (sidérurgie, etc.), de phénomènes abrasifs (freinage des véhicules, remise en suspension, etc.), et de la combustion (chauffages, incinération, etc.).
- **Les aérosols d'origine biogène** : ils se caractérisent par l'extrême diversité de taille et l'énorme hétérogénéité, les matières biologiques sont présentes dans l'atmosphère sous forme de pollens, spores fongiques, bactéries, virus, insectes, fragments de plantes et d'animaux, etc. La concentration volumétrique des bios aérosols dépend de la saison, l'emplacement et la hauteur du volume d'échantillonnage avec des petites valeurs aux altitudes les plus élevées et même dans les périodes hivernales.

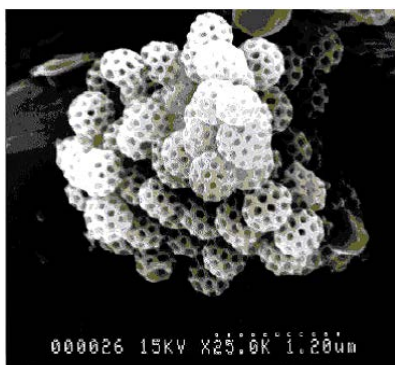


Fig I.7 – Image d'un virus collecté sur un filtre à particule et photographier par MEB (microscopie électronique à balayage) [Kasparian, J., 1997]

De manière générale, la composition chimique varie en fonction de la typologie du site de prélèvement. Pour les sites dits naturels et ruraux, la contribution des sources naturelles (sels marins et poussières minérales) est plus importante que pour les stations urbaines. A l'inverse, la fraction carbone élémentaire est plus élevée pour les stations trafics que pour les stations proches centre-ville, naturelles ou rurales. Plusieurs études ont été abordé dans ce sens afin de déterminer la composition moyenne globale des particules. Une combinaison des données de différentes études menées en Europe est présentée dans la Fig. I.8.

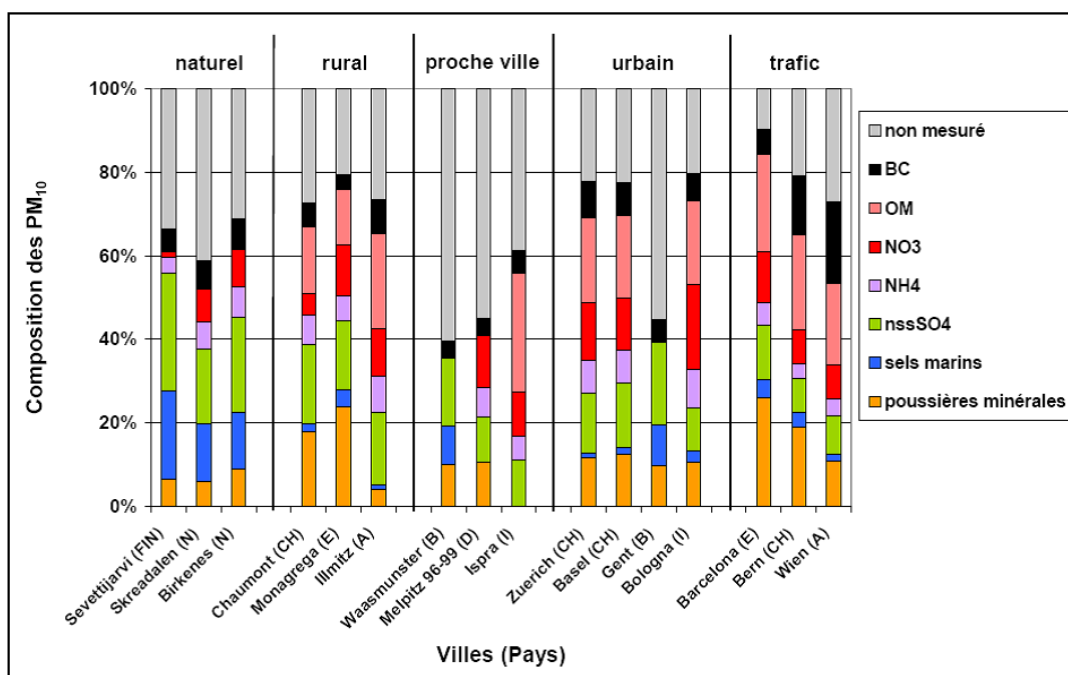
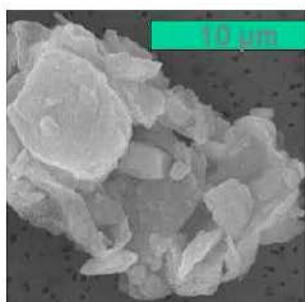


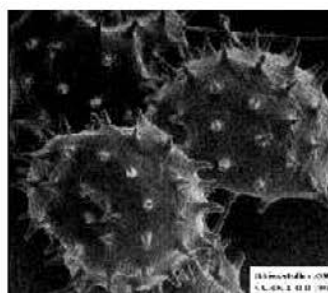
Fig. I.8—Pourcentages massiques des différents constituants des PM₁₀ déterminés pour différentes villes européennes [Putaud et al., 2004]

3.3.2 Forme et asphéricité des aérosols

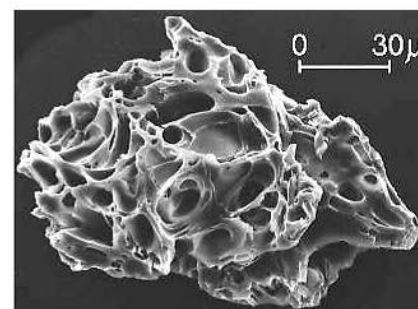
Les théories de la physique des particules sont souvent établies pour des particules considérées comme sphériques. Mais, comme le montre la Fig. I.9 selon leurs origine et le mode formation les particules peuvent avoir des formes complètement différentes et sont en général très loin d'être sphériques.



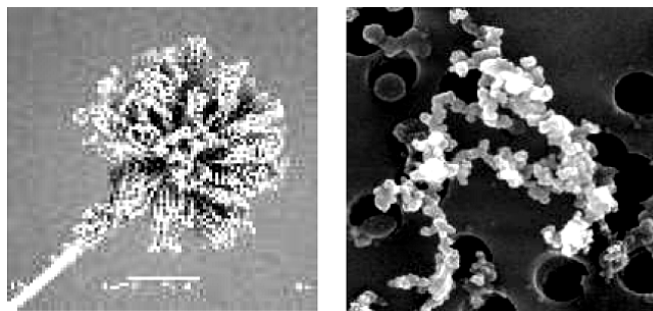
Particule désertique (source : A. Gaudichet, LISA)



Pollen d'hibiscus (source : <http://uq.edu.au/nanoworld>)



Particule de cendre émise par l'éruption du Mont St. Hélène (source : <http://volcanoes.usgs.gov>)



Moisissure de l'air intérieur (source: M. Boissier, CSTB)

Particule de suie (source: MPI for Chemistry Mainz)

Fig I.9 – Différentes formes de particules

3.3.3 Diamètre des particules

Pour définir la dimension d'une particule, on peut alors avoir recours à divers types de diamètres statistiques. On peut notamment en citer deux très couramment utilisés :

- Le diamètre de Stocks : diamètre d'une sphère ayant la même vitesse de chute et la même densité que la particule considérée.
- Le diamètre aérodynamique : diamètre d'une sphère ayant la même vitesse de chute que la particule et une masse volumique égale à $1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$.

La Fig I.10 présente schématiquement ces deux types de rayons pour une même particule [Renoux, 1998].

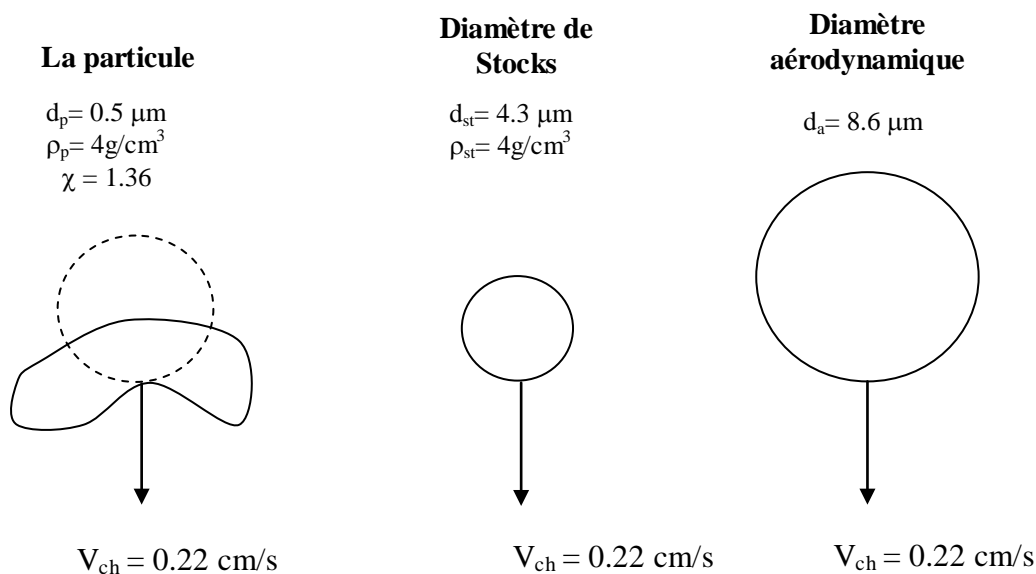


Fig I.10 – Diamètre de Stocks et aérodynamique pour une même particule

La relation entre le diamètre aérodynamique (d_a) et le diamètre de Stocks (d_{st}) est donné par la relation suivante [Seinfeld, 1998] :

$$d_a = d_{st} \left[\frac{\rho_p C_c(d_{st})}{C_c(d_a)} \right]^{1/2} \quad (I.1)$$

Avec ρ_p : masse volumique de la particule et C_c : facteur de correction de Cunningham dans le cas d'un diamètre aérodynamique ou d'un diamètre de Stocks.

Le coefficient de Cunningham peut être donné par Seinfeld [Seinfeld, 1998] :

$$C_c = 1 + \frac{2\lambda_p}{d} \left[1.257 + 0.4 \exp \left[-\frac{1.1d}{2\lambda_p} \right] \right] \quad (I.2)$$

λ_p : est le libre parcours moyen apparent.

On peut classifier les particules en fonction du diamètre aérodynamique :

- Les particules totales (PM) : l'ensemble des particules dans l'air.
- Les particules fines (PM10) : les particules de diamètre inférieur à 10 μm .
- Les particules très fines (PM2,5) : les particules de diamètre inférieur à 2,5 μm .
- Les particules ultrafines (PM1) : les particules de diamètre inférieur à 1 μm .
- Les nanoparticules (PM0.1) : les particules de diamètre inférieur à 0.1 μm qui sont considérées comme les particules les plus nocives pour la santé.

Il est à noter que PM10 comptabilisent les PM2,5, PM1 et PM0.1, tout comme celles des PM2,5 englobent les PM1 et PM0.1 et les PM1 les PM0.1.

3.3.4 Granulométrie des aérosols

Plusieurs recherches sont engagées dans le développement des modèles d'aérosols atmosphériques, afin d'en faire des caractérisations par leur composition chimique (minéraux, carbone suie et carbone organique), leur concentration et leur spectre dimensionnel. Disposer d'un tel modèle permet de prédire la pollution particulaire, les effets radiatifs direct, semi-direct et indirect et ouvre la possibilité de couplage entre différents schémas microphysiques nuageux et la composition chimique atmosphérique. La composition physico-chimique des aérosols ainsi que leurs paramètres optiques dépendent à la fois de la dynamique atmosphérique et la répartition en taille granulométrique qui est bien représentée par une distribution log-normale. Cette distribution en taille des particules est un élément important qui influe sur l'ensemble des paramètres optiques de l'aérosol. Elle dépend de la source des

aérosols, ses variations peuvent être fortes même s'il s'agit des aérosols de même type. Elle est définie par:

$$\rho(r) = \frac{dN(r)}{dr} = \sum_{i=1}^p \left(N_{tot} \cdot \frac{x_i}{r \cdot \sqrt{2\pi} \cdot \ln(\sigma_i)} \exp \left(\frac{\ln^2 \left(\frac{r}{r_{mi}} \right)}{2 \cdot \ln^2(\sigma_i)} \right) \right) \quad (I.3)$$

Elle représente la densité en nombre de particules par unité de volume d'atmosphère comprises entre les rayons r et $r+dr$

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

$$\frac{dN(r)}{d \ln(r)} = \sum_{i=1}^p \left(N_{tot} \cdot \frac{x_i}{\sqrt{2\pi} \cdot \ln(\sigma_i)} \exp \left(\frac{\ln^2 \left(\frac{r}{r_{mi}} \right)}{2 \cdot \ln^2(\sigma_i)} \right) \right) \quad (I.4)$$

Généralement on représente la granulométrie des aérosols désertiques par une superposition de trois modes log-normaux : mode de nucléation d'Aitken, le mode d'accumulation et le mode des grosses particules. Chacun de ces modes (i) est caractérisé par un rayon médian r_{mi} , un écart type σ_i et x_i leur poids relatif à la population totale.

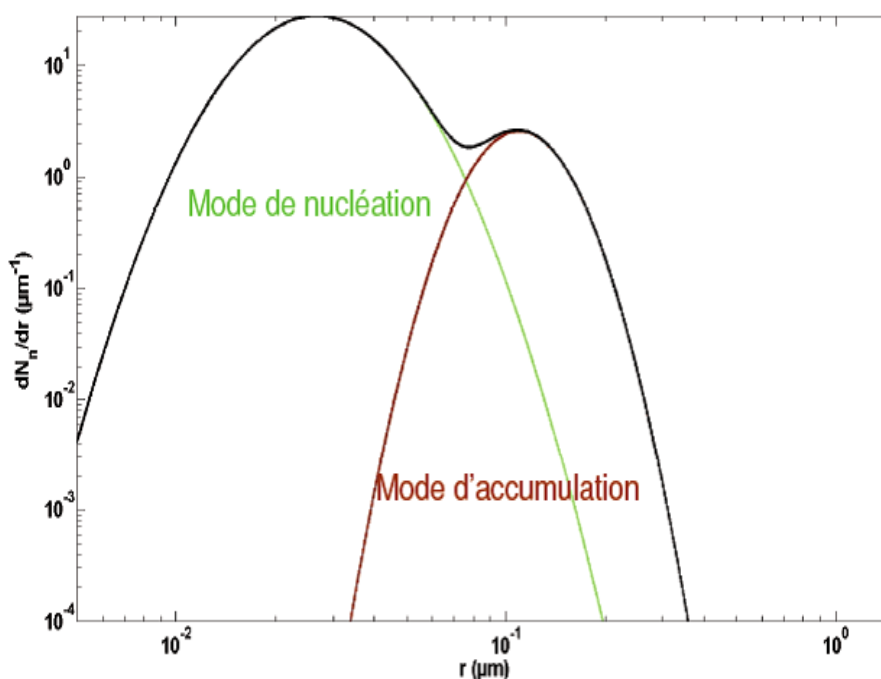


Fig I.11 – Distribution en taille des aérosols des deux principaux modes de la distribution en taille normalisée des aérosols parisiens [Chazette, 2005].

Si l'on cherche à évaluer la masse des aérosols, la distribution en volume V sera intéressante. Cette dernière s'écrit:

$$\frac{dV}{d \ln(r)} = \frac{4}{3} \pi r^3 \frac{dN}{d \ln(r)} \quad (I.5)$$

La distribution en volume est une fonction log-normale elle aussi avec le même écart-type de celui de la distribution en nombre, par contre les deux autres paramètres sont reliés comme suit :

$$r_{mi}^V = r_{mi} \exp(3 \ln^2(\sigma_i)) \quad (I.6)$$

$$x_i^V = \frac{x_i r_{mi}^3 \exp(9/2 \ln^2(\sigma_i))}{\sum_{i=1}^p (x_i r_{mi}^3 \exp(9/2 \ln^2(\sigma_i)))} \quad (I.7)$$

Pour la distribution en masse, on a la relation :

$$x_i^m = \frac{\rho_i x_i r_{mi}^3 \exp(9/2 \ln^2(\sigma_i))}{\sum_{i=1}^p (\rho_i x_i r_{mi}^3 \exp(9/2 \ln^2(\sigma_i)))} \quad (I.8)$$

Où ρ_i ($g.cm^{-3}$) est la masse volumiques des particules dans le mode (i). r_{mi}^V 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.

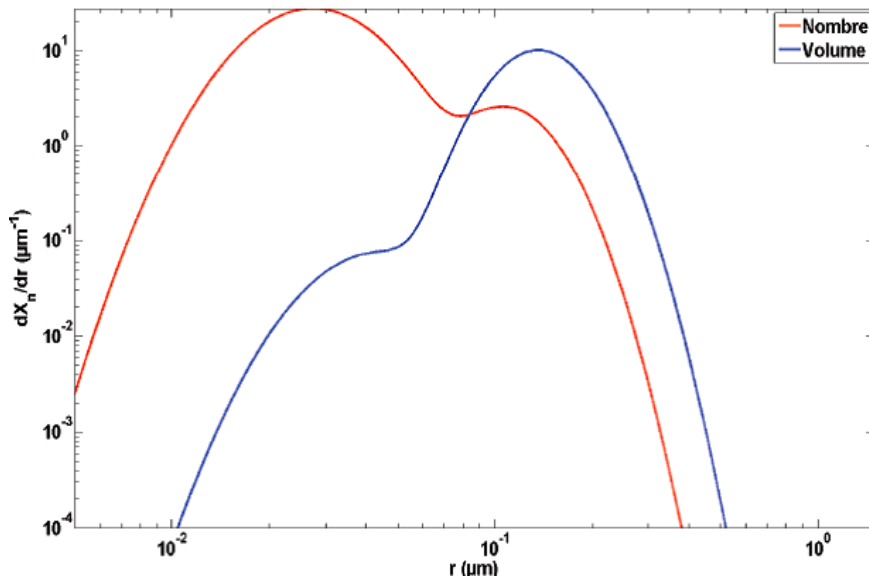


Fig I.12 – Distributions normalisées en nombre et en volume déterminées au cours de la campagne ESQUIF au-dessus de la région parisienne [Chazette, 2005].

3.3.5 Solubilité

La solubilité d'une substance particulaire dans les milieux aqueux ou les liquides présente une grande importance du point de vue biologique car elle influe sur la vitesse de résorption par l'organisme. La solubilité peut aussi conditionner le choix de la méthode d'échantillonnage et d'analyse. S'agissant de substance qui comporte un risque d'irritation ou d'intoxication générale. Leur vitesse de dissolution dans les liquides tissulaires peut avoir une influence décisive. En revanche, cet aspect perd de son importance dans le cas des particules vibrogène, lesquelles agissent directement au niveau des espaces pulmonaires ; c'est ainsi que le quartz, normalement considéré comme un soluble, est extrêmement nocif.

3.4. Les effets des aérosols

3.4.1. Effets sur la santé

Le danger des aérosols atmosphériques sur la santé humaine dépend de leurs compositions physico-chimiques :

- *La taille de particules*

Les grosses particules (diamètre $> 10\mu\text{m}$), principalement d'origine naturelle, n'ont qu'un faible impact sur la santé : elles se déposent très rapidement sur le sol ou elles sont arrêtées au niveau du nez ou avalées. L'évaluation de leurs émissions et de leur concentration paraît moins utile pour la protection de la santé [MIRA, 2007].

Les particules fines (PM_{10}) et très fines ($\text{PM}_{2,5}$) pénètrent, quant à elles, plus ou moins profondément dans le système respiratoire selon leur taille. Les particules de la fraction inférieures à $2,5 \mu\text{m}$ peuvent pénétrer plus profondément et les plus petites peuvent être acheminées jusque dans les alvéoles pulmonaires, où il y a passage de substances toxiques voire dangereuses vers la circulation sanguine. Les fractions thoracique ($<\text{PM}_{2,5}$) et alvéolaire ($<\text{PM}_1$) des particules sont responsables de l'irritation des voies respiratoires, de l'altération de la fonction respiratoire surtout chez l'enfant et les personnes âgées, de l'augmentation de la fréquence et de l'intensité des crises d'asthmes chez des sujets asthmatiques, de problèmes cardio-vasculaires, d'une augmentation de décès prématurés, d'une diminution de l'espérance de vie.

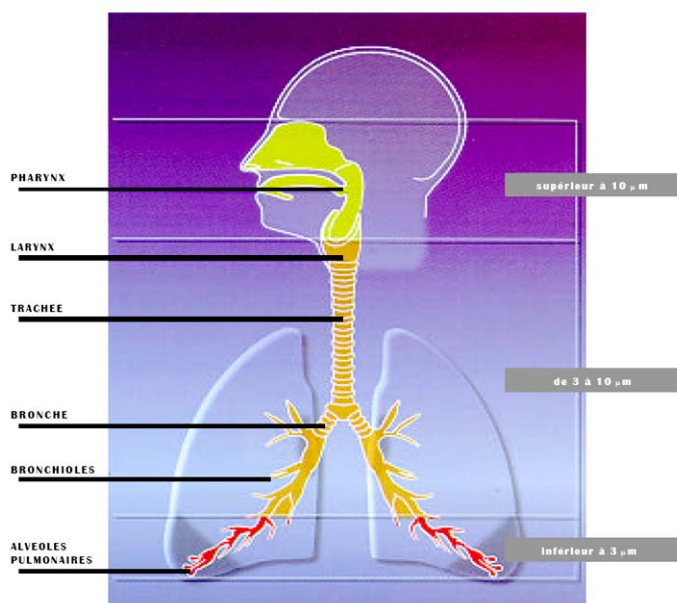


Fig I.13 – Appareil respiratoire et pénétration des particules [CITEPA, 2001]

- ***La composition chimique***

Le danger pour la santé dépend également de la nature chimique et de l'éventuelle association à d'autres polluants (métaux lourds, HPAs) [Ghio et al., 1999]. En raison de leur caractère potentiellement mutagène et/ou cancérigène, les suies, HPA et particules contenant du carbone dans la fraction des fines particules présentent certainement un plus grand risque que les particules d'argile et de sable qui appartiennent à la classe 2,5 à 10 µm.

- ***Solubilité***

La solubilité d'une substance particulaire dans les milieux aqueux ou les liquides présente une grande importance du point de vue biologique car elle influe sur la vitesse de résorption par l'organisme. La solubilité peut aussi conditionner le choix de la méthode d'échantillonnage et d'analyse. S'agissant de substance qui comporte un risque d'irritation ou d'intoxication générale. Leur vitesse de dissolution dans les liquides tissulaires peut avoir une influence décisive. En revanche, cet aspect perd de son importance dans le cas des particules fibrogène, lesquelles agissent directement au niveau des espaces pulmonaires ; c'est ainsi que le quartz, normalement considéré comme un soluble, est extrêmement nocif.

- ***Radioactivité***

L'être humain peut être exposé à des substances radioactives présentes dans l'atmosphère sur de nombreux lieux de travail, par exemple dans l'extraction de minerais radioactifs ou de

minerais contaminés par des produits radioactifs (c'est le cas dans les mines de phosphate), dans l'industrie atomique et dans les laboratoires où l'on manipule des produits radioactifs. Certains problèmes propres aux substances radioactives ont été définis et l'on a mis au point des techniques particulières pour obtenir des échantillons représentatifs.

3.4.2 Effets sur le climat

- *Les effets directs*

Les particules interagissent avec l'énergie solaire incidente et le rayonnement terrestre. Elles captent l'énergie radiative, puis la diffusent ou bien l'absorbent (Fig. I.14). Les aérosols diffusants ont un effet refroidissant, tandis que les aérosols absorbants convertissent l'énergie en chaleur et augmentent sensiblement la température de l'air.

- *Les effets semi-directs*

Les aérosols absorbants, en ayant un effet sur les profils de température dans l'atmosphère, ont un impact sur les conditions de formation des nuages. L'augmentation de température peut entraîner leur disparition par évaporation ou modifier leur extension géographique.

- *Les effets indirects*

Les aérosols peuvent interagir directement avec les nuages, qui ont eux-mêmes un fort impact radiatif sur le bilan énergétique terrestre. Lorsque des nuages se forment, les aérosols servent de noyaux de condensation. A contenu en eau fixe, un nuage issu d'une masse d'air fortement chargée en aérosols comporte un nombre de gouttelettes plus important qu'un nuage issu d'une masse d'air faiblement chargée en aérosols. De ce fait, le nuage a un fort pouvoir réfléchissant (effet de refroidissement).

Les aérosols ont un second effet indirect : les gouttelettes qui forment le nuage, en général plus petites, n'atteignent pas la taille critique au-delà de laquelle se déclenchent les précipitations. La durée de vie du nuage se trouve donc augmentée; la couverture nuageuse moyenne de la terre est également plus importante. Cette présence accrue de nuages a un impact refroidissant ou réchauffant selon leur altitude.

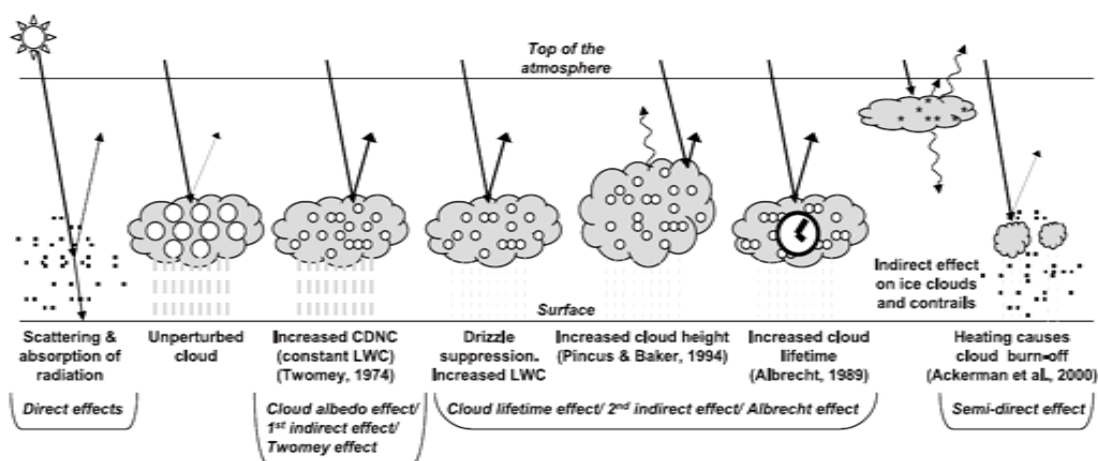


Fig I.14–Représentation de différents mécanismes radiatifs associés aux effets des nuages en liaison avec les d’aérosols [Haywood and Boucher, 2000]

Les effets sur le bilan radiatif se mesurent par le forçage radiatif. Celui-ci est défini comme étant la variation moyenne du flux radiatif net (solaire et infra rouge terrestre) à la tropopause, associé notamment à la variation du contenu atmosphérique de gaz ou d’aérosols actifs vis-à-vis du rayonnement. Il s’exprime en Watts par mètre carré. Un forçage radiatif positif correspond à un réchauffement de l’atmosphère, tandis qu’un forçage négatif correspond à un refroidissement.

La Fig. I.15 montre les dernières estimations des différents forçages radiatifs du système terrestre estimés par le nouveau rapport IPCC 2007.

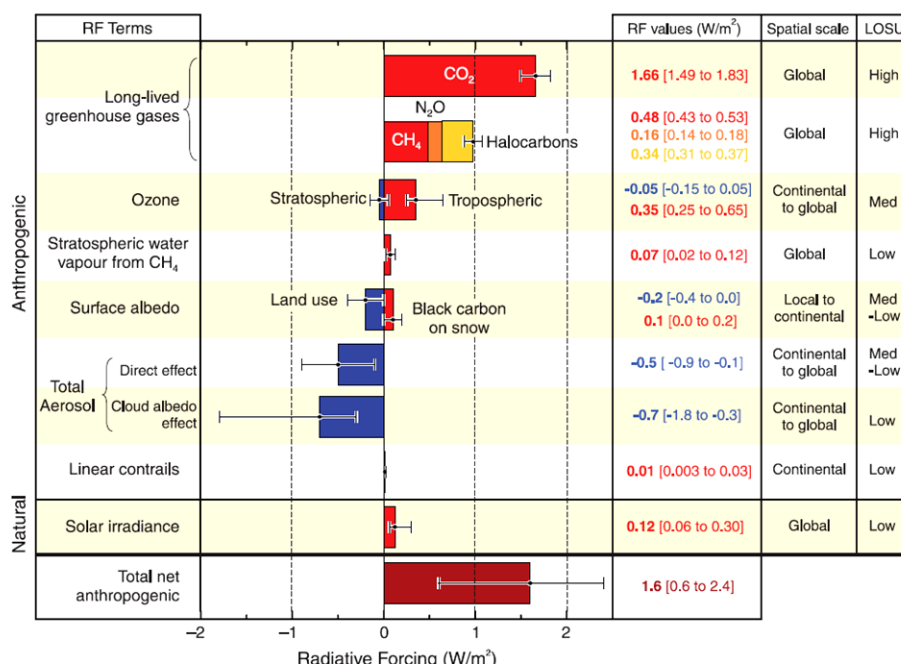


Fig I.15–Forçage radiatif moyen global du système climatique exercé par les gaz à effet de serre et par l’aérosol atmosphérique [IPCC 2007].

3.4.3 Effets sur l'environnement

En milieu urbain, les dépositions de particules dégradent le patrimoine immobilier, dont le patrimoine architectural historique, en causant altération et dégâts esthétiques qui entraînent des frais de nettoyage et d'entretiens considérables. Il est cependant difficile de chiffrer les dégâts dus aux particules étant donné que celles-ci sont généralement associées à des nuisances par d'autres polluants : SO_2 , pluie acide (Mira, 2007).

Les particules fines peuvent être absorbées par les plantes ou se déposer sur le sol. Leur degré de toxicité dépend de leur composition chimique et de leur éventuelle association à d'autres polluants (métaux lourds, HPA, ...). Ces particules peuvent par conséquent porter atteinte à la biosphère, directement ou via la chaîne alimentaire qui est liée aux organismes pollués.

4. Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons discuté de plusieurs aspects concernant la dispersion des polluants dans l'atmosphère. D'une part, nous avons parlé du problème de pollution atmosphérique. Celui-ci est dû aux différents types de polluants émis des sources naturelles et anthropiques ayant des effets néfastes sur l'être humain et son environnement. Pour contrer ces problèmes plusieurs organisations ont imposé des contrôles et des normes standards, mais plusieurs de ces problèmes subsistent encore.

Chapitre 2

Interaction de rayonnement électromagnétique avec la matière

1. Introduction

Décrire le phénomène de diffusion de la lumière par un objet corpusculaire de taille, de forme et d'indice quelconques, nécessite une connaissance préalable des réactions physiques et optiques que la lumière va interagir. Les principes de l'électromagnétisme qui apparaissent au XIX^{ème} siècle, a permis le traitement classique des cas de l'interaction les plus simples, comme celui des particules sphériques ou de taille très différente de la longueur d'onde incidente. Cependant, l'arrivée des lasers qui produisent des impulsions brèves et intenses ainsi que des techniques permettant l'étude d'une particule isolée [Ashkin, 1970], a remis le domaine à l'honneur depuis les années 1980. En effet, l'étude de l'interaction a pris un tour plus approfondi en abordant des problèmes beaucoup plus complexes, en particulier des particules non sphériques ou des effets transitoires, et de réaliser des expériences nouvelles impliquant de forts flux lumineux et des temps de pompage très brefs.

Dans ce chapitre nous allons décrire les principaux mécanismes de diffusion de la lumière par des particules atmosphériques quelconques en utilisant plusieurs théories selon leur taille, forme et composition chimique. Mais on va s'intéresser notamment aux deux principales théories de diffusion, Rayleigh et Mie qui sont à l'œuvre dans la formation du signal Lidar (ce dernier fera l'objet de troisième chapitre), la première s'opère à partir des molécules de gaz et la seconde à partir des particules (poussières aérosols...) en suspension dans l'atmosphère.

2. Théorie électromagnétique

2.1. Définition d'une onde électromagnétique plane

Une onde électromagnétique plane est l'association d'un champ électrique \vec{E} et d'un champ magnétique \vec{B} . Les deux champs (électrique et magnétique) oscillent perpendiculairement dans le même plan perpendiculaire à la direction de propagation \vec{z} . On définit la longueur d'onde dans le vide λ à l'aide de la fréquence d'oscillation ω ($rad.s^{-1}$) par la relation $\lambda=2\pi c/\omega$ où $c = 3.10^{-8} m.s^{-1}$ correspond à la célérité de la lumière dans le vide. Equ. II.1 donne les

expressions du champ électrique et du champ magnétique en fonction de la fréquence d'oscillation ω et du nombre d'onde $\vec{k} = 2\pi/\lambda$

$$\begin{pmatrix} \vec{E} = \vec{E}_0 e^{i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{z})} \\ \vec{B} = \vec{B}_0 e^{i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{z})} \end{pmatrix} \quad (II.1)$$

Où \vec{E}_0 et \vec{B}_0 correspondent aux amplitudes maximales respectivement des champs électrique et magnétique respectivement.

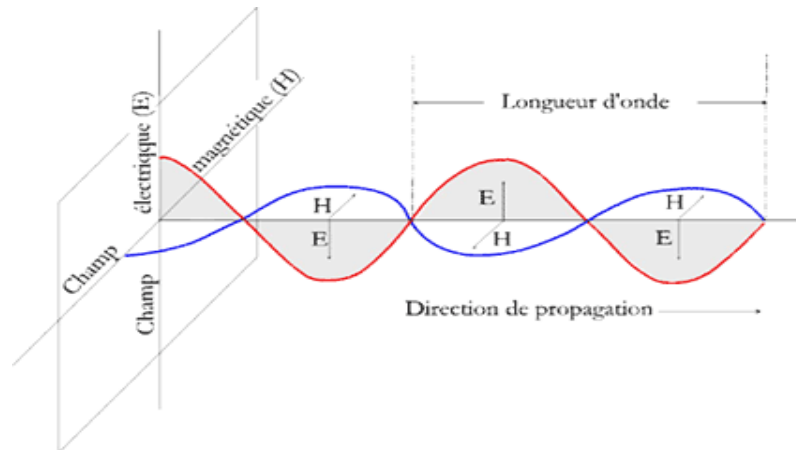


Fig. II.1 – Onde électromagnétique avec une polarisation linéaire rectiligne.

2.2. Polarisation d'une onde électromagnétique

La polarisation de la lumière se définit comme étant le positionnement du champ électrique dans le plan perpendiculaire à la direction de propagation. La Fig. II.1 représente la propagation d'une onde électromagnétique plane avec une polarisation linéaire verticale.

Une onde électromagnétique plane monochromatique de longueur d'onde λ se propageant vers l'observateur dans la direction portée par le vecteur \hat{e}_z , tel que $\hat{e}_x \wedge \hat{e}_y = \hat{e}_z$ (Fig. II.2), solution générale des équations de Maxwell, est polarisée elliptiquement.

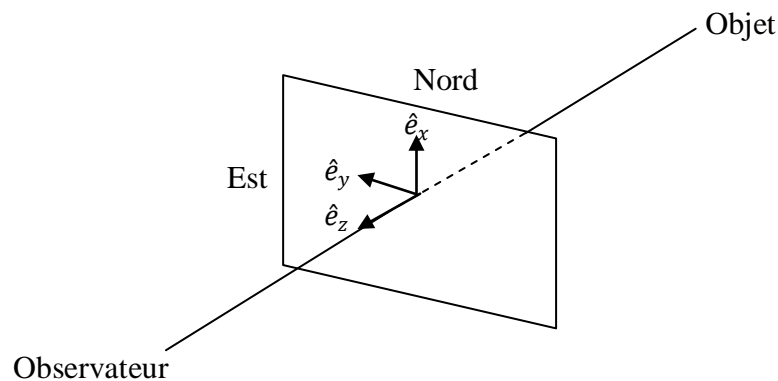


Fig. II.2 – Représentation de propagation d'une onde électromagnétique dans un repère orthonormé (\hat{e}_x, \hat{e}_y)

Le champ électrique \vec{E} perpendiculaire à la direction de propagation, est décrit par :

$$E = \text{Re}(E_x \hat{e}_x + E_y \hat{e}_y) \quad (II.2)$$

E_x et E_y sont les fonctions d'ondes complexes selon \hat{e}_x et \hat{e}_y telles que :

$$\begin{aligned} E_x &= a_x e^{i(\omega t - kz + \delta_x)} \\ E_y &= a_y e^{i(\omega t - kz + \delta_y)} \end{aligned} \quad (II.3)$$

Où a_x et a_y sont les amplitudes respectivement de E_x et E_y , z la position le long de l'axe de propagation, $\omega = 2\pi\nu$ la fréquence angulaire, $k = 2\pi/\lambda$ le nombre d'onde et δ_x et δ_y les déphasages respectivement de E_x par rapport à E_y .

On peut écrire :

$$\frac{E_x}{a_x} = \cos(\omega t - kz + \delta_x) \quad (II.4)$$

$$\frac{E_y}{a_y} = \cos(\omega t - kz + \delta_x) \cos \delta - \sin(\omega t - kz + \delta_x) \sin \delta \quad (II.5)$$

$$\text{Avec : } \delta = \delta_y - \delta_x \quad (II.6)$$

En éliminant la variable temporelle t , on peut montrer que l'extrémité du vecteur champ électrique décrit une ellipse dont l'équation est la suivante :

$$\left(\frac{E_x}{a_x}\right)^2 + \left(\frac{E_y}{a_y}\right)^2 - 2 \frac{E_x E_y}{a_x a_y} \cos \delta = \sin^2 \delta \quad (II.7)$$

C'est l'équation d'une ellipse et dans ce cas l'onde est dite polarisée elliptiquement.

Pour déterminer les différents points de contact de l'ellipse avec la circonférence rectangulaire, il va falloir résoudre Equ. II.7 et pour cela on fait le réarrangement suivant:

$$a_x^2 E_y^2 - (2a_x a_y E_x \cos \delta) E_y + a_y^2 (E_x^2 - a_x^2 \sin^2 \delta) = 0 \quad (II.8)$$

Considérons maintenant les cas suivants :

1. Les phases de \underline{E}_x et \underline{E}_y diffèrent par un multiple de π : $\underline{E}_x = a_x e^{i\delta}$ et $\underline{E}_y = \pm a_y e^{i\delta}$.

Dans ce cas, les composantes de E dans le plan perpendiculaire à k sont :

$$\begin{aligned} E_x &= a_x \cos(\omega t - kz + \delta) \\ E_y &= \pm a_y \cos(\omega t - kz + \delta) \end{aligned} \quad (II.9)$$

La direction du champ est constante dans le temps, car le rapport E_x/E_y est toujours le même. On qualifie cette polarisation de linéaire.

2. Les phases de \underline{E}_x et \underline{E}_y diffèrent par un multiple impair de $\pi/2$: $\underline{E}_x = a_x e^{i\delta}$ et $\underline{E}_y = \pm i a_y e^{i\delta}$

$$\begin{aligned} E_x &= a_x \cos(\omega t - kz + \delta) \\ E_y &= \pm a_y \sin(\omega t - kz + \delta) \end{aligned} \quad (II.10)$$

- Si $a_x = a_y$, alors le champ \vec{E} trace en fonction du temps, un cercle dans le plan perpendiculaire à z . On parle alors de polarisation circulaire. Si le champ tourne dans le sens antihoraire pour un observateur qui voit l'onde se diriger vers lui (signe $-$), on dit que la polarisation est lévogyre (ou sénestogyre, ou de polarisation circulaire gauche). Dans le cas contraire (signe $+$), elle est dextrogyre (ou de polarisation circulaire droite). On montre qu'une onde lévogyre possède un moment cinétique dans la direction du vecteur d'onde. On dit alors qu'elle possède une hélicité positive. Dans le cas contraire (onde dextrogyre), l'hélicité est négative.

- Si $a_x \neq a_y$ le champ électrique trace une ellipse, dont les axes principaux sont parallèles à \hat{e}_x et \hat{e}_y . On dit alors que la polarisation est elliptique.

3. Les phases de \underline{E}_x et \underline{E}_y sont quelconques. Dans ce cas, on montre que le champ \vec{E} trace une ellipse dans le plan perpendiculaire à z , mais les axes principaux de cette ellipse sont différents de \hat{e}_x et \hat{e}_y . Une rotation des vecteurs \hat{e}_x et \hat{e}_y (c'est-à-dire un choix différent des vecteurs de base) nous ramènerait au cas précédent avec ($a_x \neq a_y$). La polarisation est elliptique. L'angle que fait l'un des axes principaux de l'ellipse avec l'axe des x est tel que :

$$\tan(2\psi) = 2 \frac{|\underline{E}_x \underline{E}_y|}{a_x^2 a_y^2} \cos(\delta_x - \delta_y) \quad (II.11)$$

Où on pose $\underline{E}_x = a_x e^{i\delta_x}$ et $\underline{E}_y = a_y e^{i\delta_y}$. De plus, les demi-axes principaux a et b de cette ellipse sont tels que :

$$a^2 + b^2 = a_x^2 + a_y^2 \quad (II.12)$$

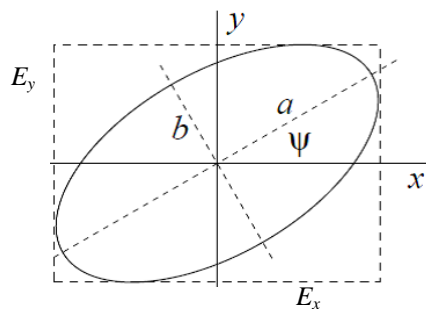


Fig. II.3 – Tracé du champ électrique sur le plan xy dans le cas général d'une polarisation elliptique.

2.3 Paramètres de Stokes

Nous pouvons même représenter les paramètres de Stokes en fonction des amplitudes complexes à la place des amplitudes maximales comme suit:

$$\underline{E}_x = a_x \exp(i\delta_x) \quad (II.13)$$

$$\underline{E}_y = a_y \exp(i\delta_y) \quad (II.14)$$

On aura donc le système d'équation suivant:

$$\begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \underline{E}_x \underline{E}_x^* + \underline{E}_y \underline{E}_y^* \\ \underline{E}_x \underline{E}_x^* - \underline{E}_y \underline{E}_y^* \\ \underline{E}_x \underline{E}_y^* + \underline{E}_y \underline{E}_x^* \\ i(\underline{E}_x \underline{E}_y^* - \underline{E}_y \underline{E}_x^*) \end{pmatrix} \quad (II.15)$$

Ces quatre paramètres introduits par le physicien irlandais Sir Georges G. Stokes [Stokes, 1852] permettent de décrire complètement l'état de polarisation d'une onde électromagnétique.

Dans le cas de lumière non polarisée Q , U et V sont nuls. Lorsque la lumière est complètement polarisée :

$$I^2 = Q^2 + U^2 + V^2 \quad (II.16)$$

I , Q , U et V s'appellent les paramètres de Stokes qui décrivent l'état de polarisation des ondes électromagnétiques, le premier paramètre I représente l'intensité totale de la lumière, le deuxième paramètre Q décrit la polarisation linéaire verticale ou horizontale, le troisième paramètre U caractérise la polarisation linéaire à 45° ou -45° , le dernier paramètre caractérise la polarisation circulaire gauche ou droite contenue dans la lumière. Notons que les quatre paramètres de Stokes sont exprimés en termes d'intensité et nous soulignons encore que ce sont quantités réelles.

Où E^* représente le nombre complexe conjugué.

La lumière naturelle est le plus souvent partiellement polarisée. Une radiation partiellement polarisée peut être considérée comme la somme de deux composantes, l'une étant complètement polarisée et l'autre étant non polarisée. Ceci permet de formuler une définition plus rigoureuse des paramètres de Stokes en prenant une moyenne temporelle des quatre paramètres :

$$\begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \langle \underline{E}_x \underline{E}_x^* + \underline{E}_y \underline{E}_y^* \rangle \\ \langle \underline{E}_x \underline{E}_x^* - \underline{E}_y \underline{E}_y^* \rangle \\ \langle \underline{E}_x \underline{E}_y^* + \underline{E}_y \underline{E}_x^* \rangle \\ \langle i(\underline{E}_x \underline{E}_y^* - \underline{E}_y \underline{E}_x^*) \rangle \end{pmatrix} \quad (II.17)$$

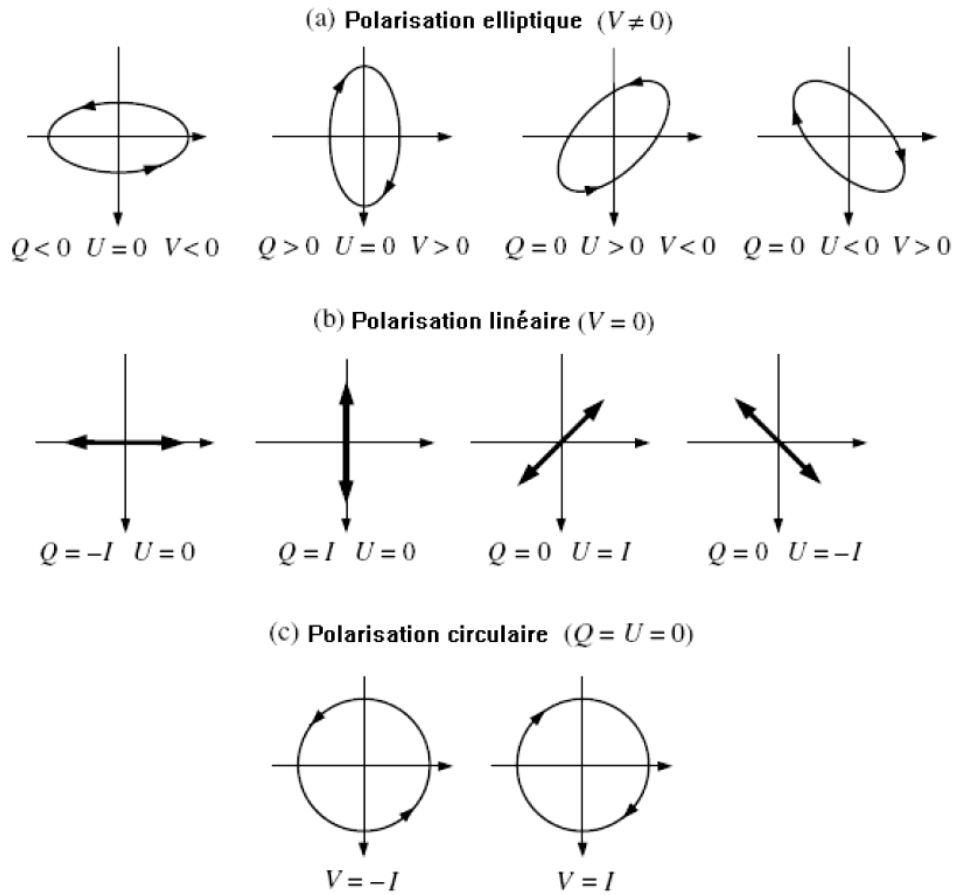


Fig. II.4 – Les états de polarisation usuels de la lumière

En outre, ces paramètres jouissent de l'importante propriété d'additivité, principalement utilisée lorsque nous avons affaire à une superposition de plusieurs millions d'ondes planes avec des phases différentes, [Hulst V D, 1981].

$$I = \sum I_i ; Q = \sum Q_i ; U = \sum U_i ; V = \sum V_i \quad (II.18)$$

Où i , signifie chaque onde plane indépendante. Si nous avons maintenant une lumière partiellement polarisée. Les relations données par Equ. II.18 continuent à être valides pour des intervalles de temps très courts. Les amplitudes et les phases fluctuent lentement, et ou dans ce cas nous pouvons utiliser l'inégalité de Schwarz qui montre que quelque soit l'état de polarisation de la lumière les paramètres de Stokes satisfont toujours la relation suivante:

$$0 < Q^2 + U^2 + V^2 < I^2 \quad (II.19)$$

L'égalité s'applique à une lumière complètement polarisée et l'inégalité concerne le cas d'une lumière partiellement polarisée ou carrément dépolarisée.

A cet égard, nous devons définir un degré de polarisation susceptible de caractériser l'état de polarisation de chaque lumière, pour se faire on donne la relation:

$$P = \frac{(Q^2 + U^2 + V^2)^{1/2}}{I} \quad (II.20)$$

Avec : $0 \leq P \leq 1$

Le premier paramètre I est un nombre positif qui mesure l'intensité totale. Les trois autres paramètres qui peuvent être positifs ou négatifs décrivent l'état de polarisation de la radiation.

$P=1$ correspond à une lumière complètement polarisée

$P=0$ correspond à une lumière dépolarisée

$0 < P < 1$ correspond à une lumière partiellement polarisée.

La signification de chaque paramètre apparaît plus clairement en combinant les Equ. II.3, et Equ. II.6 (les moyennes temporelles sont sous entendues) :

$$\begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} a_x^2 + a_y^2 \\ a_x^2 - a_y^2 \\ 2a_x a_y \cos \delta \\ 2a_x a_y \sin \delta \end{pmatrix} \quad (II.21)$$

Les paramètres de Stokes peuvent être écrits de manière équivalente en fonction de :

$$a^2 = a_x^2 + a_y^2 \quad (II.22)$$

Et des angles β et θ (Fig. II.5) qui décrivent géométriquement l'ellipse parcourue par l'extrémité du vecteur \vec{E} [Hulst. V. D, 1981] :

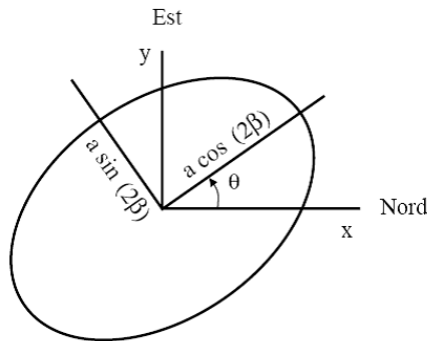


Fig. II.5 – Paramètres décrivant une onde simple polarisée elliptiquement.

$$\begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} a^2 \\ a^2 \cos 2\beta \cos 2\theta \\ a^2 \cos 2\beta \sin 2\theta \\ a^2 \sin 2\beta \end{pmatrix} \quad (II.23)$$

Dans le cas où δ est nul (E_x et E_y sont en phase), V sera nulle (Equ. II.24). La lumière est alors polarisée rectilignement. Dans la représentation donnée dans Equ. II.23 et la Fig. II.5 c'est le cas où $\sin 2\beta = 0$

Equ. II.23 se simplifie donc :

$$\begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} a^2 \\ a^2 \cos 2\theta \\ a^2 \sin 2\theta \end{pmatrix} \quad (II.24)$$

On utilise souvent les paramètres de Stokes normalisés à l'intensité totale q et u : $q = Q/I$ et $u = U/I$.

On définit alors le degré de polarisation linéaire par :

$$P_{lin} = \sqrt{q^2 + u^2} \quad (II.25)$$

Par la suite P sans l'indice est employé pour le degré de polarisation linéaire. L'angle de polarisation est défini comme l'angle du vecteur \vec{E} compté positivement du nord vers l'est :

$$\theta = \frac{1}{2} \arctan \frac{u}{q} \quad (II.26)$$

3. Diffusion de la lumière par une particule

3.1. Introduction

La diffusion d'une onde électromagnétique par une particule [Bohren C. F, 1983], dépend de plusieurs paramètres : la longueur d'onde λ , de l'état de polarisation de l'onde, des propriétés de la particule dispersante (à savoir le rayon de la particule r ou paramètre de taille $\chi = 2\pi r/\lambda$, l'indice de réfraction de la particule m) et des propriétés optiques du milieu environnant (indice de réfraction du milieu environnant m_{ext}).

Pour un faible nombre de diffuseurs, la majeure partie de la lumière incidente traverse le milieu sans subir de diffusion. Pour une forte extinction du faisceau incident (régime de diffusion multiple), la lumière diffusée par une particule constitue une source secondaire pour les particules voisines.

Dans le cas d'une particule, les ondes diffusées par les différentes régions du matériau interfèrent les unes avec les autres. L'interaction d'une onde incidente avec une particule sphérique, homogène, isotrope et non-magnétique de diamètre r dans un milieu non-absorbant est décrite par les équations de Maxwell.

Seule la résolution des équations de Maxwell permet alors de déterminer l'intensité diffusée par la particule sous toutes les directions. Gustav Mie [Mie G, 1908] est le premier à avoir

résolu le problème pour des sphères diélectriques homogènes et obtenu une solution analytique pour une particule sphérique de taille arbitraire.

La théorie de Mie est à la base de nombreuses technologies utilisant la diffusion simple de la lumière pour la caractérisation de milieux hétérogènes optiquement minces. Dans ce qui suit, nous présenterons la théorie de Mie puis diverses approximations pour rendre compte de la diffusion par une particule de petite ou grande dimension par rapport à la longueur d'onde de la source lumineuse incidente.

3.2 Diffusion de la lumière par une particule quelconque

3.2.1 La diffusion de Rayleigh

La théorie de Rayleigh [Rayleigh, 1871] décrit la diffusion de la lumière par des particules de dimension très petite devant la longueur d'onde de la lumière incidente ($r < \lambda/10$). Dans ce cas, le champ électrique incident illuminant une particule peut être considéré comme uniforme dans le diffuseur et l'intensité de la lumière diffusée est alors proportionnelle au carré du volume de la particule.

En effet, lorsque la particule est soumise à une onde plane monochromatique de longueur d'onde λ , elle va produire un contre-champ ou champ induit $P = \varepsilon E$, qui engendre à son tour la création d'un moment dipolaire au sein de la particule. Cette dernière va alors rayonner (Fig.II.6), comme un dipôle de moment : $p = \varepsilon \alpha E_0$

Où α est la polarisabilité de la particule, avec pour une sphère:

$$\alpha = 3V \frac{\varepsilon - \varepsilon_{ext}}{\varepsilon + 2\varepsilon_{ext}}, \quad V = \frac{4}{3} \pi r^3 \quad (II.27)$$

V : est le volume de la particule

Pour une particule non absorbante placée dans l'air, avec $\mu = \mu_0$ et en rappelant que $m = \sqrt{\varepsilon\mu}$, on obtient également que :

$$\alpha = 3V \frac{m^2 - 1}{m^2 + 1} \quad (II.28)$$

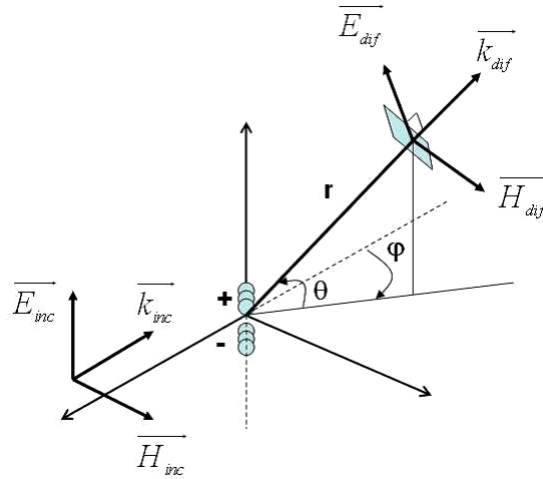


Fig.II.6– Diffusion par un dipôle soumis à une onde électromagnétique incidente

En résolvant le problème du dipôle statique, on obtient les intensités diffusées pour une lumière polarisée à une distance R :

$$\begin{pmatrix} I_{\parallel s} \\ I_{\perp s} \end{pmatrix} = \frac{k^4 \alpha^2}{2R^2} \begin{pmatrix} \cos^2 \theta & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I_{\parallel i} \\ I_{\perp i} \end{pmatrix} = \frac{16 \pi^4 r^6}{\lambda^4 R^2} \left| \frac{m^2 - 1}{m^2 + 1} \right| \begin{pmatrix} \cos^2 \theta & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I_{\parallel i} \\ I_{\perp i} \end{pmatrix} \quad (II.29)$$

Pour une lumière incidente non polarisée :

$$I_{non_pol}(\theta) = \frac{1}{2} (I_{\parallel s} + I_{\perp s}) = \frac{k^4 \alpha^2}{2R^2} (1 + \cos^2 \theta) I_i = \frac{8 \pi^4 r^6}{\lambda^4 R^2} \left| \frac{m^2 - 1}{m^2 + 1} \right| \cdot (1 + \cos^2 \theta) I_i \quad (II.30)$$

La Fig. II.7 représente une distribution angulaire de l'intensité diffusée à une distance R pour une lumière incidente polarisée en non polarisée :

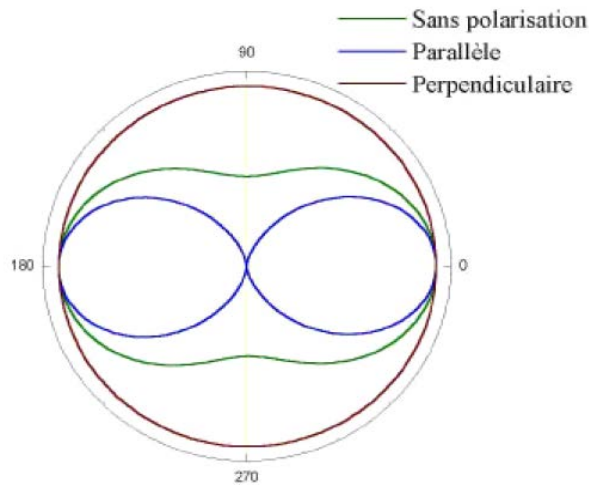


Fig.II.7– Distribution angulaire normalisée de la diffusion Rayleigh pour des polarisations incidentes parallèle ou perpendiculaire ainsi que pour une lumière incidente non polarisée

Il est intéressant de connaître les expressions les sections efficaces d'absorption, de diffusion, et de rétrodiffusion :

$$\sigma_{abs}^{molec} = \frac{8\pi^2 r^3}{\lambda} \operatorname{Im} \left(\frac{m^2 - 1}{m^2 + 1} \right) \quad (II.31)$$

$$\sigma_s^{molec} = \frac{128 \pi^5 r^6}{3 \lambda^4} \left| \frac{m^2 - 1}{m^2 + 1} \right|^2 \quad (II.32)$$

$$\sigma_{back}^{molec} = \frac{16 \pi^4 r^6}{\lambda^4} \left| \frac{m^2 - 1}{m^2 + 1} \right|^2 \quad (II.33)$$

Remarques importantes

1. La composante perpendiculaire est isotrope. La composante parallèle est anisotrope, elle s'annule pour un angle de diffusion de $\theta = 90^\circ$.
2. L'intensité diffusée est proportionnelle à $k^4 = (2\pi/\lambda)^4 \propto \lambda^{-4}$, les petites particules, les molécules, diffusent donc beaucoup plus les courtes longueurs d'onde (bleu) que les longueurs d'onde importantes (rouge). Rayleigh a été le premier à expliquer l'origine de la couleur bleue du ciel.

3.2.2 Théorie de Lorenz-Mie

3.2.2.1 Equation d'onde et la méthode de séparation des variables

Cette théorie [Mie, 1908] traite le problème de la diffusion d'une onde électromagnétique plane harmonique par une particule sphérique homogène, d'indice de réfraction m , isotrope, à matériau linéaire, en résolvant les équations de Maxwell.

On sait que dans ce cas, pour être solution des équations de Maxwell, une onde doit satisfaire aux deux équations d'onde suivantes :

$$\begin{cases} \nabla^2 E + m^2 k^2 E = 0 \\ \nabla^2 H + m^2 k^2 H = 0 \end{cases} \quad (II.34)$$

On définit le potentiel scalaire Ψ qui satisfait l'équation d'onde scalaire Equ. II.34, ce qui donnera l'expression [Stratton, J. A, 1941] :

$$\nabla^2 \Psi + m^2 k^2 \Psi = 0 \quad (II.35)$$

On définit également les deux vecteurs harmoniques M_ψ et N_ψ en coordonnées sphériques en fonction du potentiel scalaire Ψ et que chacun d'eux satisfait l'équation d'onde vectorielle et possède une divergence nulle :

$$M_\psi = \nabla \times (r\Psi), \quad N_\psi = \nabla \times M_\psi/k \quad (II.36)$$

Donc les deux vecteurs harmoniques M et N ont une divergence nulle, le rotationnel de M est proportionnel à N , le rotationnel de N est proportionnel à M . donc ils ont des propriétés indispensables pour mieux représenter le champ électromagnétique. La difficulté de résoudre l'équation d'onde vectorielle se réduit à la résolution d'une simple équation scalaire.

Nous appellerons la fonction scalaire la génération des vecteurs harmonique M et N [Bohren, C. F., and Huffman, D. R, 1998].

Supposons que u et v sont des solutions indépendantes de l'équation d'onde scalaire définie par Equ. II.35, les champs électrique et magnétique peuvent s'exprimer en M et N comme suit:

$$\begin{aligned} E &= M_v + iN_u \\ H &= m(M_v - iN_u) \end{aligned} \quad (II.37)$$

En remplaçant les vecteurs M_ψ et N_ψ dans Equ. II.37, donc E et H peuvent être écrits explicitement comme suit :

$$\begin{aligned} E &= \frac{i}{mk} \left[\frac{\partial(ru)}{\partial r^2} + m^2 k^2 (ru) \right] u_r + \left[\frac{1}{r \sin \theta} \frac{\partial(rv)}{\partial \phi} + \frac{i}{mkr} \frac{\partial^2(ru)}{\partial r \partial \theta} \right] u_\theta + \\ &\quad \left[-\frac{1}{r} \frac{\partial(rv)}{\partial \theta} + \frac{1}{mkr \sin \theta} \frac{\partial^2(ru)}{\partial r \partial \theta} \right] u_\phi \end{aligned} \quad (II.38)$$

$$\begin{aligned} H &= \frac{i}{k} \left[\frac{\partial^2(rv)}{\partial r^2} + m^2 k^2 (rv) \right] u_r + \left[-\frac{m}{r \sin \theta} \frac{\partial(ru)}{\partial \phi} + \frac{i}{kr} \frac{\partial^2(ru)}{\partial r \partial \theta} \right] u_\theta + \\ &\quad \left[-\frac{m}{r} \frac{\partial(ru)}{\partial \theta} + \frac{1}{mkr \sin \theta} \frac{\partial^2(rv)}{\partial r \partial \theta} \right] u_\phi \end{aligned} \quad (II.39)$$

L'équation d'onde scalaire s'écrit donc en coordonnées sphériques :

$$\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial \Psi}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial \Psi}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \phi^2} + m^2 k^2 \Psi = 0 \quad (II.40)$$

La théorie de Lorenz-Mie consiste à utiliser une méthode de séparation des variables pour résoudre l'équation précédente :

$$\Psi(r, \theta, \phi) = R(r) \Theta(\theta) \Phi(\phi) \quad (II.41)$$

L'injection dans Equ. II.40 abouti à l'équation suivante:

$$\frac{1}{r^2} \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial R}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{1}{\Theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial \Theta}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{1}{\Phi} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial \phi^2} + k^2 m^2 = 0 \quad (II.42)$$

On multiplie Equ. II.42 par $r^2 \sin^2 \theta$, on obtient :

$$\sin^2 \theta \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial R}{\partial r} \right) + \sin \theta \frac{1}{\Theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial \Theta}{\partial \theta} \right) + \sin^2 \theta k^2 m^2 r^2 + \frac{1}{\Phi} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial \phi^2} = 0 \quad (II.43)$$

Les trois premiers termes de l'équation Equ. II.43 sont fonction de r et θ mais pas de ϕ , donc l'unique possibilité pour que Equ. II.43 soit solvable est quand :

$$\frac{\partial^2 \Phi}{\partial \phi^2} + l^2 \Phi = 0 \quad (II.44)$$

Où l est un entier

$$\sin^2 \theta \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial R}{\partial r} \right) + \sin \theta \frac{1}{\Theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial \Theta}{\partial \theta} \right) + \sin^2 \theta k^2 m^2 r^2 - l^2 = 0 \quad (II.45)$$

On divise Equ. II.45 par $\sin^2 \theta$ on obtient:

$$\frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial R}{\partial r} \right) + k^2 m^2 r^2 + \frac{1}{\sin \theta} \frac{1}{\Theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial \Theta}{\partial \theta} \right) - \frac{l^2}{\sin^2 \theta} = 0 \quad (II.46)$$

Ainsi, nous devons avoir:

$$\frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial R}{\partial r} \right) + k^2 m^2 r^2 = n(n+1) = \text{const} \quad (II.47)$$

$$\text{Et } \frac{1}{\sin \theta} \frac{1}{\Theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial \Theta}{\partial \theta} \right) - \frac{l^2}{\sin^2 \theta} = -n(n+1) = \text{const} \quad (II.48)$$

Dans l'ordre de satisfaire l'équation Equ. II.47, la sélection de la constante n est aussi pour des simplicités mathématiques.

Le réarrangement des équations, Equ. II.45, Equ. II.47 et Equ. II.48 mène à la décomposition suivante :

- **Équation azimutale:**

$$\frac{\partial^2 \Phi}{\partial \phi^2} + \Phi l^2 = 0 \quad (II.49)$$

- **Équation polaire:**

$$\frac{l}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial \Theta}{\partial \theta} \right) + \left(n(n+1) - \frac{l^2}{\sin^2 \theta} \right) \Theta = 0 \quad (II.50)$$

Posons $\mu = \cos \theta$, l'équation Equ. II.50 se transforme en:

$$\frac{d}{d\mu} \left((1-\mu^2) \frac{\partial \Theta}{\partial \theta} \right) + \left(n(n+1) - \frac{l^2}{\sin^2 \theta} \right) \Theta = 0 \quad (II.51)$$

- **Équation radiale:**

$$\frac{d^2 R}{dr^2} + \left(k^2 m^2 - \frac{n(n+1)}{r^2} \right) R = 0 \quad (II.52)$$

Les solutions de Equ. II.49 sont du type:

$$\Phi = a_l \cos l\phi + b_l \sin l\phi \quad (II.53)$$

a_l et b_l des constants arbitraires.

Les solutions de Equ. II.51 sont polynômes de Legendre associés.

$$\Theta = P_n^l(\mu) = P_n^l(\cos \theta) \quad (II.54)$$

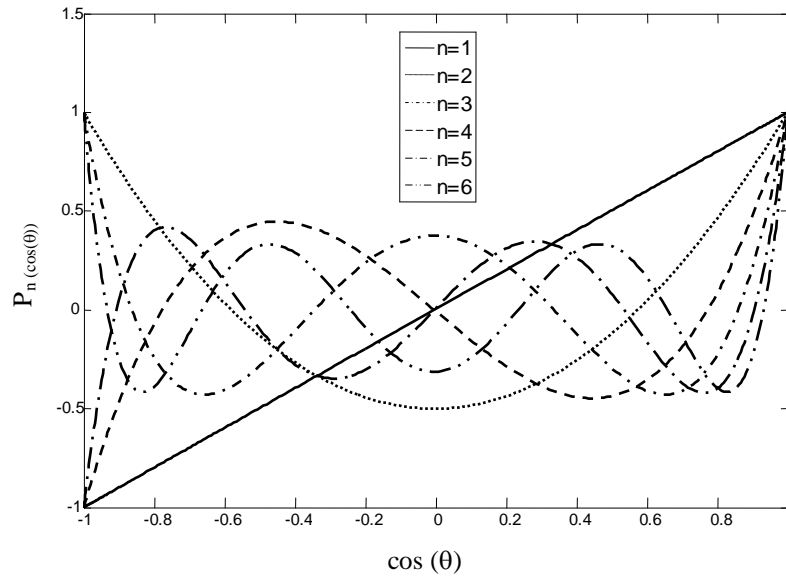


Fig .II.8– Les six premiers ordres du polynôme de Legendre

Les solutions de Equ. II.52 s'obtiennent en effectuant le changement de variable :

$$krm = \chi m = \rho \quad \text{Et} \quad R = \left(\frac{l}{\sqrt{\rho}} \right) Z(\rho)$$

χ : est le paramètre de taille.

On obtient :

$$\frac{d^2 Z}{d\rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{dZ}{d\rho} \left(1 - \frac{n(n+1/2)^2}{\rho^2} \right) Z=0 \quad (II.55)$$

Les solutions de cette équation sont les fonctions de Riccati- Bessel et leurs combinaisons linéaires définies, comme suit:

$$Z=Z_{n+1/2}(\rho) \quad (II.56)$$

Ainsi la solution de l'équation Equ. II.52 est:

$$R = \frac{1}{\sqrt{kmr}} Z_{n+1/2}(kmr) \quad (II.57)$$

En combinant les équations Equ. II.53, Equ. II.54 et Equ. II.57, la fonction d'onde élémentaire en tout point de la surface sphérique peut avoir l'expression :

$$\Psi(r, \theta, \phi) = \frac{1}{\sqrt{kmr}} Z_{n+1/2}(kmr) P_n^l(\cos \theta) (a_1 \cos l\phi + b_2 \sin l\phi) \quad (II.58)$$

Les fonctions de Riccati-Bessel désignées en Equ. II.57, peuvent être formulées comme combinaison linéaire des fonctions de Bessel et Neumann d'ordre demi entier : $J_{n+1/2}$ et $Y_{n+1/2}$

$$\begin{aligned} \psi_n(\rho) &= \sqrt{\frac{\rho\pi}{2}} J_{n+1/2}(\rho) \\ y_n(\rho) &= -\sqrt{\frac{\rho\pi}{2}} Y_{n+1/2}(\rho) \end{aligned} \quad (II.59)$$

Les fonctions $J_{n+1/2}(\rho)$ sont définies à l'origine, tandis que les fonctions $Y_{n+1/2}(\rho)$ ont des singularités à $\chi = 0$ où elles deviennent infinies. Donc nous pouvons utiliser $J_{n+1/2}(\rho)$ est non pas $Y_{n+1/2}(\rho)$ pour représenter l'onde à l'intérieur de la sphère.

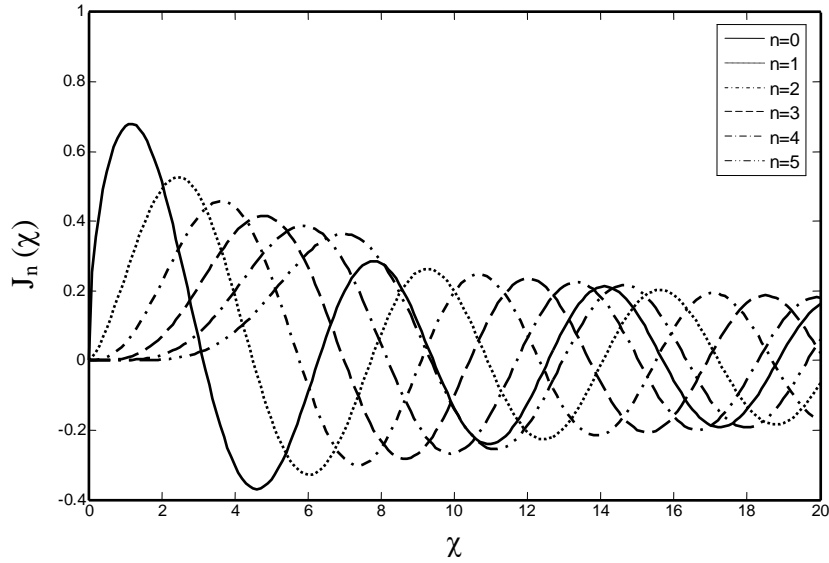


Fig .II.9 – Les six premiers ordres de la fonction de Bessel de premier type

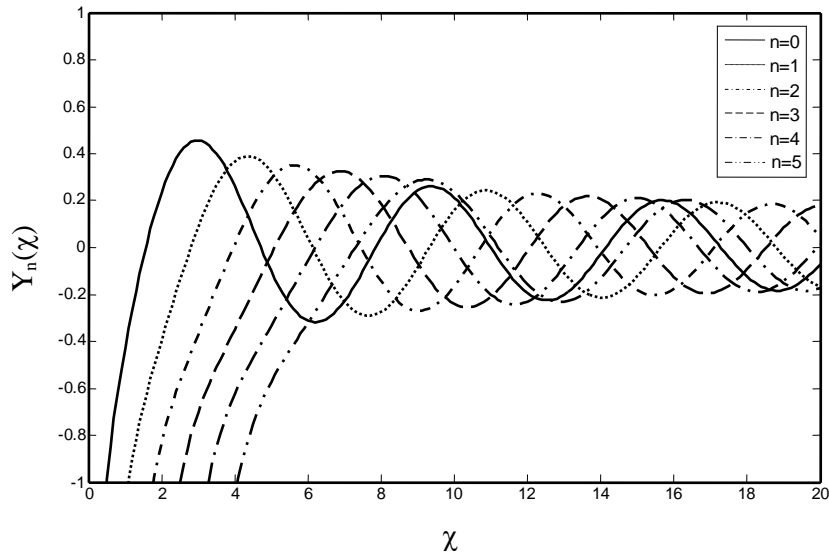


Fig .II.10 – Les six premiers ordres de la fonction de Bessel de deuxième type

Maintenant, la solution générale de l'équation scalaire s'écrit :

$$\Psi(r, \theta, \phi) = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{l=-n}^n P_n^l(\cos \theta) \left(c_n \psi_n(kmr) + d_n y_n(kmr) \right) (a_1 \cos l\phi + b_2 \sin l\phi) \quad (II.60)$$

En se servant des équations Equ. II.57 et Equ. II.59, on pourrait écrire:

$$R = c_n \psi_n(kmr) + d_n y_n(kmr) \quad (II.61)$$

Ou c_n et d_n sont des constantes arbitraires.

Si $c_n = 1$ et $d_n = +i$, (i : symbole imaginaire des nombres complexes), on obtient les fonctions liées aux fonctions de Bessel du 3ème ordre [Abramowitz. M, 1964] :

$$\begin{aligned}\xi_n^{(1)}(\rho) &= \psi_n(\rho) + iy_n(\rho) \\ \xi_n^{(2)}(\rho) &= \psi_n(\rho) - iy_n(\rho)\end{aligned}\quad (II.62)$$

$\xi_n^{(2)}(\rho)$ est la fonction de Hankel de seconde espèce et d'ordre demi entier qui a la propriété de s'annuler à l'infinie. Cette fonction est donc convenable pour la représentation de l'onde diffusée.

3.2.2.2 Représentation de l'onde électromagnétique en coordonnées sphériques

L'analyse de la diffusion élastique d'une onde électromagnétique plane par un aérosol sphérique conduit à considérer que l'aérosol est homogène, doté d'un indice de réfraction arbitraire m , situé dans un milieu d'indice de réfraction valant l'unité. La radiation incidente est portée dans la direction positive des z , avec une polarisation linéaire et que l'origine des coordonnées est pris au centre cet aérosol sphérique.

$$\begin{aligned}E^i &= e^{-ikz} U_x \\ H^i &= e^{-ikz} U_y\end{aligned}\quad (II.63)$$

Pour déterminer les fonctions scalaires u et v , nous aurons besoin d'une seule composante de Equ. II.38.

En utilisant le théorème d'addition de Gegenbauer, permettant le développement d'une onde électromagnétique plane en polynômes de Legendre et séries de Bessel [Stratton, J. A., 1941], on peut aboutir aux expressions des champs interne et diffusé de la particule :

$$\begin{aligned}u^i &= \frac{1}{k} \sum_{n=1}^{\infty} (-i)^n \frac{2n+1}{n(n+1)} \psi_n(kr) P_n^1(\cos \theta) \cos \phi \\ v^i &= \frac{1}{k} \sum_{n=1}^{\infty} (-i)^n \frac{2n+1}{n(n+1)} \psi_n(kr) P_n^1(\cos \theta) \sin \phi\end{aligned}\quad (II.64)$$

Concernant l'onde interne qui devrait être exprimée en séries similaires mais avec d'autres constantes, parce que la fonction $y_n(\rho)$ est infinie à l'origine, seulement la fonction $\psi_n(\rho)$ qui sera utilisée pour l'onde interne ce qui donne donc:

$$\begin{aligned}u^t &= \frac{1}{mk} \sum_{n=1}^{\infty} (-i)^n \frac{2n+1}{n(n+1)} C_n \psi_n(mkr) P_n^1(\cos \theta) \cos \phi \\ v^t &= \frac{1}{mk} \sum_{n=1}^{\infty} (-i)^n \frac{2n+1}{n(n+1)} D_n \psi_n(mkr) P_n^1(\cos \theta) \sin \phi\end{aligned}\quad (II.65)$$

Pou l'onde diffusée les deux fonctions $y_n(\chi)$ et $\psi_n(\chi)$ devons s'annuler à l'infinie, donc les fonctions de Hankel possédant cette propriété qui seront utilisées pour l'onde diffusée.

$$u^s = \frac{1}{k} \sum_{n=1}^{\infty} (-i)^n \frac{2n+1}{n(n+1)} A_n \zeta_n(kr) P_n^1(\cos \theta) \cos \phi$$

$$v^s = \frac{1}{k} \sum_{n=1}^{\infty} (-i)^n \frac{2n+1}{n(n+1)} B_n \zeta_n(kr) P_n^1(\cos \theta) \sin \phi$$
(II.66)

3.2.2.3. Calcul des coefficients de Mie

Les coefficients internes et externes de Mie se déterminent à l'aide des conditions aux limites à la surface de l'aérosol, pour cela on se sert de la continuité des composantes tangentielles des champs E et H à la cette surface sphérique ($r = a$).

$$E_{\theta}^i + E_{\theta}^s = E_{\theta}^t$$

$$H_{\theta}^i + H_{\theta}^s = H_{\theta}^t$$
(II.67)

$$E_{\phi}^i + E_{\phi}^s = E_{\phi}^t$$

$$H_{\phi}^i + H_{\phi}^s = H_{\phi}^t$$
(II.68)

En tenant compte des équations Equ. II.38-Equ. II.39 et Equ. II.64-,Equ. II.66

$$\frac{\partial}{\partial R} [r(u^i + u^s)] = \frac{1}{m} \frac{\partial}{\partial R} [ru^t]$$
(II.69)

$$Et \quad u^i + u^s = mu^t$$

$$\frac{\partial}{\partial R} [r(v^i + v^s)] = \frac{1}{m} \frac{\partial}{\partial R} [rv^t]$$
(II.70)

$$Et \quad v^i + v^s = v^t$$

De Equ. II.69 et Equ. II.70 on obtient:

$$\psi_n' m [ka] - A_n \zeta_n'(ka) = C_n \psi_n'(kma)$$

$$[\psi_n'(ka) - B_n \zeta_n'(ka)] = D_n \psi_n'(kma)$$
(II.71)

$$[\psi_n(ka) - A_n \zeta_n(ka)] = C_n \psi_n(kma)$$

$$m[\psi_n(ka) - B_n \zeta_n(ka)] = D_n \psi_n'(kma)$$
(II.72)

Si on élimine C_n et D_n , on obtient:

$$A_n = \frac{m\psi_n(m\chi) \psi_n'(\chi) - \psi_n(\chi) \psi_n'(m\chi)}{m\psi_n(m\chi) \zeta_n'(\chi) - \zeta_n(\chi) \psi_n'(m\chi)}$$

$$B_n = \frac{\psi_n(m\chi) \psi_n'(\chi) - m\psi_n(\chi) \psi_n'(m\chi)}{\psi_n(m\chi) \zeta_n'(\chi) - m\zeta_n(\chi) \psi_n'(m\chi)}$$
(II.73)

Avec, $\chi = ka$

Pour être calculés numériquement, de façon stable, ces coefficients sont reformulés en fonction des dérivées logarithmiques des fonctions de Riccati-Bessel :

$$\begin{aligned} A_n &= D_n^{(3)} \frac{mD_n^{(1)}(\chi) - D_n^{(1)}(m\chi)}{mD_n^{(2)}(\chi) - D_n^{(1)}(m\chi)} \\ B_n &= D_n^{(3)} \frac{D_n^{(1)}(\chi) - mD_n^{(1)}(m\chi)}{D_n^{(2)}(\chi) - mD_n^{(1)}(m\chi)} \end{aligned} \quad (II.74)$$

Où pour plus de détails [Bohren, C. F. 1983] :

$$D_n^{(1)}(z) = \frac{\psi'_n(z)}{\psi_n(z)} \quad (II.75)$$

$$D_n^{(2)}(z) = \frac{\zeta'_n(z)}{\zeta_n(z)} \quad (II.76)$$

$$D_n^{(3)}(z) = \frac{\psi_n(z)}{\zeta_n(z)} \quad (II.77)$$

3.2.2.4 Diffusion de la lumière par un aérosol

Diffusion de la lumière obéit aux équations de Maxwell où l'on peut considérer que les susceptibilités électrique et magnétique sont continues à l'intérieur qu'à l'extérieur de la particule. A l'interface entre les deux, la discontinuité impose de fixer des conditions aux limites pour les champs électrique \vec{E} et d'induction \vec{H} afin d'assurer la conservation de l'énergie à cette interface :

$$\begin{cases} (\vec{E}_{int} - \vec{E}_{ext}) \cdot d\vec{s} = 0 \\ (\vec{H}_{int} - \vec{H}_{ext}) \cdot d\vec{s} = 0 \end{cases} \quad (II.78)$$

Où $d\vec{S}$ est l'élément orienté, unitaire, de l'interface entre les milieux intérieur et extérieur.

Le problème étant linéaire, il est possible de construire des solutions par combinaison linéaire de solutions connues. En particulier, il suffit de traiter deux polarisations incidentes pour en déduire les solutions pour toutes les polarisations possibles.

3.2.2.4.1 Matrice des amplitudes de diffusion

On considère une particule de forme arbitraire éclairée par une onde électromagnétique plane harmonique. Les champs électrique et magnétique incidents (*i*) sur la particule dans le repère $\hat{e}_x, \hat{e}_y, \hat{e}_z$ sont donnés Equ. II.1.

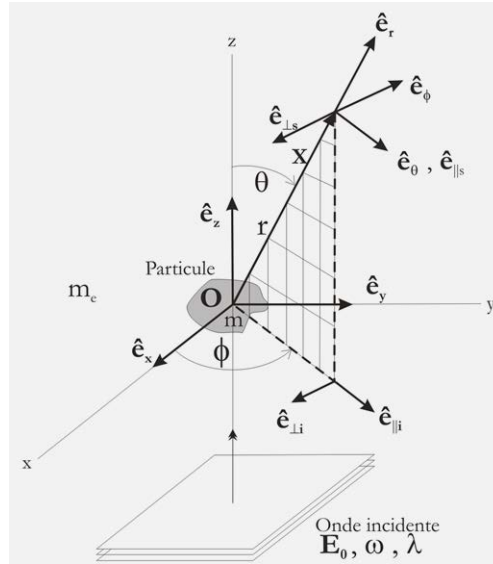


Fig.II.11 – Schéma angulaire d'un processus de diffusion par une particule, d'une onde incidente monochromatique et polarisée.

Dans le cas de l'étude optique d'aérosols, on s'intéresse essentiellement à la lumière diffusée à grande distance de la particule, où le champ électrique est alors transversal. Ce champ est décomposé en une composante en deux composantes parallèle et perpendiculaire au plan de diffusion [Bohren C. F, 1983]:

$$E_i = (E_{\parallel 0} \hat{e}_{\parallel 0} + E_{\perp 0} \hat{e}_{\perp 0}) e^{i(kz - \omega t)} = E_{\parallel i} \hat{e}_{\parallel i} + E_{\perp i} \hat{e}_{\perp i} \quad (II.79)$$

$$\text{Avec : } k = \frac{2\pi}{\lambda} = \frac{2 n_{ext} \pi}{\lambda_{vide}}$$

Dans le repère sphérique $(r, \theta, \phi) / (\hat{e}_r, \hat{e}_\phi, \hat{e}_\theta)$ on a :

$$\begin{cases} \hat{e}_{\perp i} = \sin \phi \hat{e}_x - \cos \phi \hat{e}_y = -\hat{e}_\phi \\ \hat{e}_{\parallel i} = \cos \phi \hat{e}_x + \sin \phi \hat{e}_y = \sin \theta \hat{e}_r + \cos \theta \hat{e}_\theta \end{cases} \quad (II.80)$$

$$\begin{cases} E_{\parallel i} = \cos \phi E_{xi} + \sin \phi E_{yi} \\ E_{\perp i} = \sin \phi E_{xi} - \cos \phi E_{yi} \end{cases} \quad (II.81)$$

Le champ diffusé (s : *scattered*) est décomposé en deux contributions :

$$E_s = E_{\parallel s} \hat{e}_{\parallel s} + E_{\perp s} \hat{e}_{\perp s} \quad (II.82)$$

$$\text{Avec } \hat{e}_{\parallel s} = \hat{e}_\theta, \quad \hat{e}_{\perp s} = -\hat{e}_\phi, \quad \hat{e}_{\perp s} \times \hat{e}_{\parallel s} = \hat{e}_r \quad (II.83)$$

Le matériau de la particule étant linéaire, on peut écrire la proportionnalité entre le champ émergent et le champ incident, comme suit :

$$\begin{pmatrix} E_{//s} \\ E_{\perp s} \end{pmatrix} = \frac{e^{i(k(R-z) - \omega t)}}{-ikR} \begin{pmatrix} S_2 & S_3 \\ S_4 & S_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{//i} \\ E_{\perp i} \end{pmatrix} \quad (II.84)$$

$E_{//s}$: composante parallèle du champ diffusé

$E_{\perp s}$: composante perpendiculaire du champ diffusé

$E_{//i}$: composante parallèle du champ incident

$E_{\perp i}$: composante perpendiculaire du champ incident

S_1, S_2, S_3, S_4 sont les éléments de la matrice des amplitudes de diffusion de Mueller [Mueller, H, 1948.], composée de coefficients, en générale 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) :

R : la distance par rapport à la particule.

z : la composante de R suivant la direction de propagation de l'onde incidente

λ : la longueur d'onde dans le milieu extérieur d'indice n_{ext} .

L'étude de la diffusion se ramène alors à la détermination des composantes S_j de la matrice de diffusion.

Remarque : S_3 et $S_4 = 0$ pour une particule de forme sphérique.

$$\begin{aligned} S_1 &= \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(2n+1)}{n(n+1)} (A_n \pi_n + B_n \tau_n) \\ S_2 &= \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(2n+1)}{n(n+1)} (A_n \tau_n + B_n \pi_n) \end{aligned} \quad (II.85)$$

Avec π_n et τ_n sont les fonctions de Legendre de degré n :

$$\pi_n = \frac{P_n^1}{\sin \theta} \quad (II.86)$$

$$\tau_n = \frac{dP_n^1}{\sin \theta} \quad (II.87)$$

Pour faciliter les calculs, Wiscombe [Wiscombe,1980] propose des relations de récurrence qui permettent de calculer aisément ces deux suites de fonctions $\pi_n(\cos\theta)$ et $\tau_n(\cos\theta)$ par récurrence ascendante.

L'initialisation de cette récurrence est $\pi_0 = 0$, $\pi_1 = 1$ et $\tau_0 = 0$; et les relations permettant de passer du triplet $(\pi_{n-1}(\cos\theta), \pi_n(\cos\theta), \tau_n(\cos\theta))$ au couple $(\pi_{n+1}(\cos\theta), \tau_{n+1}(\cos\theta))$ sont:

$$s = \cos \theta \pi_n(\cos \theta) \quad (II.88)$$

$$t = s - \pi_{n-1}(\cos \theta) \quad (II.89)$$

$$\pi_{n+1}(\cos\theta) = s+t + t/n \quad (II.90)$$

$$\tau_{n+1}(\cos\theta) = (n+1)t - \pi_n \quad (II.91)$$

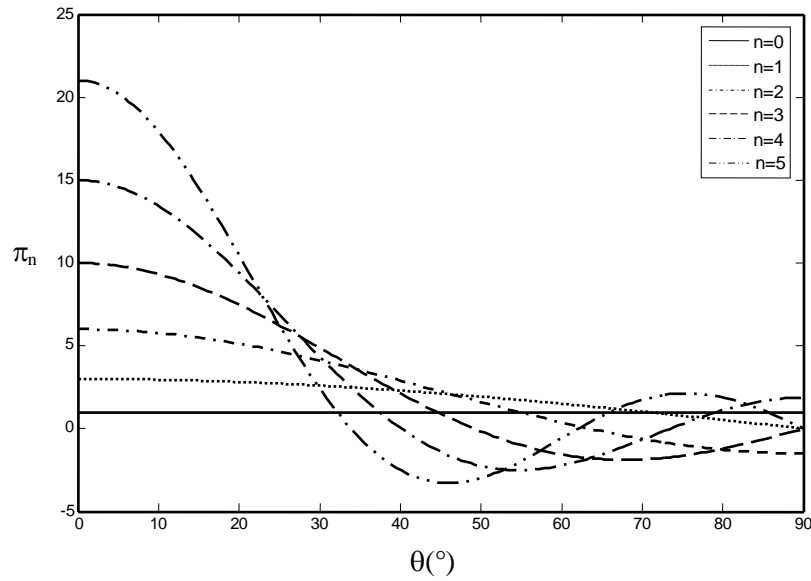


Fig .II.12– Représentation graphiques de la fonction angulaire π_n en fonction de θ

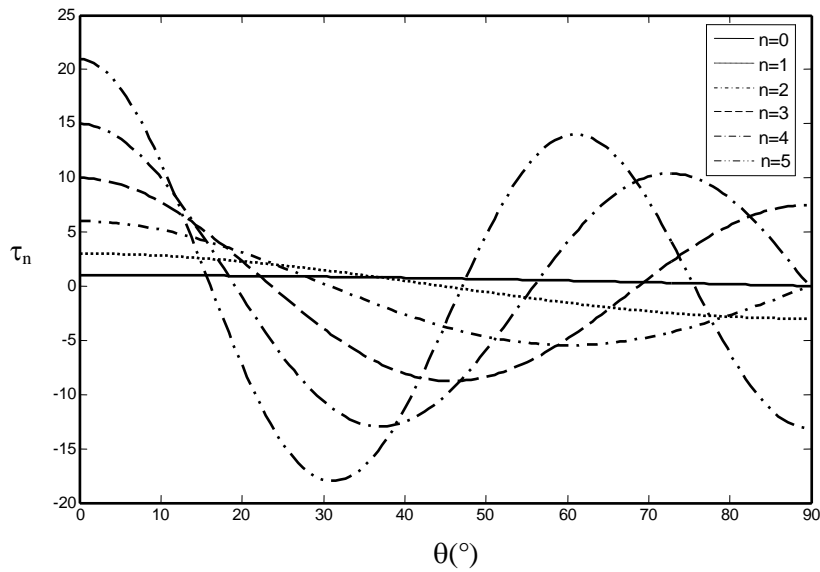


Fig .II.13– Représentation graphiques de la fonction angulaire τ_n en fonction de θ

3.2.2.4.2 Relation avec les paramètres de Stokes

Etant donnée une lumière incidente caractérisée par les paramètres de Stokes I_i , Q_i , U_i et V_i . Après avoir interagie avec une particule quelconque, la lumière émergente sera elle aussi caractérisée par un nouvel ensemble de paramètres de Stokes I_s , Q_s , U_s et V_s . Vue la linéarité du milieu (particule), nous supposons que chaque paramètre de Stokes de la lumière

émergente peut être exprimé comme une combinaison linéaire des quatre paramètres de Stokes de la lumière incidente suivant la relation de Mueller :

$$\begin{pmatrix} I_s \\ Q_s \\ U_s \\ V_s \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} S_{11} & S_{12} & S_{13} & S_{14} \\ S_{21} & S_{22} & S_{23} & S_{24} \\ S_{31} & S_{32} & S_{33} & S_{34} \\ S_{41} & S_{42} & S_{43} & S_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I_i \\ Q_i \\ U_i \\ V_i \end{pmatrix} \quad (II.92)$$

Avec :

$$S_{11} = \frac{1}{2} (|S_1|^2 + |S_2|^2 + |S_3|^2 + |S_4|^2) \quad (II.93.1)$$

$$S_{12} = \frac{1}{2} (|S_2|^2 - |S_1|^2 + |S_4|^2 - |S_3|^2) \quad (II.93.2)$$

$$S_{13} = \text{Re} (S_2 S_3^* + S_1 S_4^*) \quad (II.93.3)$$

$$S_{14} = \text{Im} (S_2 S_3^* - S_1 S_4^*) \quad (II.93.4)$$

$$S_{21} = \frac{1}{2} (|S_2|^2 - |S_1|^2 - |S_4|^2 + |S_3|^2) \quad (II.93.5)$$

$$S_{22} = \frac{1}{2} (|S_2|^2 + |S_1|^2 - |S_4|^2 - |S_3|^2) \quad (II.93.6)$$

$$S_{23} = \text{Re} (S_2 S_3^* - S_1 S_4^*) \quad (II.93.7)$$

$$S_{24} = \text{Im} (S_2 S_3^* + S_1 S_4^*) \quad (II.93.8)$$

$$S_{31} = \text{Re} (S_2 S_4^* + S_1 S_3^*) \quad (II.93.9)$$

$$S_{32} = \text{Re} (S_2 S_4^* - S_1 S_3^*) \quad (II.93.10)$$

$$S_{33} = \text{Re} (S_1 S_2^* + S_3 S_4^*) \quad (II.93.11)$$

$$S_{34} = \text{Im} (S_2 S_1^* - S_4 S_3^*) \quad (II.93.12)$$

$$S_{41} = \text{Im} (S_2 S_4^* + S_3 S_1^*) \quad (II.93.13)$$

$$S_{42} = \text{Im} (S_2 S_4^* - S_3 S_1^*) \quad (II.93.14)$$

$$S_{43} = \text{Im} (S_1 S_2^* - S_3 S_4^*) \quad (II.93.15)$$

$$S_{44} = \text{Re} (S_1 S_2^* - S_3 S_4^*) \quad (II.93.16)$$

Dans le cas d'une particule sphérique ou orientée aléatoirement, les éléments S_{i3} et S_{i4} de la matrice des amplitudes sont nuls.

3.2.2.4.3 Sections efficaces et coefficients de diffusion

Une particule dont l'indice $m/m_e \ll 1$ diffuse une partie de l'énergie I_s (watt) de l'onde incidente.

Si m est complexe, la particule absorbe également une partie de l'énergie I_{abs} de l'onde incidente I_i , avec $I_{ext} = I_{abs} + I_s$

Où I_{ext} est la quantité totale d'énergie prélevée à l'onde incidente ou intensité éteinte, atténuation ou extinction.

De manière classique en physique, on peut définir des sections efficaces pour cette particule. Les sections efficaces sont homogènes à des surfaces, qui quantifient l'efficacité de la particule, en termes d'absorption et de diffusion de l'énergie électromagnétique de l'onde :

$$\text{La section efficace d'extinction} : \sigma_{ext} = \frac{I_{ext}}{I_i} (m^2) \quad (II.94)$$

$$\text{La section efficace de diffusion} : \sigma_s = \frac{I_s}{I_i} (m^2) \quad (II.95)$$

$$\text{La section efficace d'absorption} : \sigma_{abs} = \frac{I_{abs}}{I_i} (m^2) \quad (II.96)$$

Où I_s est l'intégrale suivante :

$$I_s = \int_0^{4\pi} I_s(\theta, \phi) d\Omega = \int_0^\pi \int_0^{2\pi} I_s(\theta, \phi) r^2 \sin \theta d\theta d\phi \quad (II.97)$$

Une partie de la lumière est diffusée dans la direction d'où vient la lumière incidente, la lumière est dite rétrodiffusée (I_{back}). La section efficace σ est définie comme étant :

$$\text{La section efficace de rétrodiffusion} : \sigma_{back} = \frac{I_{back}}{I_i} (m^2) \quad (II.98)$$

La section efficace de diffusion σ_s est alors définie dans le cadre de notre approximation par :

$$\sigma_s = \frac{1}{k^2} \int F_{11} \cdot d\Omega = \frac{2\pi}{k^2} \int_0^\pi F_{11}(\theta) \sin(\theta) d\theta \quad (II.99)$$

Avec :

$$F_{11}(\theta) = \frac{|S_1(\theta)|^2 + |S_2(\theta)|^2}{2} \quad (II.100)$$

De façon similaire à la définition de σ_s , 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 S :

$$\sigma_{ext} = \frac{4\pi}{k^2} \cdot R[S(\theta=0^\circ)] \quad (II.101)$$

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

$$\sigma_{abs} = \sigma_{ext} - \sigma_s \quad (II.102)$$

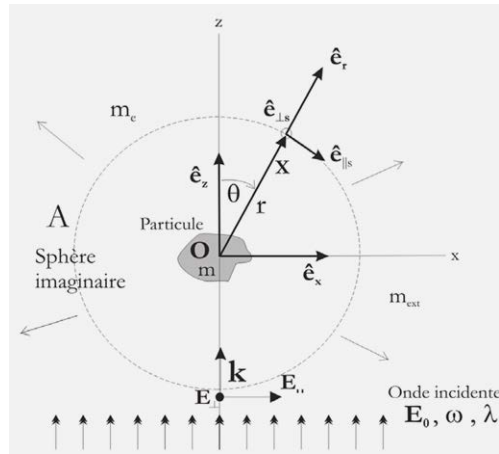


Fig.II.14 – Schéma représentatif de la section efficace de l'interaction entre une onde plane électromagnétique avec une particule

On définit également des efficacités de diffusion, d'absorption, d'extinction et de rétrodiffusion, en normalisant les sections efficaces correspondantes par celle de la particule, avec pour une sphère de rayon a :

$$Q_{ext} = \frac{\sigma_{ext}}{\pi a^2}, \quad Q_s = \frac{\sigma_s}{\pi a^2}, \quad Q_{abs} = \frac{\sigma_{abs}}{\pi a^2}, \quad Q_{back} = \frac{d\sigma_s}{d\Omega} \frac{1}{\pi a^2} \quad (II.103)$$

Avec Ω est l'angle solide.

πa^2 représente la section droite géométrique de la particule ou la moyenne des surfaces géométriques projetées pour des particules

Il est à noter que les efficacités d'extinction sont le plus souvent supérieures à 2.

Le caractère ondulatoire (et non pas seulement balistique : optique géométrique) de la lumière, explique ce phénomène.

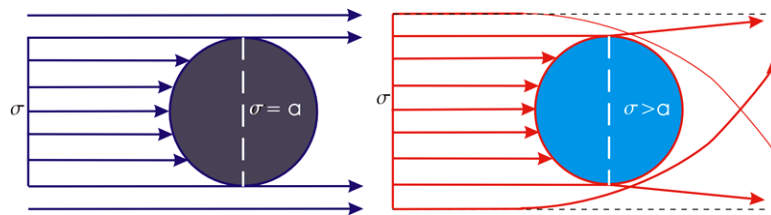


Fig.II.15 – Interaction de rayons parallèles avec un objet sans et avec potentiel d'interaction

Donc on peut exprimer les sections efficaces des aérosols :

$$\text{La section efficace de diffusion} : \sigma_s = \frac{2\pi}{k^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) (|A_n|^2 + |B_n|^2) \quad (II.104)$$

$$\text{La section efficace d'extinction} : \sigma_{ext} = \frac{2\pi}{k^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \text{Re} (A_n + B_n) \quad (II.105)$$

$$\text{La section efficace de rétrodiffusion : } \sigma_{back} = \frac{\pi}{k^2} \left| \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) (-1)^n (A_n + B_n) \right|^2 \quad (II.106)$$

Il faut noter que :

- Théoriquement : $Q_s \rightarrow 2$ pour $r \rightarrow \infty$
- Numériquement ces séries infinies sont tronquées à partir de : $n_{stop} = \chi + 4\chi^{1/3} + 2$
- D'après le principe de l'approximation localisée, les termes n de l'expansion correspondent à des rayons qui impactent sur la particule à la distance R_n du centre de celle-ci :

$$R_n = \left(n + \frac{1}{2} \right) \frac{\lambda}{2\pi} \quad (II.107)$$

$$\text{avec } \left(n + \frac{1}{2} \right) = \chi \quad (II.108)$$

3.2.3 Particules non-sphériques

Pour les particules de tailles intermédiaires et de formes assez simples (symétrie de révolution par exemple), il existe des théories pour différentes formes et pour différentes tailles de particules. Par exemple, la théorie T-matrix [Mishchenko et al, 1996] permet un calcul assez rapide pour les particules ellipsoïdes aplaties ou allongées. Pour des formes complexes ou quelconques, des théories commencent à être élaborées [Mishchenko et al, 2000] telles que les méthodes des éléments finis [Silvester et Ferrari, 1996] ou méthode du Finite Difference Time Domain (FDTD) [P.Yang et N. K. Liou, 2000]. Ces techniques sont très précises mais très coûteuses en temps de calcul, ce qui constitue leur principal handicap.

3.2.4 Décomposition en séries de Debye

La théorie de Debye est une réécriture de la théorie de Lorenz-Mie qui donne la possibilité de quantifier la contribution des différents modes de diffusion (au sens de l'optique géométrique): réflexion, réfraction, diffraction, réflexion interne [Hovenac E, 1992],[Lock James A, 1997]. Tout en gardant l'aspect rigoureux de la théorie de Lorenz Mie, la décomposition en série de Debye permet de séparer, et ainsi mieux comprendre les différents phénomènes de diffusion de la lumière.

Debye réorganise les coefficients de diffusion de Mie (A_n , B_n) en fonction du taux de transmission T et du taux de réflexion R pour une onde sphérique élémentaire. Lorsqu'une onde rencontre une surface, une partie de l'onde est transmise et l'autre est réfléchi (Fig II.16). Chaque (A_n , B_n) sera exprimé en fonction de T_n et R_n .

$$\begin{cases} A_n(p) \\ B_n(p) \end{cases} = \frac{I}{2} \left[1 - R_n^{(22)} - T_n^{(21)} (R_n^{(11)})^{p-1} T_n^{(12)} \right] \text{ pour } \begin{cases} p = 0 \\ p \geq 1 \end{cases} \quad (II.109)$$

Chaque p correspond à un mode de diffusion.

$R_n^{(22)}$: Coefficient de réflexion de l'onde incidente partiellement réfléchi (réflexion spéculaire et diffraction) vers le milieu extérieur.

$T_n^{(21)}$: Coefficient de transmission des ondes externes partielles vers l'intérieur de la particule. Une partie de l'onde incidente est donc transmise à l'intérieur de la particule.

$R_n^{(11)}$: Coefficient de réflexion des ondes partielles internes sur la surface interne de la particule.

$T_n^{(12)}$: Coefficient de transmission des ondes partielles internes vers le milieu extérieur. Pour les expressions et méthodes de calcul des coefficients des séries de Debye :

$p = 0$ correspond à la diffraction et la réflexion spéculaire,

$p = 1$ à la réfraction simple,

$p = 2$ à l'onde partielle qui a subi une réflexion interne,

$p = 3$ avec deux réflexions internes, ect.

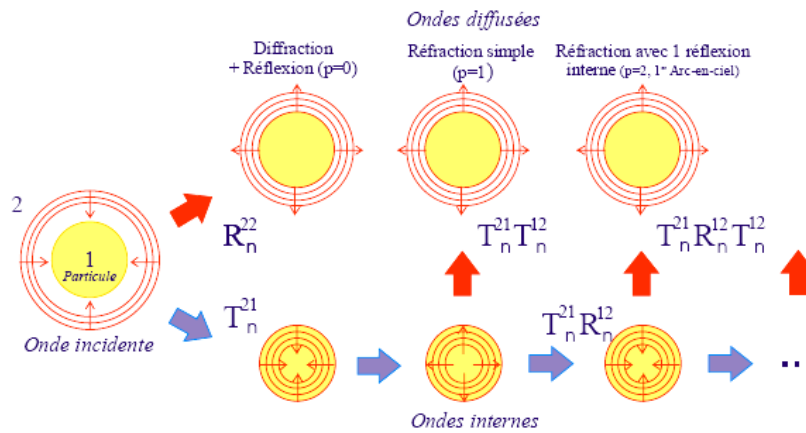


Fig II.16 – schéma d'interprétation de la méthode de décomposition de Debye [Hovenac E, 1992]

Pour l'onde partielle p et l'ordre d'expansion n , les coefficients de diffusion externe s'écrivent:

$$\begin{cases} A_n(p) \\ B_n(p) \end{cases} = \frac{I}{2} \left[1 - R_n^{(22)} - \sum_{p=1}^{\infty} T_n^{(21)} (R_n^{(11)})^{p-1} T_n^{(12)} \right] \quad (II.110)$$

La série de Debye porte sur le nombre de réflexions internes pris en compte à l'intérieur de la goutte (p allant de 1 à ∞ pour prendre en compte tous les modes). La constante $1/2$

représente la diffraction et R^{22} la réflexion extérieure. Dans le cas, d'une somme infinie, on retrouve les coefficients de diffusion externe de la théorie de Lorenz-Mie.

3.2.5 Lois de l'optique géométrique

L'optique géométrique assimile l'onde incidente a des rayons lumineux et sépare la lumière diffusée en lumière réfléchi, réfractée, ou ayant subie plusieurs réflexions internes [Naqwi A, 1991]. La condition d'utilisation de ce modèle est que la taille de la particule doit être très grande par rapport à la longueur d'onde.

Nous allons nous intéresser au parcours des rayons lumineux dans et autour de la particule et a leurs propriétés (intensité, phase...).

Les directions de diffusion et l'intensité des différents rayons sont déterminées par les lois de Snell-Descartes.

On considère un rayon incident sur la surface d'une sphère (Fig. II.17) :

- Ce rayon est pour partie réfléchi (réflexion spéculaire), $p=0$, et pour partie transmis (réfraction, avec éventuellement de l'absorption) à l'intérieur de la particule.
- Le rayon transmis est à son tour réfléchi et transmis (vers l'extérieur), $p=1$, puis $p=2$, ect.

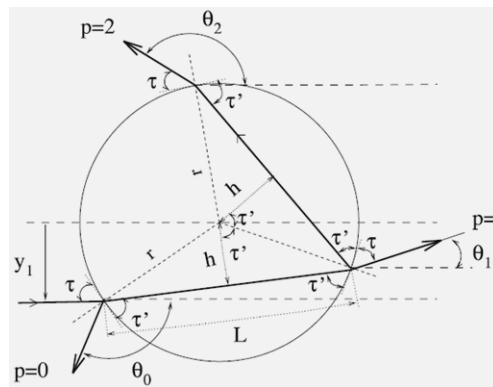


Fig II.17 – Parcours d'un rayon dans une sphère

Sans absorption, ce cycle se reproduit indéfiniment. Il est à l'origine des résonances de Mie ou résonances morphologico-dépendantes (MDRs) [Chylek, P, 1980].

En suivant Van de Hulst [Van der Hulst H. C. 1981], on trouve des relations générales pour les directions de diffusion :

$$\theta_p = 2\tau - 2p\tau' \quad (II.111)$$

$$\text{avec } m \cos \tau' = \cos \tau \quad (II.112)$$

Avec pour les coefficients de Fresnel en amplitude :

$$r_{\parallel} = \frac{\sin \tau - m \sin \tau'}{\sin \tau + m \sin \tau'} \quad (II.113)$$

$$r_{\perp} = \frac{m \sin \tau - \sin \tau'}{m \sin \tau + \sin \tau'}$$

Et pour les intensités :

$$\varepsilon_x = r_x^2 \text{ pour } p = 0$$

$$\varepsilon_x = (1 - r_x^2)^2 \text{ pour } p = 1 \quad (II.114)$$

$$\varepsilon_x = r_x^2 (1 - r_x^2)^2 \text{ pour } p = 2$$

Où x correspond à la polarisation (parallèle ou perpendiculaire).

De l'Equ. II.113, on déduit que la réfraction simple n'existe plus aux angles de diffusion supérieurs à θ_r et que l'intensité du rayon réfléchi est nulle à l'angle de Brewster θ_B (pour la polarisation parallèle) :

$$\theta_r = 2 \cos^{-1} (1/m) \quad (II.115)$$

Et
$$\theta_B = 2 \tan^{-1} (1/m) \quad (II.116)$$

L'intensité diffusée est proportionnelle au carré du diamètre de la particule :

$$I_{diff} = I_0 \frac{4R^2}{l^2} \varepsilon_x^2 D \quad (II.117)$$

Où R le rayon incident, D est un paramètre de divergence et l est la distance d'observation.

L'optique géométrique montre qu'il existe un minimum de déviation pour les rayons $p=2$, responsables du phénomène d'arc-en-ciel :

$$\theta_{ac} = 2\tau - 4\tau' \quad (II.118)$$

avec $m \cos \tau_{ac} = \cos \tau_{ac}$ et $\tau_{ac} = \sqrt{(m^2 - 1)/3}$ (II.119)

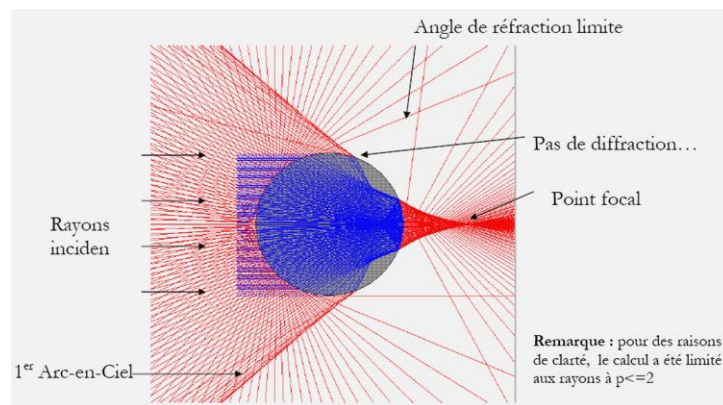


Fig II.18 – Schéma explicatif du phénomène d'arc-en-ciel

Les diagrammes de diffusion selon la décomposition de Debye et l'optique géométrique sont présentés sur la Fig. II.19 en polarisation perpendiculaire pour les six premiers ordres.

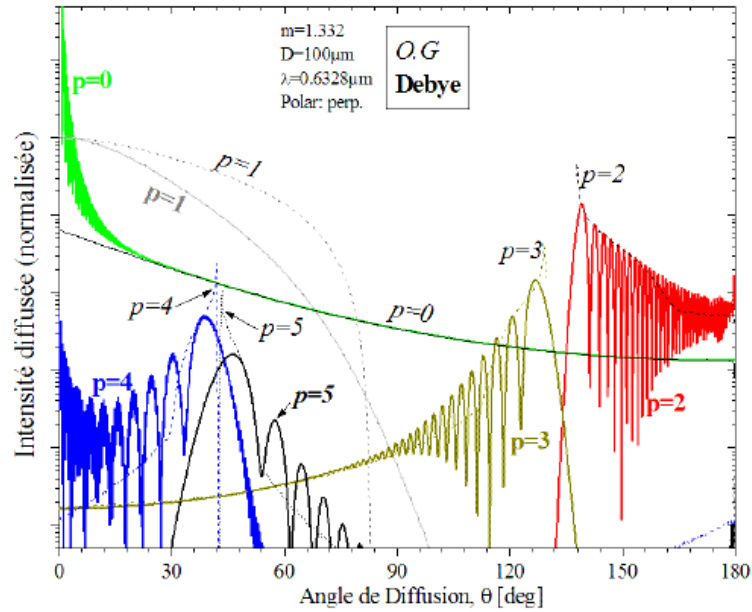


Fig II.19 – Diagrammes de diffusion d’une goutte d’eau de diamètre $r=100\mu\text{m}$, selon l’optique géométrique et avec la décomposition de Debye (1 seule onde partielle)

On observe une grande différence entre eux de telle manière que les ondes réfractées existent pour tous les angles selon la décomposition de Debye. La notion d’angle limite de l’optique géométrique n’existe plus. La théorie de Debye prend bien en compte l’aspect ondulatoire de l’interaction et les aspects fins de la particule. Elle propose une bonne description sur tous les angles de diffusion.

3.2.6 La diffraction de Fraunhofer

Lorsque la taille des particules est très grande devant la longueur d’onde de la lumière incidente ($d > 10-20 \lambda$), l’intensité diffusée est essentiellement concentrée dans la direction avant. On utilise alors les approximations de l’optique géométrique pour décrire la diffusion de la lumière. Une particule dans un faisceau lumineux peut alors être considérée comme un disque circulaire de même diamètre. La lumière incidente est diffractée par les contours du disque et on observe en champ lointain des anneaux sombres et brillants caractéristiques des maxima et minima de l’intensité lumineuse diffractée. On parle alors de diffraction de Fraunhofer [Born et Wolf, 1985]. Les positions des anneaux dépendent seulement du diamètre de la particule et de la longueur d’onde de la lumière et non des propriétés de la particule ou du milieu environnant. Les variations angulaires de l’intensité lumineuse diffractée par une particule sphérique de diamètre r vérifient la relation :

$$I_D(\theta) \approx \frac{\left(\frac{\pi r}{\lambda}\right)^2 J_1^2\left(\frac{\pi r}{\lambda} \sin \theta\right)}{\sin^2 \theta} \quad (\text{II.120})$$

Où J_1 est la fonction de Bessel du premier ordre.

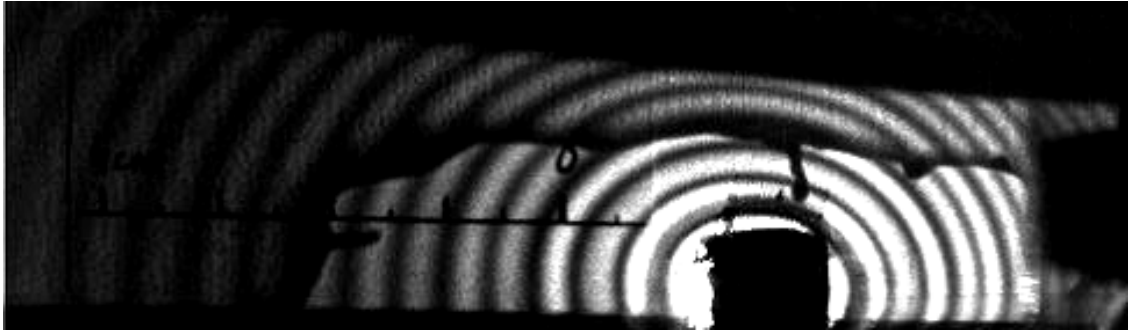


Fig II.20 – Figure de diffraction par une goutte d'eau sphérique de rayon environ $25 \mu\text{m}$, au voisinage de $\theta = 0$

4. Conclusion

Nous avons décrit dans ce deuxième chapitre les théories de la diffusion de la lumière par une particule sphérique éclairée par un faisceau lumineux, en s'appuyant sur les équations des ondes électromagnétiques de Maxwell où les susceptibilités électrique et magnétique sont continues à l'intérieur et à l'extérieur de la particule. On a déterminé ainsi l'intensité diffusée par les particules dans toutes les directions, en utilisant plusieurs théories.

Commençant par la théorie de Rayleigh, qui décrit la diffusion de la lumière par des particules de faible dimension devant la longueur d'onde de la lumière incidente, comme les gaz et les molécules d'air. En passant par la théorie de Mie qui a pris une grande part de cette étude, car elle est appliquée dans l'étude d'interaction de la lumière avec des particules un peu grosse comme les aérosols y compris les aérosols désertique, dont fait partie notre étude.

On a présenté aussi d'autre mode de diffusion, tel que La théorie de Debye, qui donne la possibilité de quantifier la contribution des différents modes de diffusion au sens de l'optique géométrique : réflexion, réfraction, diffraction, réflexion interne. Et finalement la loi de l'optique géométrique appliquée aux particules de très grande taille par rapport à la longueur d'onde.

Chapitre 3

La méthode de télédétection Lidar

1. Introduction à la télédétection optique

La télédétection optique est une technique qui permet d'étudier de nombreux phénomènes atmosphériques ou terrestres au moyen de capteurs placés au bord d'avions, satellites ou sur le sol. Ces instruments enregistrent les rayonnements émis ou réfléchis par l'objet à cibler. Ces capteurs sont sensibles à la lumière visible mais aussi à d'autres parties du spectre électromagnétique comme l'infrarouge, l'ultraviolet et les micro-ondes.

La représentation graphique des enregistrements du capteur, est obtenue en attribuant des intensités de gris ou de couleurs aux valeurs numériques enregistrées. L'utilisation de différentes combinaisons de valeurs et des traitements spécifiques permet l'extraction d'informations sur certains phénomènes, qui peuvent être utiles en agriculture, en foresterie, en géologie, en hydrologie, en océanographie ou en cartographie.

1.1 Télédétection passive

L'instrument de mesure embarqué ou posé sur le sol capte le rayonnement réfléchi par la cible lorsque le soleil illumine la terre. Le soleil est l'unique source d'énergie. Par exemple pour l'étude de surface terrestre par télédétection optique en utilisant un capteur embarqué sur un avion ou satellite, il n'est pas possible de réaliser des observations la nuit ou quand des nuages masquent le sol. L'observation des régions tropicales n'est pas toujours facile en raison de la couverture nuageuse.

1.2 Télédétection active

Le capteur à son propre énergie pour illuminer la cible, il dégage un rayonnement électromagnétique qui est dirigé vers la cible. Le rayonnement réfléchi est alors perçu et mesuré par le capteur. On utilise des radars ou des lasers comme source d'énergie. Ces rayonnements passent à travers la couverture nuageuse et il est donc possible d'obtenir des images quelles que soient les conditions météorologiques et de jour comme de nuit.

Les images obtenues sont plus difficiles à analyser, mais elles permettent d'obtenir des renseignements sur la topographie, sur la teneur en eau et la rugosité superficielles du sol, sur

l'agencement des éléments du paysage ou de détecter la présence de nappes d'hydrocarbures en mer.

2. Le LIDAR

La quantification des polluants gazeux demeure actuellement le seul moyen pour lutter plus efficacement contre la pollution atmosphérique. Même si les concentrations et les propriétés optiques et physico-chimiques de nombreux polluants gazeux et granulaires sont maintenant bien mesurées à l'aide de capteurs ponctuels ou des instruments passifs déterminants les informations de leurs contenus sur la colonne d'air, le Lidar est l'unique technique permettant l'obtention de la distribution verticale des particules et cartographier en trois dimensions la concentration de ces polluants mais aussi des aérosols atmosphériques qui jouent un rôle important dans le bilan radiatif terrestre.

2.1 Principe de fonctionnement du Lidar

Le Lidar est l'acronyme du terme anglo-saxon (*Light Detection and Ranging*) qui signifie (*Détection et télémétrie l'aide de la lumière*). Cet instrument est né dans les années 60 [Fiocco. G et Smullin. L.D, 1963] après la découverte de l'effet Laser. Il s'agit d'une technique optique active de mesure à distance, par opposition aux techniques passives de télédétection d'une source de rayonnement naturel. Grâce à l'exploitation des propriétés de cohérence spatiale et temporelle spécifiques des sources Laser, le Lidar se différencie aussi des autres instruments de mesure à distance utilisant une source de lumière conventionnelle.

Un Lidar comporte toujours un émetteur et un récepteur (Fig.III.1). L'émetteur est un laser pulse émettant dans un domaine de transparence de l'atmosphère. Après interaction avec l'atmosphère, les photons successivement rétrodiffusés par les couches atmosphériques sont collectés par un télescope et puis détectés par un photomultiplicateur ou une photodiode à avalanche qui les convertira en signal électrique. Ceci va être analysé numérisés et enregistré grâce à une chaîne électronique.

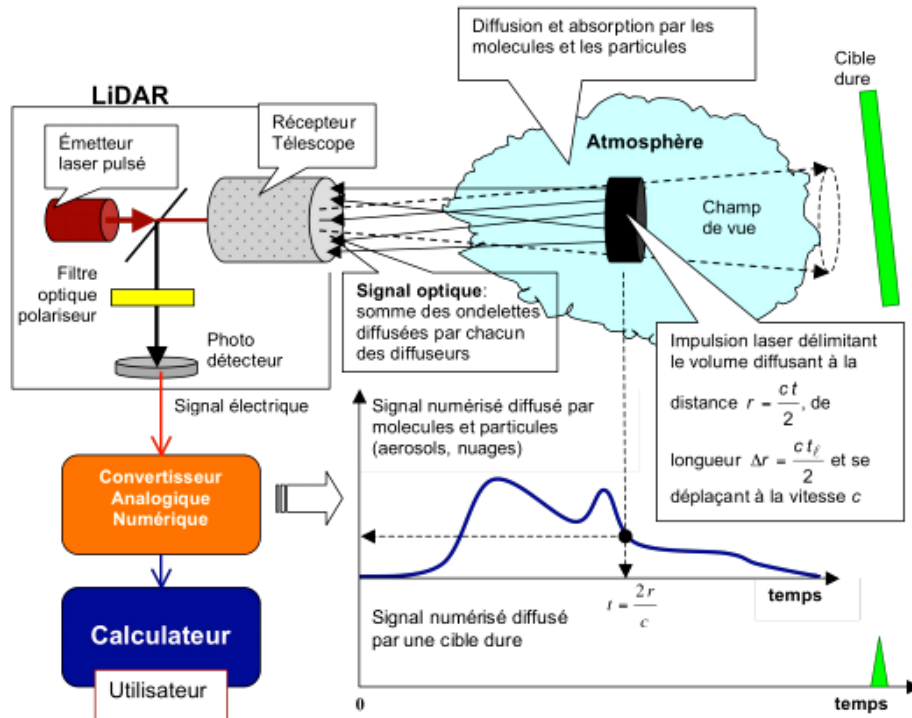


Fig III.1– Schéma de principe du système Lidar

La propagation de l'impulsion laser dans l'atmosphère est suivie par la réception d'une fraction du rayonnement réémis :

- Soit par un obstacle ou une cible : Lidar topographique.
- Soit par rétrodiffusion sur les constituants de l'atmosphère, molécules, aérosols, poussières : Lidar atmosphérique (Fig.III.2).

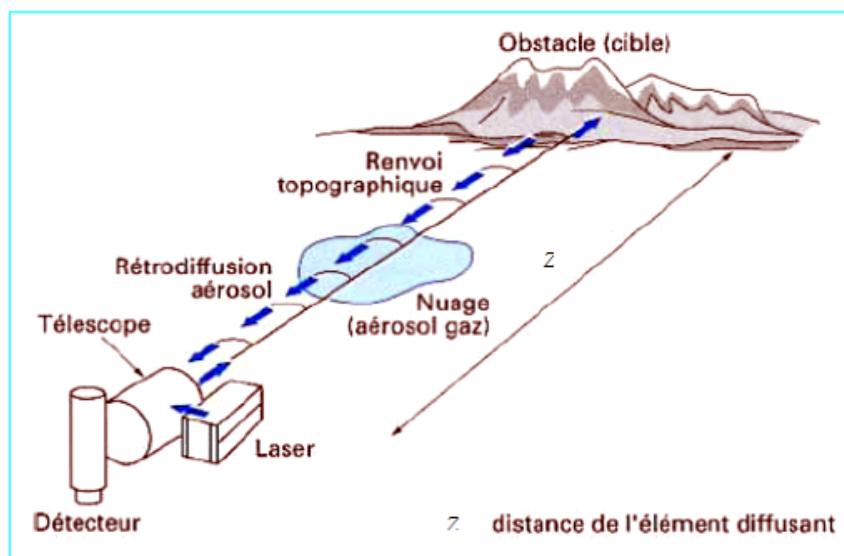


Fig III.2– Principe du Lidar atmosphérique

Le temps écoulé entre l'émission de l'onde et sa réception fournit la distance de la cible à l'émission Laser. L'amplitude du signal et sa dépendance spectrale donnent une indication sur sa nature.

Le Lidar exploite les propriétés de l'interaction entre le rayonnement laser et les constituants de l'atmosphère. Les différents processus d'interaction tels que diffusion, absorption, voire fluorescence, vont conditionner les caractéristiques spectrales et d'intensité du rayonnement mesuré par le dispositif de réception (téléscope et détecteurs appropriés).

Le Lidar fournit ainsi des informations sur la composition et la concentration des différents constituants de l'atmosphère en fonction des processus d'interaction sélectionnés.

Les trois principaux phénomènes de diffusion mis en jeu dans un Lidar sont présentés dans le *tableau III.1*, qui fournit l'ordre de grandeur des sections efficaces correspondantes.

Processus	Caractéristiques	Section efficace de diffusion σ [cm²/sr]
Diffusion élastique : • Mie • Rayleigh	λ réception = λ émission Particules : aérosols, poussières, atomes et molécules	10^{-10} 10^{-26}
Fluorescence	λ réception \neq λ émission Atomes et molécules	10^{-24}
Diffusion Raman	λ réception \neq λ émission Molécules	10^{-29}

Tableau III.1 : Principaux phénomènes de diffusion dans un Lidar

2.2 Intérêts et avantages du Lidar

Le premier avantage du Lidar est lié à la cohérence spatiale des lasers. La faible divergence et la brillance de ces sources permettent un sondage dans toutes les directions avec une excellente résolution spatiale et une bonne élimination du fond continu. On peut ainsi effectuer certaines mesures en plein jour ou dans de mauvaises conditions atmosphériques au moins pour des portées de l'ordre de 1 km (considérées comme modestes pour un Lidar).

Les techniques de mesure de temps de vol de l'impulsion laser conduisent à des mesures de distances très précises. Il est donc possible d'obtenir une cartographie 3D de paramètres atmosphériques (en temps réel) grâce à un seul instrument Lidar bien équipé de moyens informatiques de traitement, stockage et présentation des données.

De même, un autre atout des Lidar (associés aux outils informatiques) est la possibilité de mesurer en continu, qui autorise le contrôle des variations d'une grandeur mesurée et la surveillance d'un site étendu.

Un deuxième avantage essentiel des Lidar tient à la multiplicité des possibilités de mesure offertes par les différentes techniques ou modes de fonctionnement précédemment décrits.

Les Lidar permettent des mesures atmosphériques de densités, de température, de vitesse de vents,... Les qualités spectrales des sources lasers, y compris leur accordabilité, conduisent à des mesures spectroscopiques de haute résolution à distance et donc à la télédétection de nombreuses substances chimiques, dans l'atmosphère troposphérique comme stratosphérique. Pour ces diverses raisons, les Lidar deviennent des instruments importants répondant aussi bien à des objectifs scientifiques de connaissance de l'atmosphère qu'à des besoins de mesure et de contrôle de l'environnement. D'où la multiplication de réalisations et de projets de Lidars, depuis les Lidar au sol portables et mobiles, jusqu'aux instruments embarqués sur avion ou sur satellite (Fig.III.3).

Cette information peut être directement utilisée par les modèles de chimie transport ou les modèles de circulation générale. Elle prend tout son intérêt lorsqu'elle est utilisée en synergie avec des mesures effectuées à partir d'autres capteurs. La mesure Lidar constitue alors un complément utile aux données issues des observations in situ ou passives et fournit des informations innovantes pour une meilleure compréhension de l'atmosphère. Elle trouve de nombreuses applications en qualité de l'air par le suivi des panaches de pollution urbaine ou industrielle, mais également pour l'étude du transfert radiatif.

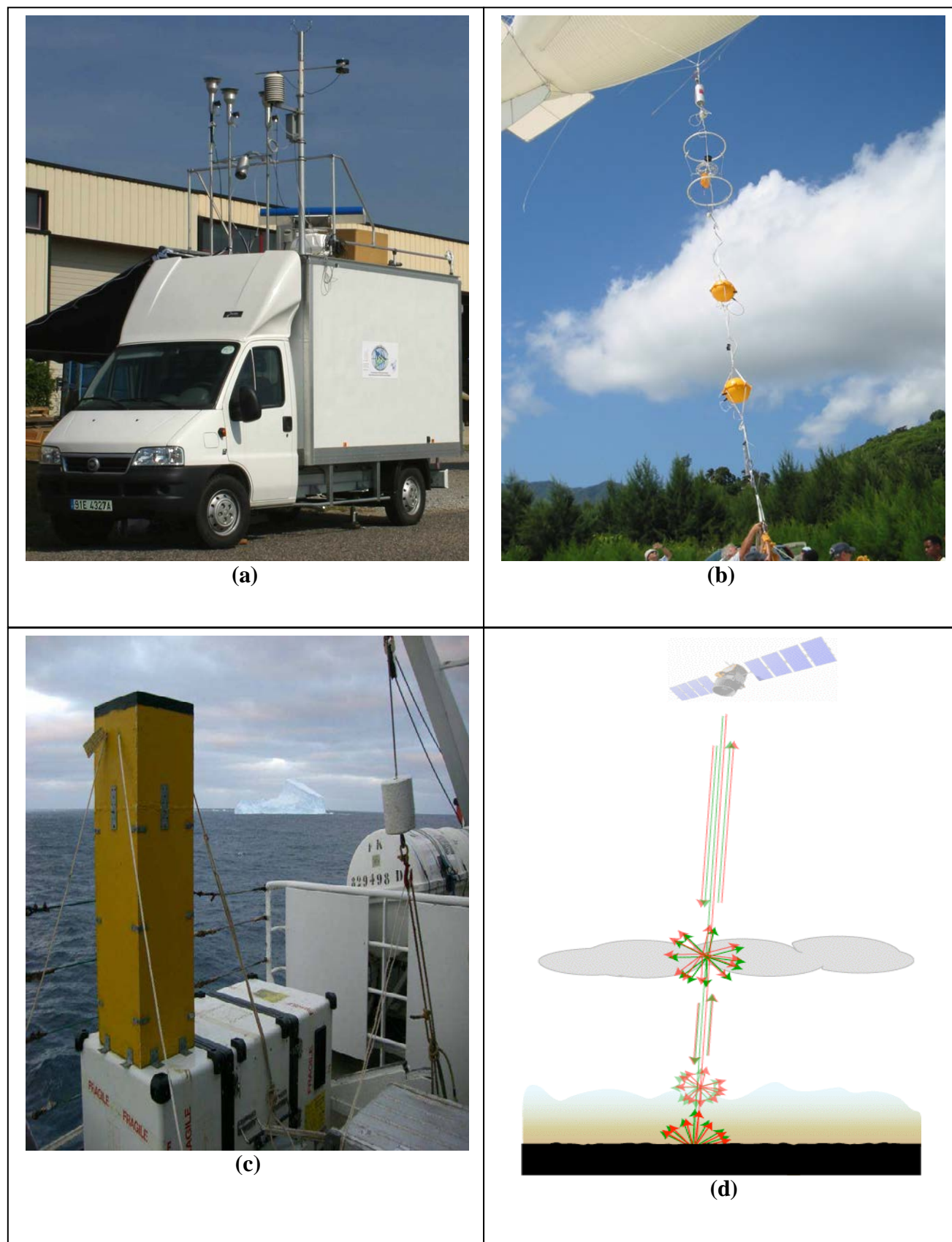


Fig III.3– Exemples de plateformes pouvant embarquer un Lidar. (a) : Lidar LESAA dans un camion, (b) : Lidar LIBAP sur ballon CNES, (c) : Lidar LAUVA sur bateau (Marion Dufresne), (d) : Lidar CALIOP sur plateforme spatiale CALIPSO.

3. Propriétés optiques des particules atmosphériques

La diversité quantitative et qualitative des particules dans les couches atmosphériques semble provoquer l'apparition du phénomène d'interaction avec un grand nombre de longueurs d'ondes du rayonnement solaire, comme elle peut agir négativement sur l'augmentation de température à cause de la rétrodiffusion de la lumière. Néanmoins, en présence d'une partie absorbante comme le suis, la particule absorbe alors le rayonnement tellurique ce qui conduit à un réchauffement des basses couches de l'atmosphère et donc à une modification du gradient vertical de température [Leon et al, 2002].

Quant à l'utilisation de la méthode Lidar, la caractérisation nécessite un minimum de connaissance sur les propriétés optiques pour pouvoir résoudre le phénomène d'interaction avec le laser et le milieu environnant car le rayonnement va être atténué par la présence de différents types de molécules et de particules d'air.

Les paramètres optiques de l'aérosol (coefficients d'extinction, de diffusion et d'absorption, albédo de diffusion simple, fonction de phase et facteur d'asymétrie) peuvent alors être reliés à la distribution granulométrique des aérosols $N(r)$ et à leur indice de réfraction $n(\lambda)$.

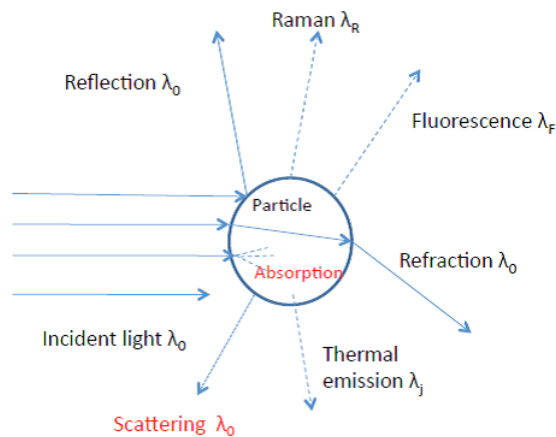


Fig III.4– Interaction lumière-particule [J. H. Seinfeld, S. N. Pandis, 1998]

3.1 L'absorption

La probabilité d'absorption du rayonnement solaire par une particule dépend essentiellement de sa composition chimique alors pour les molécules, elle est liée à leurs caractéristiques énergétiques. Une molécule possède des niveaux énergétiques discrets ou quantifiés associés à des états de rotation, de vibration ou de configuration électronique. En effet un photon peut être absorbé lorsque son énergie correspond à une transition entre le niveau fondamental et le niveau excité ou entre niveaux excités.

Ainsi, l'absorption moléculaire est un phénomène sélectif qui s'est traduit par une transmission spectrale de l'atmosphère présentant des zones transparentes, appelées fenêtres de transmission atmosphériques, et des zones opaques. Or le Lidar doit utiliser une longueur d'onde où seule la diffusion sera considérée et ne correspond à aucune raie d'absorption atmosphérique afin qu'on puisse atteindre des distances verticales lointaines.

On exprime le coefficient d'absorption en fonction du nombre de particules n_i de type i et de section efficace $\sigma_{abs i}$:

$$\alpha_{abs}(z, \lambda) = \sum_{i=1} n_i \cdot \sigma_{abs i}(\lambda) \quad (III.1)$$

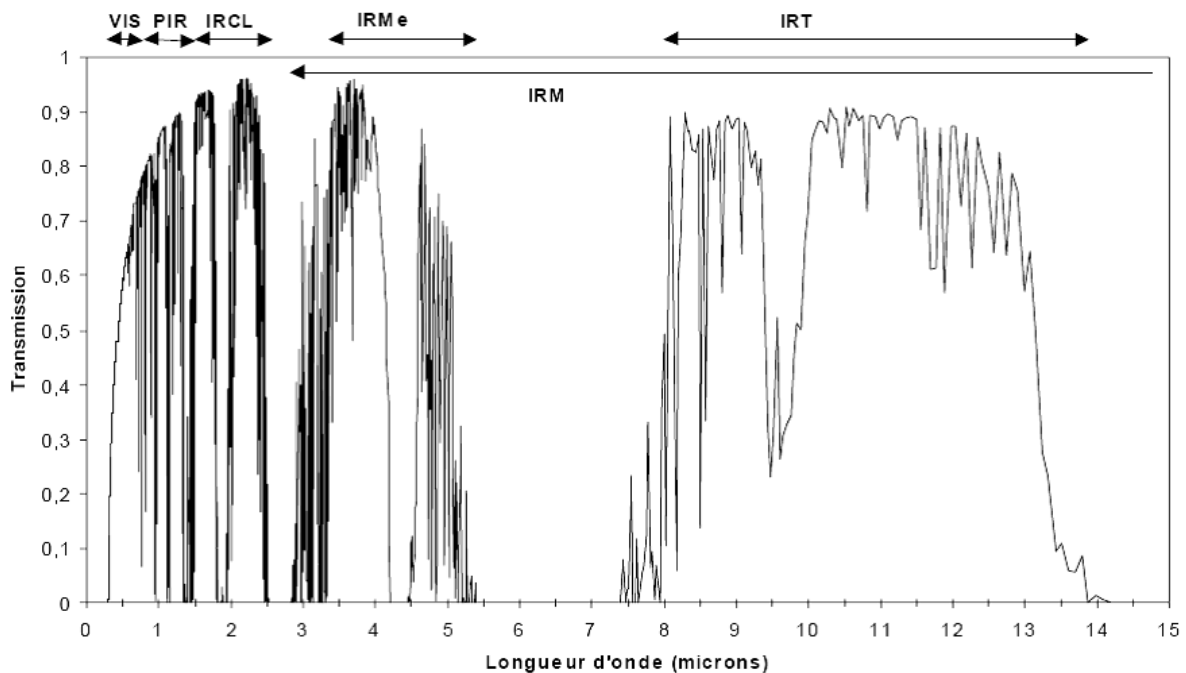


Fig.III.5– Les fenêtres atmosphériques de transmission en fonction de longueurs d'ondes, simulé à l'aide du modèle MODTRAN 2 [Paul et al., 1997, 1999]

Sur les Fig. III.5 a mis en évidence les différents domaines du spectre électromagnétique où l'atmosphère est plus ou moins transparente, ce qui correspond aux longueurs d'onde dans lesquelles l'observation de la terre par satellite par exemple est possible (ceux qu'on appelle les fenêtres atmosphériques) hors du domaine des hyperfréquences.

Une fenêtre atmosphérique est une partie du spectre électromagnétique pour laquelle l'absorption par l'atmosphère de la terre est minimale. Dans le domaine optique, outre la fenêtre du visible, les deux fenêtres principales se situent dans l'infrarouge, entre 3 et 5 μm et 8 et 14 μm environ.

Les domaines spectraux où la transparence de l'atmosphère est nulle ou quasi nulle sont le résultat de l'absorption du rayonnement électromagnétique par l'ensemble des gaz qui constituent l'atmosphère, soit principalement O_2 , N_2 , H_2O , CO_2 , CO , N_2O , NO_2 , NO et CH_4 . C'est cette absorption qui rend l'atmosphère opaque à certaines longueurs d'onde.

Entre 0,3 et 15 μm (Fig. III.5), il apparaît clairement six fenêtres atmosphériques :

(0,4-0,78 μm), (0,8-1,1 μm), (1,1-2,5 μm), (3,4-4,2 μm), (4,5-5,2 μm) et (7,5-14 μm).

Sur le *tableau III.2*, on présente ces plages spectrales avec la nomenclature proposée par la Commission de Terminologie de la Télédétection Aérospatiale (COMITTAS) [Paul et al, 1997] et regroupées dans trois grands domaines : le visible, le proche infrarouge (PIR) et l'infrarouge moyen (IRM). Cependant, dans l'infrarouge moyen, il existe deux domaines spectraux différents qu'il convient.

Grands Domaines spectraux	Subdivisions Longueur d'onde (μm)	Remarques
Visible (Visible) 0,4-0,78 μm	Panchromatique 0,4-0,7 μm	Affecté par l'ozone, la diffusion moléculaire, la diffusion et l'absorption par les aérosols. Une bande d'absorption de l'oxygène à 0,76 μm .
Proche infrarouge (PIR) 0,8-3 μm	Proche infrarouge (PIR) 0,8-1,1 μm Infrarouge de courte longueur d'onde (IRCL) 1,1- 2, 5 μm	Affecté principalement par la vapeur d'eau (0,915-0,97 μm , 1,1-1,16 μm). La diffusion moléculaire et la diffusion ainsi que l'absorption par les aérosols y sont plus faible que dans le visible. Le domaine IRCL comprend en fait deux bandes (1,5-1,8 μm) et (1,95-2,5 μm) à cause de l'absorption de la vapeur d'eau. La diffusion par les aérosols est négligeable
Infrarouge moyen (IRM) 3-30 μm	Infrarouge médian (IRMe) 3,4-5,2 μm	Le domaine (3,4-4,2 μm) est affecté principalement par la vapeur d'eau entre 3,4 et 4 μm et par l'azote (N_2) à partir de 3,9 μm . Le domaine (4,5-5,2 μm) est très affecté par la vapeur d'eau.
	IR thermique IRT 7,5-14 μm	Transmission nulle entre 5,5 et 7,5 μm due à la vapeur d'eau. Affecté par l'absorption de l'ozone (9,5 μm). Domaine sensible à la vapeur d'eau.

Tableau III.2 – Les trois principaux domaines spectraux et les subdivisions correspondant aux fenêtres atmosphériques, d'après la terminologie du COMITTAS [Paul et al, 1997].

3.2 La diffusion

La diffusion est un processus physique qui intervient à toutes les longueurs d'ondes dans des proportions variables. Elle contribue à l'atténuation globale du rayonnement électromagnétique, donc à l'extinction, et se produit sans échange d'énergie entre les photons incidents et les molécules rencontrées. C'est le cas de la diffusion de Rayleigh ou celle de Mie. De la même manière que le coefficient d'absorption, on exprime le coefficient de diffusion :

$$\alpha_{diff}(z, \lambda) = \sum_{i=1} n_i \cdot \sigma_{diff_i}(\lambda) \quad (III.2)$$

Où : σ_{diff_i} est la section efficace de diffusion.

3.3 L'extinction

Le coefficient d'extinction d'une population de particules dépend de la capacité de chacune d'elles à absorber et /ou à diffuser le rayonnement. C'est donc la somme des coefficients d'absorption et de diffusion à la même distance z et pour une même longueur d'onde :

$$\alpha_{ext}(z, \lambda) = \alpha_{abs}(z, \lambda) + \alpha_{diff}(z, \lambda) \quad (III.3)$$

3.4 La rétrodiffusion

Lorsque l'on envoie une impulsion de lumière de grande puissance dans l'atmosphère, une partie de l'énergie lumineuse est diffusée par les particules et les molécules constituant le milieu, et une autre partie se renvoie vers la source.

En collectant cette lumière et en la détectant, on peut recueillir un signal, qui une fois analysé, permet de contrôler la qualité de l'air et le niveau de pollution.

$$\alpha_{back}(z, \lambda) = \sum_{i=1} n_i \cdot \sigma_{back_i}(\lambda) \quad (III.4)$$

3.5 L'épaisseur optique

L'intensité d'un faisceau qui traverse un milieu absorbant et diffusant est diminuée en raison de l'atténuation par un facteur $e^{-\tau}$, où τ est définie comme étant l'épaisseur optique qui définit l'opacité d'une tranche atmosphérique d'altitude z , il est donné par cette relation :

$$\tau = \int_0^z \alpha_{ext}(z) dz \quad (III.5)$$

3.6 La fonction de phase

La fonction de phase d'une population de particules $P(\lambda, \theta)$ correspond à la dépendance angulaire de l'intensité du rayonnement diffusé, c'est-à-dire à la probabilité qu'un photon

arrivant sur une particule soit diffusé dans la direction d'angle θ dans un angle solide élémentaire. La théorie de Mie montre que l'intensité de diffusion vers l'avant augmente avec la taille des particules. Elle caractérise le processus de diffusion et représente la distribution statistique des photons renvoyés en fonction de l'angle de diffusion θ entre la direction du rayonnement incident et celle du rayonnement diffusé. La valeur maximale de $p(\theta)$ est I :

$$P(\lambda, \theta) = \frac{I}{4\pi} \int_0^{4\pi} P_{11}(\Omega) d\Omega = I \quad (III.6)$$

$$\text{Où : } d\Omega = \sin(\theta) d\theta d\phi \quad (III.7)$$

$d\Omega$ 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).

3.7 Le facteur d'asymétrie

Quel que soit le type d'aérosol, l'allure générale de la fonction de phase est caractérisée par une forte probabilité de diffusion vers l'avant (qui correspond au phénomène de diffraction) et une plus légère augmentation vers l'arrière (qualitativement en rapport avec le phénomène de l'arc-en-ciel). Le paramètre qui traduit simplement cette anisotropie de la diffusion est le facteur d'asymétrie g , défini comme la valeur moyenne du cosinus de l'angle de diffusion sur l'ensemble des directions de diffusion:

$$g(\lambda) = \frac{I}{2} \int_0^\pi P(\theta) \cos(\theta) \sin(\theta) d\theta \quad (III.8)$$

- $g(\lambda) = 1$: particule diffusant uniquement vers l'avant.
- $g(\lambda) = -1$: toute l'énergie est diffusé vers l'arrière, c'est à dire rétrodiffusée.
- $g(\lambda) = 0$: La diffusion est isotrope, aucune direction n'est privilégiée, c'est le cas de la diffusion de Rayleigh.

3.8 L'albédo de simple diffusion

C'est un paramètre pertinent qui caractérise les effets radiatifs des aérosols. C'est le rapport entre le coefficient de diffusion et celui de l'extinction

$$\omega_0 = \frac{\alpha_{diff}}{\alpha_{ext}} = \frac{\alpha_{diff}}{\alpha_{abs} + \alpha_{diff}} \quad (III.9)$$

3.9 L'exposant d'Angstrom [Angstrom, 1964]

C'est un paramètre qui définit la dépendance spectrale des coefficients d'extinction et caractérise la taille et la nature des aérosols. Typiquement, les grosses particules (poussière désertique par exemple) ont des valeurs inférieurs à 1, tandis que les petits ont des valeurs supérieurs à 1.

$$a = \frac{\ln\left(\frac{\alpha_{ext}(\lambda_1)}{\alpha_{ext}(\lambda_2)}\right)}{\ln\frac{\lambda_1}{\lambda_2}} \quad (III.10)$$

4. Mesure par Lidar

Selon le mode d'interaction établi entre la propagation de l'onde lumineuse du laser et les molécules et particules de l'atmosphère (vu dans le chapitre II), on peut distinguer plusieurs familles de Lidar :

- Le Lidar à rétrodiffusion sensible à la réflectivité des couches atmosphériques traversées par le faisceau laser et à l'atténuation du rayonnement optique le long du trajet aller-retour,
- Le Lidar à absorption différentielle (DIAL : Differential Absorption Lidar) qui repose sur l'émission simultanée de deux impulsions laser de longueurs d'onde proches pour déterminer la concentration d'un polluant gazeux dans l'atmosphère, ou même la température (si l'on choisit une molécule comme l'oxygène dont la densité est connue),
- Le Lidar Doppler mesurant la vitesse radiale du vent par le décalage de longueur d'onde entre les ondes émises et reçues,
- Le Lidar Raman qui permet la mesure de la concentration chimique d'un élément, le rapport d'humidité ou la température en repérant le décalage en fréquence lié à une diffusion anélastique de la part de la cible (raies Stokes et anti-Stokes caractéristiques de la molécule rencontrée).
- Le Lidar femtoseconde détecte la présence de gaz polluants sur une grande étendue spectrale, de l'UV à l'IR jusqu'à 5 μm . Les impulsions ultrabreves (100 fs) produisent en effet de fortes puissances de l'ordre du Terawatt qui induisent une variation spatiale de l'indice de réfraction non linéaire responsable de la focalisation par effet Ker et un effet de diffraction qui, par compensation, permettent de guider la lumière sur de longues distances, mais aussi une variation temporelle de la phase participant à la création d'un continuum de

lumière blanche. C'est la rétrodiffusion de ce continuum qui est analysée par un spectromètre couple à un télescope.

4.1 Lidar à rétrodiffusion

4.1.1 Définition

Le Lidar à rétrodiffusion est le plus ancien (1968) et le plus simple des Lidar. Il permet l'étude des processus de diffusions élastiques dans l'atmosphère, accompagnée d'une détection directe de la puissance rétrodiffusée. L'atmosphère peut ainsi être sondée pour restituer les propriétés des aérosols ou des nuages.

Lorsqu'un faisceau laser traverse l'atmosphère, il est diffusé dans toutes les directions par diffusion Rayleigh pour les molécules de plus petites dimensions et la diffusion de Mie pour les aérosols (poussières, gouttelettes d'eau). Une partie de la lumière étant en particulier réémise vers l'arrière, on peut mesurer l'amplitude de cette diffusion en fonction de la distance par l'intermédiaire d'un système d'acquisition et de traitement des données Lidar.

Le système Lidar à rétrodiffusion est constitué de plusieurs éléments (Fig. III.1) :

- Le module d'émission composé de la source laser et du dispositif optomécanique dirigeant le faisceau vers les cibles atmosphériques est caractérisé par l'énergie émise, la longueur d'onde, la fréquence de tirs, la durée d'impulsion, la largeur et la stabilité spectrales de la raie laser, et le rendement optique.
- Le module de détection composé d'une optique collectant le signal rétrodiffusé, de filtres interférentiels, d'une séparatrice de polarisation et d'un détecteur (le photomultiplicateur) réalisant la conversion en signal électrique. Le télescope de réception est caractérisé par sa surface collectrice, son champ de vue et son rendement optique. Le photomultiplicateur est caractérisé par son rendement quantique et sa puissance équivalente de bruit (Noise équivalent power : NEP). Lorsque le flux de photons incidents atteignant la cathode du photomultiplicateur est inférieur au seuil de saturation (~300 photons par μs) pour que le nombre de photoélectrons arrachés par effet photoélectrique puisse être considéré linéaire avec le nombre de photons incidents, on utilise le mode de détection (comptage de photons). Un compteur enregistre alors le nombre d'impulsions électriques générées par les photoélectrons. Dans le cas où le nombre de photons peut aboutir à une saturation, on a recours au mode de détection analogique. Le courant moyen de sortie du détecteur est ici échantillonné par un analyseur de transitoires.

- Le module d'acquisition composé d'un préamplificateur du signal électrique, de filtres, d'un convertisseur analogique-numérique et d'un dispositif de stockage. Le préamplificateur est caractérisé par sa bande passante permettant de conserver la résolution verticale de la mesure Lidar, son gain et sa puissance équivalente de bruit (NEPA). Le convertisseur analogique-numérique est caractérisé par la fréquence d'échantillonnage dans le respect du théorème de Shannon.

La Fig. III.6 montre le schéma simplifié du système d'acquisition des données Lidar qui permet d'obtenir simultanément des mesures concernant les petits champs perpendiculaire et parallèle et le grand champ de vue.

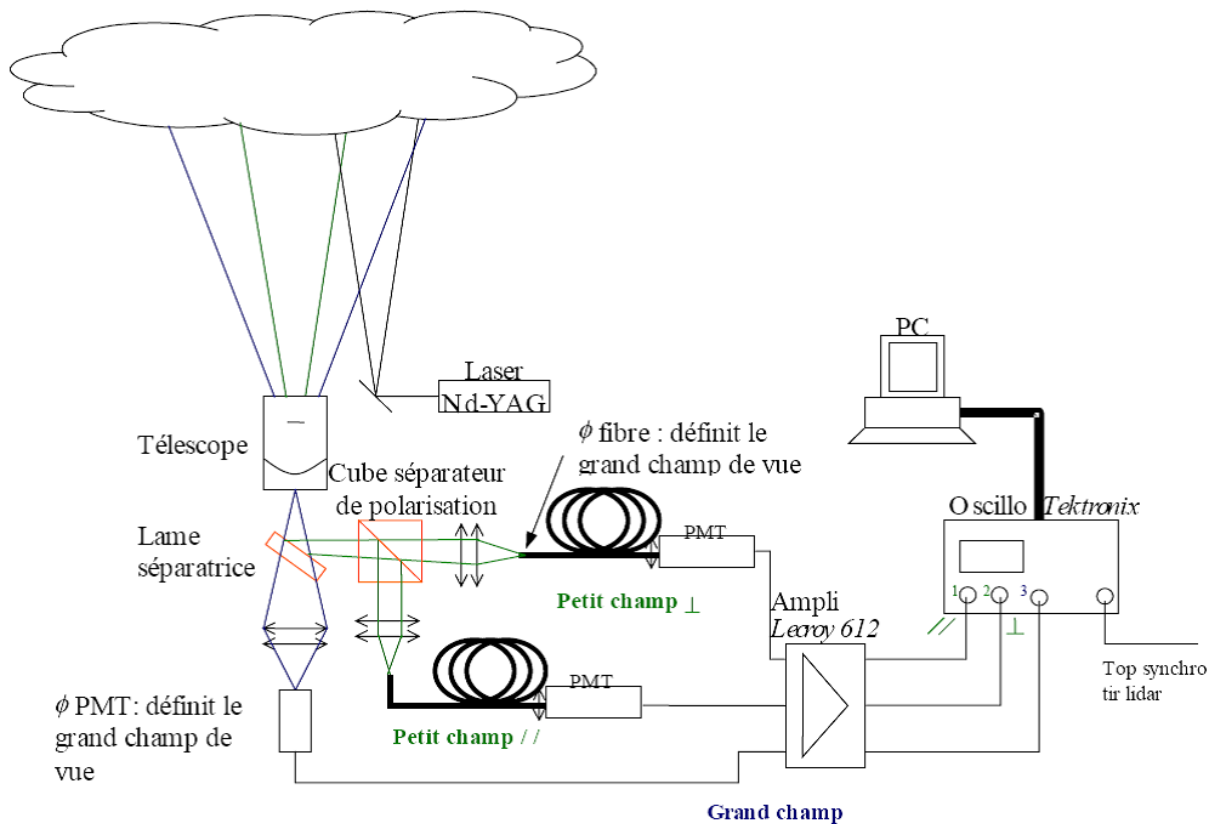


Fig III.6 – Schéma simplifié du montage Lidar à rétrodiffusion

A titre d'exemple, le système Lidar aéroporté LESAA (Lidar pour l'Etude et le Suivi de l'Aérosol Atmosphérique) développé par le CEA en collaboration avec le CNES (Centre National d'Études Spatiales) mesure la réflectivité atmosphérique à 532 et 1064 nm dans la basse troposphère au-dessus de zones polluées [Chazette et al, 2005b, Raut and Chazette, 2007]. Il peut être embarqué dans un petit camion et permet le suivi de panaches de polluants émis par les villes ou les zones industrielles. L'optique de réception permet la séparation du faisceau rétrodiffusé en 2 voies selon son état de polarisation : l'une des deux voies est le

signal polarisé parallèlement au faisceau émis par la source laser, l'autre voie détecte le signal polarisé perpendiculairement (Fig. III.7).

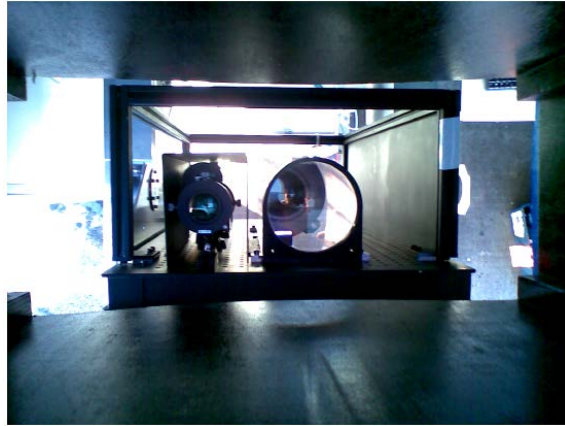


Fig III.7–Le système instrumentale Lidar LESAA, vue de haut.

4.1.2 Equation

Le nombre de photons reçus, de longueur d'onde λ provenant de la distance z , est donné par l'équation Lidar suivante (sans diffusion multiple) [Wolf. J.P, 1990] :

$$I(z, \lambda) = I_0(\lambda) \frac{A_0}{z^2} \beta(z, \lambda) \Delta z \xi(z, \lambda) \exp\left(-2 \int_0^z \alpha_{ext}(z, \lambda) dz\right) \quad (III.11)$$

- $I_0(\lambda)$ est le nombre de photons émis par le laser.
- A_0 est l'aire de réception du télescope.
- Δz est la résolution spatiale du système, déterminée principalement par la durée d'impulsion laser $\Delta \tau$ ($\Delta z = c\tau/2$), ainsi que par la fréquence de coupure de l'électronique associée. Le facteur 2 intervenant dans le calcul de la résolution spatiale est due au fait que l'on effectue un aller retour ($z = ct/2$). Bien généralement dans l'ultra violet, les temps d'intégration électroniques sont rapides et la résolution spatiale est gouvernée par la durée d'impulsion. Cependant dans le domaine infrarouge, il est difficile de trouver des détecteurs suffisamment rapides et la résolution spatiale devient alors égale à la fréquence de coupure du détecteur.
- $\alpha(z, \lambda)$ représente le coefficient d'extinction de volumique, exprimé en m^{-1}

$$\alpha_{ext}(z, \lambda) = \alpha_{ext}^{molec}(z, \lambda) + \alpha_{ext}^{Aero}(z, \lambda) \quad (III.12)$$

$\alpha_{ext}^{Aero}(z, \lambda)$ et $\alpha_{ext}^{molec}(z, \lambda)$: sont respectivement les coefficients d'extinctions des aérosols et des molécules d'air de très faibles dimensions.

- $\beta(z, \lambda)$ est le coefficient de rétrodiffusion atmosphérique total, exprimé en $sr^{-1}.m^{-1}$

$$\beta(z, \lambda) = \beta_{molec}(z, \lambda) + \beta_{Aero}(z, \lambda) \quad (III.13)$$

$\beta_{Aero}(z, \lambda)$ et $\beta^{molec}(z, \lambda)$ sont respectivement les coefficients de rétrodiffusions des aérosols et des molécules atmosphériques.

$\alpha_{ext}^{molec}(z, \lambda)$ et $\beta_{molec}(z, \lambda)$ peuvent être calculés sans ambiguïté au moyen des informations de pression $p(z)$ et de température $T(z)$ connues par ailleurs (capteurs in situ, radiosondage) à partir des équations suivantes obtenues à partir de la théorie de Rayleigh et de la loi des gaz parfaits [Seinfeld J, 1984]:

$$\alpha_{ext}^{molec}(z, \lambda) = 1.66 \cdot \left(\frac{550 \cdot 10^{-9}}{\lambda} \right)^{4.09} \left(\frac{p(z) 288(K)}{1013(Pa) T(z)} \right) 10^{-6} (m^{-1}) \quad (III.14)$$

$$\beta_{molec}(z, \lambda) = 1.38 \cdot \left(\frac{550 \cdot 10^{-9}}{\lambda} \right)^{4.09} \left(\frac{p(z) 288(K)}{1013(Pa) T(z)} \right) 10^{-6} (sr^{-1} m^{-1}) \quad (III.15)$$

La connaissance de la contribution moléculaire permet d'identifier une zone du profil z_0 pour laquelle la contribution des particules au signal est négligeable. Cet étalonnage des profils appelé normalisation, est possible sur les zones du profil qui présentent une décroissance exponentielle de la concentration en molécules dans l'air, caractéristique de la distribution avec z . Si nous divisons donc le profil $I(z).z^2$ par sa valeur à l'altitude z_0 et multiplions par $\beta_m(z_0)$, nous obtenons une grandeur à partir du signal Lidar que nous définissons comme rétrodiffusion apparente. Elle s'écrit :

$$\beta^{app}(z) \Big|_{z_0} = \frac{\beta(z)}{\beta_m(z_0)} \cdot T(z_0, z)^2 \quad (III.16)$$

$$\text{Où : } T(z_0, z)^2 = \exp \left(-2 \int_0^z \alpha_{ext}(z, \lambda) dz \right)$$

La notation $/z_0$ indique que le profil est normalisé à l'altitude z_0 .

Ce coefficient s'écarte du profil de rétrodiffusion par effet de la transmission aller-retour et il dépend de l'altitude z_0 choisie. Cette grandeur peut être obtenue directement à partir des signaux Lidar. Elle est fondamentalement fonction de la distribution verticale des diffuseurs

(des aérosols, des nuages et des molécules). Elle sera utilisée dans la suite du travail pour décrire qualitativement les scènes atmosphériques.

- $\xi(z, \lambda)$ représente l'efficacité de détection du système Lidar. L'efficacité de détection prend en compte tous les facteurs optiques et géométriques composant le télescope. Elle peut être décomposée en deux parties indépendantes:

$$\xi(z, \lambda) = \kappa(z, \lambda) \cdot Y(z, \lambda) \quad (III.17)$$

Où $Y(z)$ représente le recouvrement entre les champs de vision de l'émetteur et du récepteur. Il est appelé facteur de compression géométrique. $\kappa(z, \lambda)$ correspond au facteur de transmission spectrale du système de détection (monochromateur, filtres spectraux, réflectivité des miroirs...). Il tient compte de l'atténuation géométrique et de l'atténuation optique supposée constante sur la largeur spectrale du rayonnement rétrodiffusé. Le signal reçu dans les premiers mètres sondes ne correspond en effet pas à la totalité du signal que devrait recevoir le Lidar du fait d'un recouvrement partiel. Ce facteur de recouvrement dépend de la géométrie du système (Fig. III.8).



Fig III.8—Représentation schématique de la zone de recouvrement

Ce facteur est égal à 1 lorsque le recouvrement entre l'émission et la réception est parfait, il est inférieur à 1 dans le cas contraire. A proximité de l'émission laser, ce facteur est même nul, entraînant également la nullité du signal Lidar : aucune information sur l'atmosphère n'est fournie par le Lidar dans cette zone aveugle.

Notons, en particulier, que le signal rétrodiffusé décroît globalement avec le carré de la distance z en raison de l'angle solide Ao/z^2 formé par l'aire du détecteur Ao et que la dépendance du signal vis à vis de la concentration en aérosols est incluse dans deux

coefficients de rétrodiffusion β et l'extinction atmosphérique totale α_{ext} . Ce dernier terme permet de mesurer les concentrations de polluants d'une manière sélective par absorption différentielle (DIAL, Differential Absorption Lidar). On utilise alors les différences Δk de section efficace d'absorption du polluant (deux longueurs d'onde différentes par exemple) pour en déduire sa concentration.

Notons en particulier qu'on peut prendre également en compte la contribution d'une source de bruit parasite issue de la luminance du fon de ciel au signal collecté par le télescope. On peut réécrire l'expression du signal Lidar sous la forme :

$$I(z, \lambda) = I_0(\lambda) \frac{A_0}{z^2} \beta(z, \lambda) \Delta z \xi(z, \lambda) \exp\left(-2 \int_0^R \alpha(z, \lambda) dz\right) + S_{FC}(z, \lambda) \quad (III.18)$$

S_{FC} est appelé signal de fond de ciel est donné en mode analogique par [Measures, 1984] :

$$S_{FC}(z, \lambda) = A \cdot \pi \cdot G_A \cdot G \cdot F(z) \cdot \left(\frac{\varphi}{2}\right)^2 \cdot \Delta \lambda \cdot L_c(\lambda) \quad (III.19)$$

Avec : G_A le gain du préamplificateur, G le gain ou sensibilité du photomultiplicateur (en $A \cdot W^{-1}$), F_λ la bande passante du filtre interférentiel à la réception, $L_c(\lambda)$ est la luminance du ciel à la longueur d'onde λ (luminance solaire diffusée ou réfléchie) et φ l'ouverture plein angle du télescope (champ de vue de détections).

Pratiquement, la contribution du fon de ciel pour les photons provenant du rayonnement solaire peut être considérée à haute altitude. La procédure consiste à utilisée le mode de mesure de (pré-trigger) qui correspond à la mesure du signal reçu avant l'émission laser (déclenchement Q-Switch). La Fig.III.9 présente le profile Lidar effectué par la campagne LAUVA (Lidar Aerosol Ultra-Violet Aéroporté) développé par le CEA et le CNRS durant la période 26 mai 2005 à Paris. La courbe en rouge c'est celle qui correspond à la luminance de ciel tandis que le signal corrigé qui se montre en noir est le signal brut.

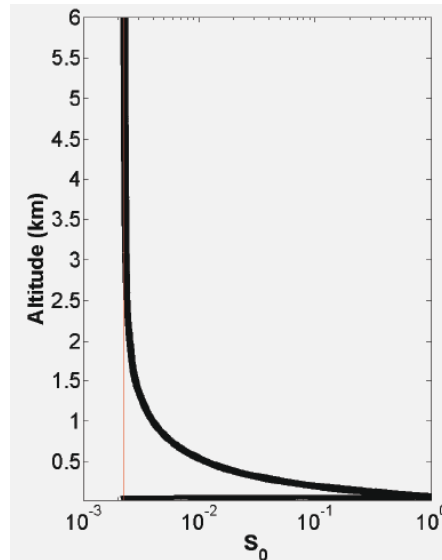


Fig III.9– Ensemble des profils obtenus par le Lidar LAUVA en visée verticale le 26 mai 2005 à Paris. Les profils bruts (noir) et signal du fond de ciel (rouge).

La puissance d'un Lidar est usuellement définie par le produit $I_0.A$ et s'exprime en $W.m^2$. Pour atteindre une grande portée et une précision satisfaisante, il conviendra donc d'augmenter ce produit, on choisira un laser de grande puissance moyenne, celle-ci étant proportionnelle au produit du nombre de photons pulsés par le taux de répétition. A même puissance moyenne on choisira le laser fournissant le plus grand nombre de photons pulsés si on souhaite travailler de jour pour améliorer le rapport signal sur bruit. En ce qui concerne l'augmentation de la surface collectrice A , la tendance a été jusqu'à récemment d'utiliser des télescopes de plus en plus grands quitte à utiliser des mosaïques de miroirs dont le rendement laissait à désirer.

Notons que le profil obtenu dépend de l'état de polarisation. On peut alors obtenir des informations additionnelles sur la forme des diffuseurs en comparant les profils Lidar à deux polarisations différentes (Fig III.6). Le paramètre adapté est le rapport de dépolarisation défini par :

$$\delta(\lambda,z) = I_{\perp}/I_{\parallel} \quad (II.20)$$

I_{\perp} et I_{\parallel} désignent respectivement les signaux dans le même axe de polarisation de l'émission laser polarisée linéairement et dans l'axe perpendiculaire.

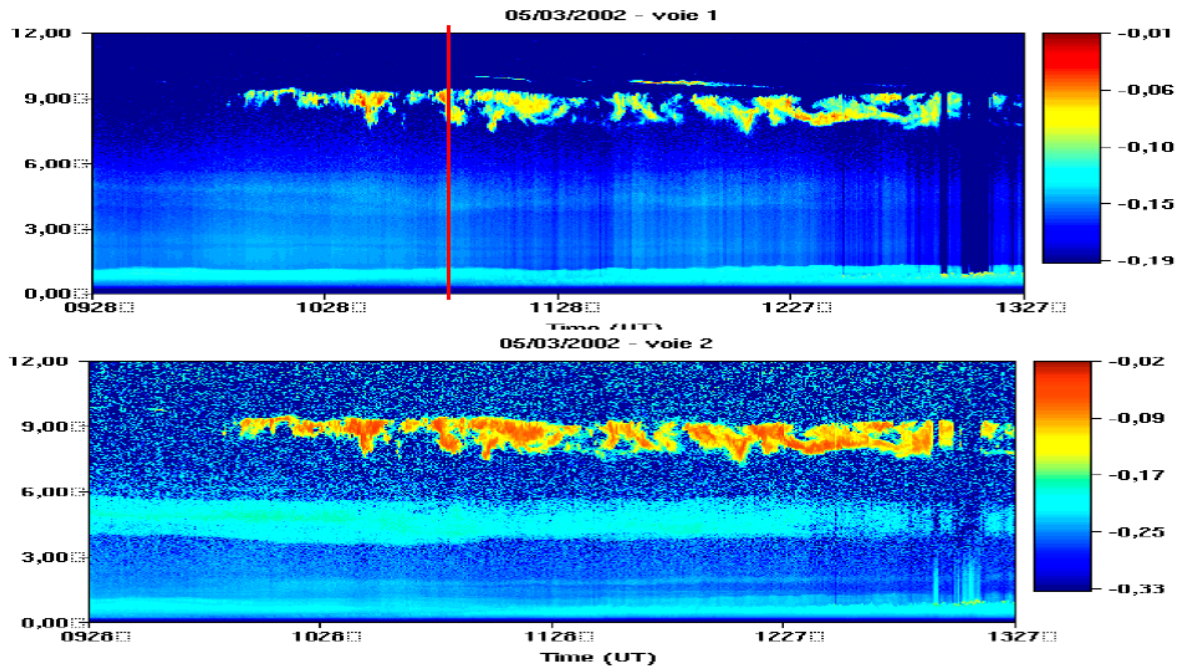


Fig III.9– Exemple de signal Lidar $I(z)z^2$ en fonction du temps de l'ENSSAT dédié à l'étude des nuages d'altitude de type cirriforme ainsi qu'à l'étude des aérosols de la couche limite atmosphérique et de la troposphère libre : 532 nm parallèle (figure du haut) et 532 nm perpendiculaire (figure du bas)

4.1.3 Inversion de l'équation Lidar

La procédure d'inversion de l'équation Lidar nous permet de restituer les paramètres optiques des aérosols directement à partir des mesures Lidar (c'est-à-dire extraire les paramètres α et β à partir de signal Laser). Ce problème inverse est ardu à cause de la forme intégrale de l'expression à inverser. De plus, on se trouve en présence de deux quantités à déterminer, les coefficients d'extinction et de rétrodiffusion à chaque distance. Il est donc indispensable d'effectuer des hypothèses sur α_{ext} et β afin de permettre un traitement du signal Lidar.

4.1.3.1 Atmosphère sans contribution de gaz

4.1.3.1.1 Une atmosphère homogène par zone

Pour des distances lointaines, on peut réécrire Equ. III.11 sous la forme suivante, en faisant extraire le facteur d'atténuation dû à la diminution de l'angle solide de réception :

$$I(z, \lambda) = C \beta(z, \lambda) \exp\left(-2 \int_0^R \alpha_{ext}(z, \lambda) dz\right) \quad (III.21)$$

La dérivée logarithmique de cette équation par rapport à l'altitude nous donne une équation différentielle d'ordre 1 dite équation de Bernoulli :

$$L(z, \lambda) = \ln(z^2 \cdot I(z, \lambda)) = \ln(Cte) + \ln(\beta(z, \lambda)) - 2 \int_0^z \alpha_{ext}(z, \lambda) dr \quad (III.22)$$

$$\beta = \beta_{Aérosols} + \beta_{Molécules} ; \alpha = \alpha_{Aérosols} + \alpha_{Molécules}$$

$$\frac{dL(z, \lambda)}{dz} = \frac{1}{\beta} \cdot \frac{d\beta(z, \lambda)}{dz} - 2\alpha_{ext}(z, \lambda) \quad (III.23)$$

Cette équation est à la base de la méthode des pentes [Frejafon, E, 1998], qui consiste à supposer que l'atmosphère est homogène par zones. Dans chaque zone homogène, on peut ainsi négliger le terme β de Equ. III.23 :

$$\frac{dL(z, \lambda)}{dz} \cong -2\alpha(z, \lambda) \quad (III.24)$$

Ceci est à la base de la méthode d'inversion des pentes. Sur chaque intervalle où $L = L(z)$ apparaît comme étant presque une droite, l'ajustement de la pente de la droite des moindres carrés sur la courbe L est utilisé comme la meilleure estimation de dL/dz . De plus, une atmosphère inhomogène peut, en première approximation, être considérée comme homogène sur de petits intervalles, la méthode des pentes permet alors de déterminer $\alpha_{ext} = \alpha_{ext}(z)$. En regardant Equ. III.23, il est clair que ceci équivaut à ce que $\beta^1 \cdot d\beta/dz \ll 2\alpha_{ext}$ au moins sur la plus grande partie de la courbe de L . Cependant cette hypothèse n'est pas bien justifiée pour de nombreuses situations intéressantes comme des conditions de nuages, de brouillard, de panache et de poussières.

4.1.3.1.2 Une atmosphère inhomogène par zone

4.1.3.1.2.1 Proportionnalité linéaire entre la variation des paramètres optiques d'extinction et rétrodiffusion

Pour pouvoir résoudre de manière analytique Equ. III.23 lorsque $d\beta/dz \neq 0$, il faut nécessairement connaître ou supposer une relation entre $\alpha_{ext}(z, \lambda)$ et $\beta(z, \lambda)$. Cette relation est bien connue dans le cas des gaz :

$$\frac{\alpha_{ext}^{molec}}{\beta_{molec}} = \frac{8\pi}{3} \quad (III.25)$$

Mais cette relation devient très difficile à déterminer dans le cas de la diffusion par des aérosols, de par la diversité de leurs formes, taille et composition. Cependant, de nombreuses études théoriques et expérimentales montrent que dans les cas où la contribution des particules domine par rapport à celle des gaz atmosphériques ($\beta \cong \beta_{Aéro}$, $\alpha \cong \alpha_{Aéro}$), (dans le

cas contraire il faudra soustraire les paramètres Rayleigh avant), cette relation peut s'écrire sous la forme d'une loi de puissance [Klett, 1985] :

$$\beta(z, \lambda) = C_0 \alpha_{ext}(z, \lambda)^K \quad (III.26)$$

Où C_0 est une constante et K est paramètre de Klett dépend de la longueur d'onde et des propriétés des aérosols mais est généralement compris entre 0,67 et 1. Ces valeurs sont des valeurs empiriques moyennes déterminées à partir d'expériences (Etude de l'impaction radiatif des aérosols dans la couche limite planétaire). Alors Equ. III.23 prend la forme suivante :

$$\frac{dL}{dz} = \frac{K_{Klett}}{\alpha_{ext}(z, \lambda)} \frac{d\alpha_{ext}(z, \lambda)}{dz} - 2\alpha_{ext}(z, \lambda) \quad (III.27)$$

Cette expression est équation différentielle d'ordre 1 dite de Bernoulli dont la solution est calculée par la méthode de Klett.

$$\alpha_{ext}(z, \lambda) = \frac{e^{\frac{L(z, \lambda) - L(z_0, \lambda)}{K_{Klett}}}}{\frac{1}{\alpha(z_0, \lambda)} + \frac{2}{K_{Klett}} \int_z^{z_0} e^{\frac{L(r, \lambda) - L(z_0, \lambda)}{K_{Klett}}} dr} \quad (III.28)$$

Dans cette expression, z_0 , est un point où l'on suppose connaître la valeur de β . A priori, le choix du point z_m est arbitraire. Dans la pratique, la méthode de Klett consiste à choisir le point de référence au-delà de la zone d'étude. En effet, à cause de l'atténuation, L est une fonction décroissante de z partout sauf aux points où α augmente rapidement. Comme α reste du même ordre de grandeur, le dénominateur doit lui aussi décroître rapidement lorsque z augmente. Si l'on procédait par z croissants à partir de 0 ($z > z_0$), le coefficient d'extinction s'exprimerait comme la différence de deux quantités de grandes valeurs. Les erreurs se propageraient donc très rapidement et la solution divergerait. Au contraire, si l'on procède par valeurs de z décroissantes, c'est-à-dire à partir d'une distance de référence z_m (prise vers la fin du signal Lidar) de telle sorte que la solution est générée pour $z < z_m$ plutôt que pour $z > z_0$ comme avant, les erreurs dans l'estimation de $\alpha(z)$ se réduisent à mesure que l'on se rapproche de l'origine. La solution de Equ. III.23 (en l'absence de diffusion multiple et pour des effets d'absorption par les gaz négligeables) est alors :

$$\alpha_{ext}(z, \lambda) = \frac{e^{\frac{L(z, \lambda) - L(z_m, \lambda)}{K_{Klett}}}}{\frac{1}{\alpha(z_m, \lambda)} + \frac{2}{K_{Klett}} \int_z^{z_0} e^{\frac{L(r, \lambda) - L(z_m, \lambda)}{K_{Klett}}} dr} \quad (III.29)$$

La figure suivante montre clairement la stabilité de l'inversion vis à vis des erreurs sur $\alpha(z_m, \lambda)$ si on prend en considération que le signal connu est à l'infini.

Le signal Lidar correspondant à la distribution en créneau (Fig. III.10.b, traits pleins) de α_{ext} est présenté en (a). Les figures (b) et (c) montrent les inversions du signal respectivement à partir de Equ. III.28 (pour une erreur sur la valeur limite $\alpha_{ext}(z_0, \lambda)$ de $\pm 1\%$) et de Equ. III.29 (pour une erreur sur la valeur limite $\alpha_{ext}(z_m, \lambda)$ de $\pm 50\%$) [Klett, 1981].

Pour une erreur de 50% sur le coefficient d'extinction en z_m , la distribution de α_{ext} retrouvée est proche de la distribution en créneau de départ (Fig. III.10.c).

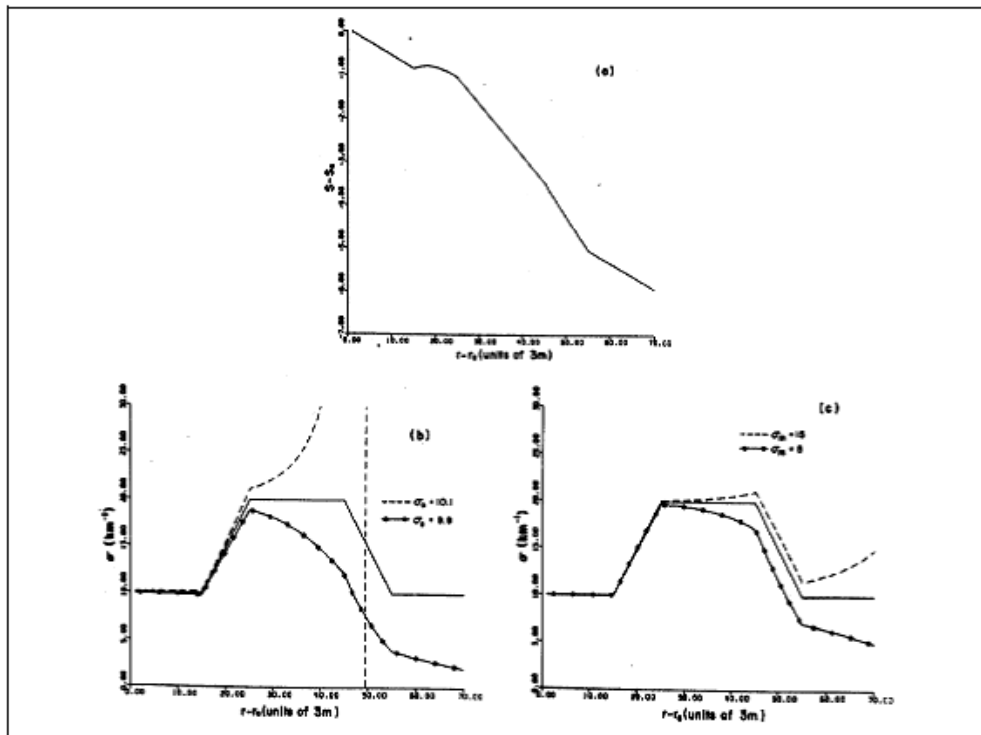


Fig III.10– Comparaison des signaux Lidar calculés en fonction des coefficients d'extinctions $\alpha(z, \lambda)$ obtenus par l'inversion du signal Lidar pour deux valeurs limites connues en z_0 et z_m .

4.1.3.1.2.2 Proportionnalité non linéaire entre la variation des paramètres optiques d'extinction et rétrodiffusion

Dans ce cas, le paramètre C reliant les deux coefficients α_{ext} et β varie en fonction de la distance et le coefficient de proportionnalité entre α_{ext} et β a été considéré comme constant :

$$\beta(z, \lambda) = C(z) \cdot \alpha_{ext}(z, \lambda)^{K_{Klett}} \quad (III.30)$$

En remplace cette équation dans Equ. III.23 :

$$\frac{dL(z, \lambda)}{dz} = \frac{I}{C(z)} \frac{dC(z)}{dz} + \frac{K_{Klett}}{\alpha_{ext}(z, \lambda)} \frac{d\alpha_{ext}(z, \lambda)}{dz} - 2\alpha_{ext}(z, \lambda) \quad (III.31)$$

Où :

$$\frac{d(L(z, \lambda) - \ln C(z))}{dz} = \frac{K_{Klett}}{\alpha_{ext}(z, \lambda)} \frac{d\alpha_{ext}(z, \lambda)}{dz} - 2\alpha_{ext}(z, \lambda) \quad (III.32)$$

En rapprochant les deux Equ. III.23 et III.32, la solution s'écrit alors :

$$\alpha_{ext}(z, \lambda) = \frac{\left(\frac{C(z_m)}{C(z)} \right)^{1/K_{Klett}} \exp\left(\frac{L(z, \lambda) - L(z_m, \lambda)}{K_{Klett}} \right)}{\frac{I}{\alpha_{ext}(z_m, \lambda)} + \frac{2}{K_{Klett}} \cdot \int_z^{z_m} \left(\frac{C(z_m)}{C(z)} \right)^{1/K_{Klett}} \exp\left(\frac{L(r, \lambda) - L(z_m, \lambda)}{K_{Klett}} \right) dr} \quad (III.33)$$

4.1.3.2 Une atmosphère avec contribution de gaz

En réalité, l'atmosphère est loin être dépeuplée de gaz qui en constituent les composants majoritaires. Dans cette fois-ci, on tient compte de leurs contributions pour mieux remonter aux concentrations en aérosols à partir du signal Lidar expérimental. Le coefficient total de rétrodiffusion s'exprime ainsi par :

$$\beta(z, \lambda) = C_{Aero}(z) \alpha_{ext}^{Aero}(z, \lambda) + C_{molec} \alpha_{ext}^{molec}(z, \lambda) \quad (III.34)$$

Avec $K_{Klett} = 1$

$C_{molec} = 3/8\pi$

La solution s'écrit alors [Klett, 1985] :

$$\beta(z) = \frac{\exp(L - L_m)}{\left(\frac{I}{\beta(z_m)} + 2 \int_z^{z_m} \frac{\exp(L - L_m) dr}{C_{Aero}(r)} \right)} \quad (III.35)$$

Avec :

$$L - L_m = L(z, \lambda) - L(z_m, \lambda) + \frac{2}{C_{molec}} \int_z^{z_m} \beta_{molec}(r) dr - 2 \int_z^{z_m} \frac{\beta_{molec}(r)}{C_{Aero}(r)} dr \quad (III.36)$$

Où le coefficient de rétrodiffusion Rayleigh $\beta_{molec}(z, \lambda)$ peut être calculé, en fonction de l'altitude et de la longueur d'onde, à partir de profils verticaux de température et de pression générés par un modèle atmosphérique ou mesurés par ballon-sonde [Seinfeld J. H., 1985].

4.1.4 Mesure par Lidar à rétrodiffusion

Plusieurs compagnes de mesure internationales de Lidar s'occupent à étudier les caractéristiques optiques et microphysiques des nuages, des aérosols et des molécules organiques présents dans la couche limite atmosphérique et dans la troposphère et veillent sur la surveillance de la qualité de l'air qui passe nécessairement par la connaissance quantitative des agents gazeux, solides, bactériologique et organiques présents dans notre environnement, mais également de la physico-chimie associée. Cette connaissance doit être résolue dans le temps et l'espace, afin de pouvoir répondre aux préoccupations des pouvoirs publics en matière de santé ou bien également afin d'accéder à une prise de décision anticipée. Cependant, la très grande majorité des Lidar actuels sont routinières et se contentent à déterminer la masse de particules en suspension dans un volume d'air unitaire. Donc elles ne fournissent qu'une évaluation qualitative des aérosols. En effet, ils sont représentatifs de la localisation de la couche limite atmosphérique (CLA), indépendamment de leur taille, composition chimique, masse et leur nombre.

Dans ce contexte, on va présenter des mesures Lidar mono-fréquence qui ont été réalisées par LNA (Lidar Nuages Aérosols) [Haefelin, M., 2004 ; Mathieu A., 2004] pour la restitution des caractéristiques optiques et microphysiques des aérosols et des nuages surtout de type SIRUS.

Cet instrument Lidar fait partie du Site Instrumental de Recherche par Télédétection Atmosphérique (SIRTA), et fonctionne en routine depuis 2001 dans le cadre de programmes de recherche sur les propriétés de nuages et de programmes de validation d'observations spatiales.



*Fig III.11 – Lidar LNA installé sur le site expérimental SIRTA/IPSL,
[<http://sirta.lmd.polytechnique.fr>]*

Le Lidar LNA utilise comme émetteur un laser pulsé *Nd-YAG* 1064 nm, doublé en fréquence (532nm) et polarisé linéairement et deux télescopes pour collecter le signal rétrodiffusé. Le premier est adapté à la détection des interactions dans les hautes couches de l'atmosphère (2-5 km). Le second est adapté à l'observation des interactions dans les basses couches de l'atmosphère (0,1-7 km). Chaque télescope possède sa propre chaîne de détection composée d'une optique permettant de séparer des signaux reçus aux longueurs d'onde 532 nm et 1064nm. L'optique de détection permet également de décomposer le signal dépolarisé à 532nm de sa composante polarisée parallèlement (voie 1) ou perpendiculairement (voie 2).

La voie 3 acquiert les signaux reçus à 1064 nm. Les voies à 532 nm utilisent des photomultiplicateurs et celles à 1064 nm des photodiodes à avalanche. Ces détecteurs sont associés à une chaîne d'amplification dont les gains permettent d'optimiser le signal rétrodiffusé en fonction des conditions atmosphériques.

L'algorithme suivant montre les étapes successives de la chaîne de traitement depuis les données brutes jusqu'à la détermination des différentes grandeurs caractérisant les nuages de type SIRUS qui sont :

- l'altitude (z_{base} et z_{sommet}) et l'épaisseur des cirrus
- l'épaisseur optique $\tau(z)$

- la fonction de phase $P(\theta)$
- le rapport de dépolarisation Δ
- le coefficient de rétrodiffusion $\beta(z)$
- le coefficient d'extinction $\alpha_{ext}(z)$

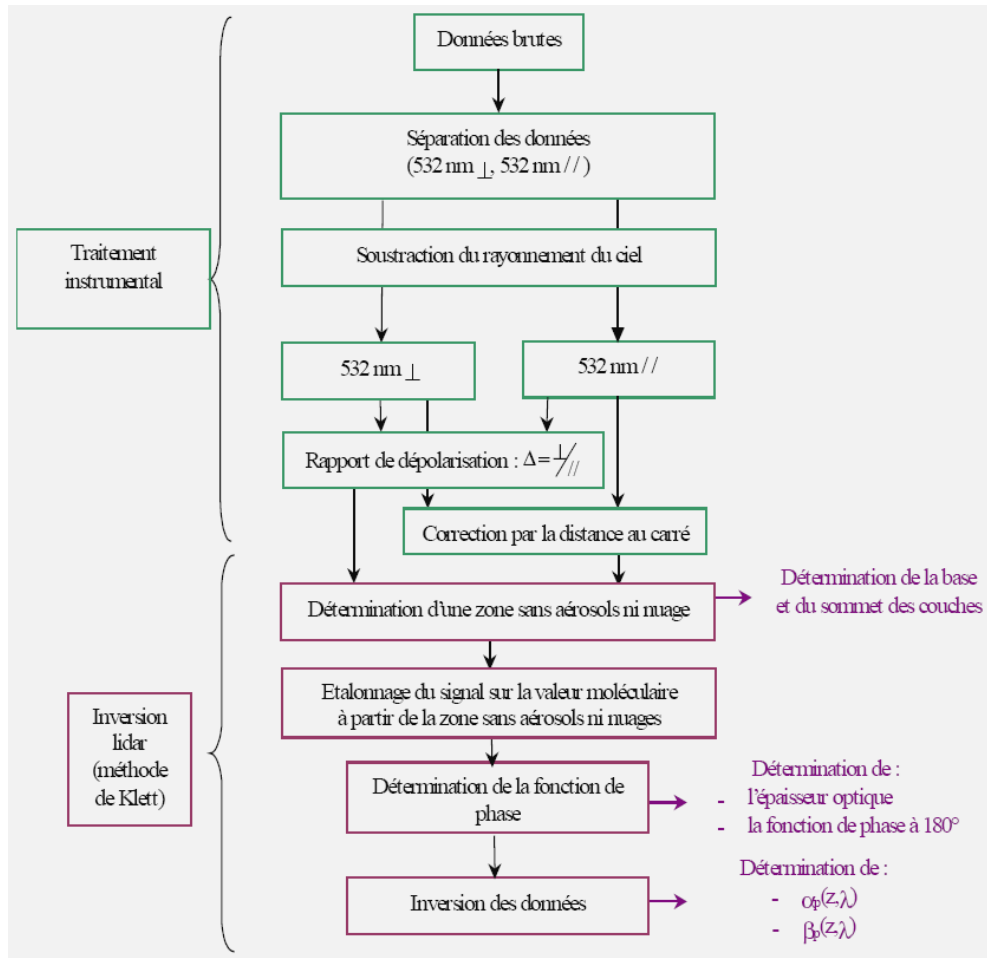


Fig III.12– Chaîne de traitement des données et caractéristiques obtenues à partir de ce traitement

• **Analyse et contrôle qualité des données LNA**

Trois niveaux de données du Lidar LNA sont actuellement disponibles et mis à la disposition des utilisateurs.

Les données de niveau 0 sont les données brutes et ont une résolution de 15 mètres toutes les 100 ns pour chaque voie des deux télescopes. Les données de niveau 1 sont les profils de rétrodiffusion Lidar corrigés du bruit de fond de ciel et du bruit électronique et ont une résolution de 15 mètres toutes les 300 ns avec un flag de qualité sur les données. Les données

de niveau 2 fournissent une classification de l'atmosphère et les profils de rétrodiffusion corrigés qui ont permis d'obtenir cette classification.

Sur la Fig. III.13, les données de niveau 0 sont à la base de tous ces traitements. Elles permettent de représenter rapidement l'évolution temporelle du profil de rétrodiffusion Lidar.

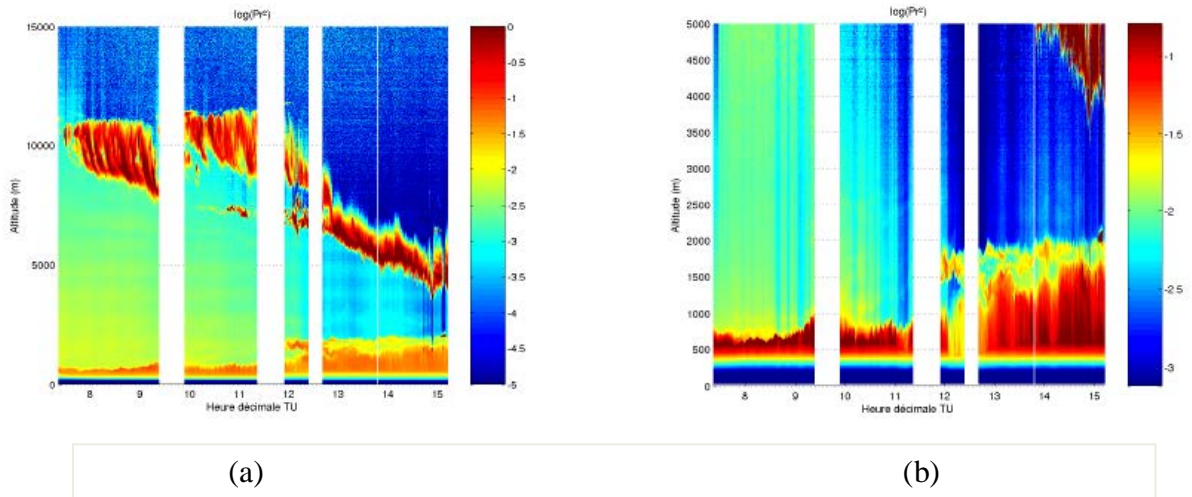


Fig III.13– Série temporelle du signal Lidar rétrodiffusé à 532 nm corrigé de la distance, voie 532 nm polarisation parallèle (a) télescope champ étroit et (b) télescope champ large

Un exemple de données de niveau 2 est présenté Fig. III.14 pour la même journée du 01/04/2003, avec en gris (flag 0) le bruit, en bleu les zones de moléculaire (flag 1), en vert la couche limite (flag 2), en rouge les zones contenant des particules (flag 3 et 4) et en blanc les zones non-identifiées (flag>4). Ce type de produits permet d'exploiter facilement les signaux Lidar pour étudier les altitudes de couches de nuages et d'aérosols, et les évolutions temporelles de l'épaisseur de la couche limite. L'identification des zones de rétrodiffusion moléculaire permet notamment de normaliser le signal Lidar pour accéder aux coefficients de rétrodiffusion, de calculer rapidement les épaisseurs optiques des différentes couches, et de déterminer le rapport de dépolarisation afin d'identifier par exemple la phase thermodynamique des nuages ou la nature des aérosols.

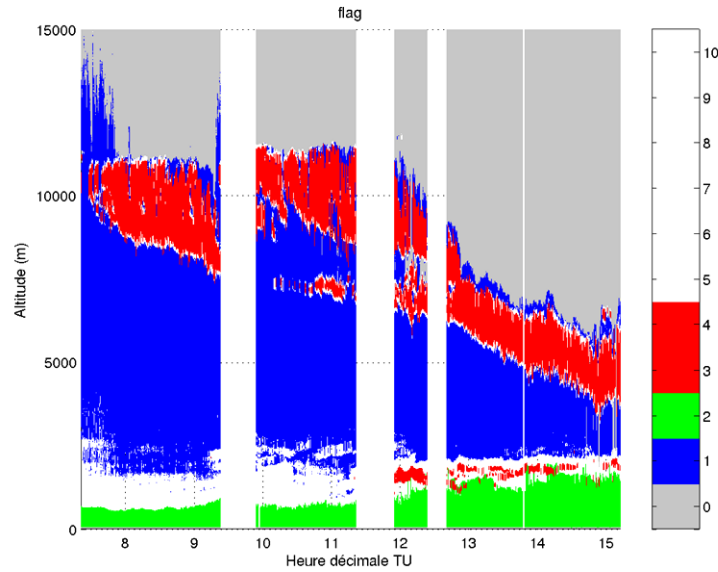


Fig III.14– Classification de l'atmosphère pour la journée du 01/04/2003 effectuée à partir de la voie 532 nm, polarisation parallèle, télescope champ étroit

4.2 Lidar DIAL

Le Lidar à absorption différentielle DIAL (Differential Absorption Lidar) [Wolf J. P., 1990 ; Weidauer D., 1996] est une technique très importante qui permet de déterminer la concentration de certains polluants gazeux qui ont des effets natifs sur l'environnement tel que l'azone O_3 , le méthane, SO_2 , NO , NO_2 , COV (composées organiques volatiles), en utilisant les propriétés d'absorption et de diffusion de la lumière par les particules (diffusion de Mie) et par les molécules (diffusion de Rayleigh). Cette méthode qui repose sur l'émission simultanée de deux impulsions laser dans l'atmosphère est la plus sensible dans la troposphère et même dans la stratosphère. Le choix des longueurs d'onde utilisées est établi en fonction du spectre d'absorption du polluant recherché ainsi que des possibles molécules interférentes présentes au moment de la mesure. L'une des longueurs d'onde appelée λ_{ON} sera choisie comme fortement absorbée par le polluant, l'autre, appelée λ_{OFF} le sera au contraire beaucoup moins.

Pour minimiser les problèmes d'interférences avec les autres molécules présentes, ces deux longueurs d'onde seront choisies pour donner des valeurs d'absorption similaires avec les interférents. Enfin, elles sont suffisamment proches pour que l'on puisse supposer que les propriétés de diffusion des aérosols aux deux longueurs d'onde sont identiques.

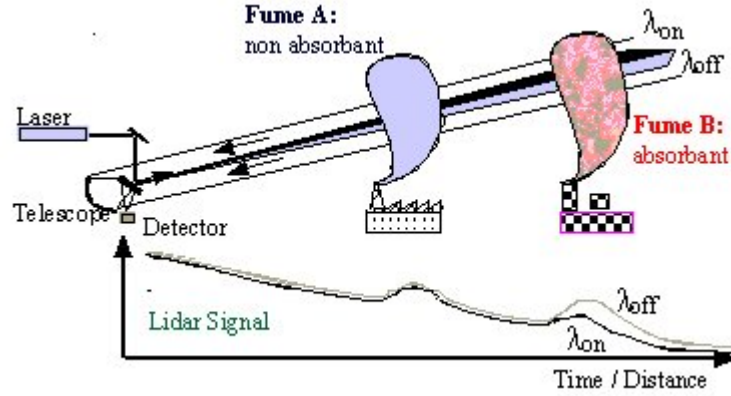


Fig III.15 – Principe du Lidar DIAL

La méthode DIAL permet d'avoir accès à la concentration pour un polluant donné en fonction de la distance z . En effet, les deux équations Lidar pour λ_{ON} et λ_{OFF} s'écrivent :

$$I(z, \lambda_{ON}) = I_0(0, \lambda_{ON}) \cdot \frac{A_0}{z^2} \cdot \beta(z, \lambda_{ON}) \cdot \Delta z \cdot \chi(z, \lambda_0) \cdot \exp\left(-2 \int_0^z \alpha_{ext}(z, \lambda_{ON}) dz\right) \quad (III.37)$$

$$I(z, \lambda_{OFF}) = I_0(0, \lambda_{OFF}) \cdot \frac{A_0}{z^2} \cdot \beta(z, \lambda_{OFF}) \cdot \Delta z \cdot \chi(z, \lambda_0) \cdot \exp\left(-2 \int_0^z \alpha_{ext}(z, \lambda_{OFF}) dz\right) \quad (III.38)$$

Le rapport de ces deux équations vaut :

$$\frac{I(z, \lambda_{ON})}{I(z, \lambda_{OFF})} = \gamma \cdot \frac{\beta(z, \lambda_{ON}) \cdot \Delta z \cdot \kappa(\lambda_{ON})}{\beta(z, \lambda_{OFF}) \cdot \Delta z \cdot \kappa(\lambda_{OFF})} \cdot \exp\left(-2 \int_0^z (\alpha_{ext}(z, \lambda_{ON}) - \alpha_{ext}(z, \lambda_{OFF})) dz\right) \quad (III.39)$$

$$\text{Avec : } \gamma = \frac{I_0(0, \lambda_{ON}) Y_{ON}(z)}{I_0(0, \lambda_{OFF}) Y_{OFF}(z)}$$

En prenant le logarithme et en différenciant par rapport à la distance z , et si les deux longueurs d'onde sont très voisines ($\beta(z, \lambda_{ON}) \approx \beta(z, \lambda_{OFF})$) et les deux faisceaux identiquement alignés (même divergence et même recouvrement), on aboutit à d'importantes simplifications:

$$\frac{d}{dz} \ln\left(\frac{I(z, \lambda_{ON})}{I(z, \lambda_{OFF})}\right) = 2(\alpha_{ext}(z, \lambda_{OFF}) - \alpha_{ext}(z, \lambda_{ON})) \quad (III.40)$$

Les coefficients de diffusion des molécules et des aérosols peuvent être considérés comme identiques si λ_{ON} et λ_{OFF} sont très proches et donc :

$$\alpha_{ext}(z, \lambda_{OFF}) - \alpha_{ext}(z, \lambda_{ON}) = \alpha_{Abs}(z, \lambda_{OFF}) - \alpha_{Abs}(z, \lambda_{ON}) = \Delta \alpha_{Abs}(z) \quad (II.41)$$

Où α_{Abs} représente le coefficient d'absorption tel que : $\alpha_{ext} = \alpha_{diff} + \alpha_{Abs}$, α_{Abs} peut s'écrire:

$$\alpha_{Abs} = 2 \frac{N}{N_0} (N_0 \cdot \sigma_{Abs}) = x \cdot \xi \quad (III.42)$$

Avec N est le nombre de molécules du polluant considéré par unité de volume, N_0 le nombre total de molécule dans l'air par unité de volume ($N_0 = 2,46.10^{19}$ molécules.cm⁻³ à 1013 mbar et 298 °K), σ_{Abs} la section efficace d'absorption (en cm².molécules⁻¹), x le rapport de mélange et ξ le coefficient d'absorption (en cm⁻¹.atm⁻¹). Pour un intervalle fini Δz , Equ. III.40 devient:

$$\frac{1}{\Delta z} \ln \left(\frac{I_{ON}(z) I_{OFF}(z + \Delta z)}{I_{OFF}(z) I_{ON}(z + \Delta z)} \right) = 2 \Delta \alpha_{Abs} \quad (III.43)$$

En utilisant Equ. III.42 dans Equ. III.43, la concentration a pour expression :

$$x = \frac{\ln \left(\frac{I_{ON}(z) I_{OFF}(z + \Delta z)}{I_{OFF}(z) I_{ON}(z + \Delta z)} \right)}{2 \cdot \Delta \xi \Delta z} \cdot 10^9 \text{ (en ppb)} \quad (III.44)$$

Pour avoir la concentration à partir du signal reçu, il faut premièrement soustraire des bruits de fond et le signal à λ_{ON} est divisé par celui à λ_{OFF} , deuxièmement, la dérivée du logarithme de ce rapport par rapport à la distance est proportionnelle à la concentration. Les concentrations des gaz sont communément mesurées dans deux unités, µg/m³ et les parties par million (ppm) ou par milliard (ppb) en volume. La relation entre ces deux unités est :

$$C_i(\text{ppm}) = \frac{8.314 \cdot 10^{-2} T(K)}{P(\text{mbar}) \cdot M_i(\mu\text{g} / \text{m}^3)} \quad (III.45)$$

T est la température en K , p la pression en millibars et M_i le poids moléculaire de l'espèce i . La technique DIAL, très employée actuellement, permet donc d'obtenir des cartes en trois dimensions de la concentration d'un polluant donné avec une grande sensibilité (de l'ordre du *ppb*). Un exemple de concentrations retrouvées par cette méthode pour NO et NO_2 est présenté dans Fig. III.16.

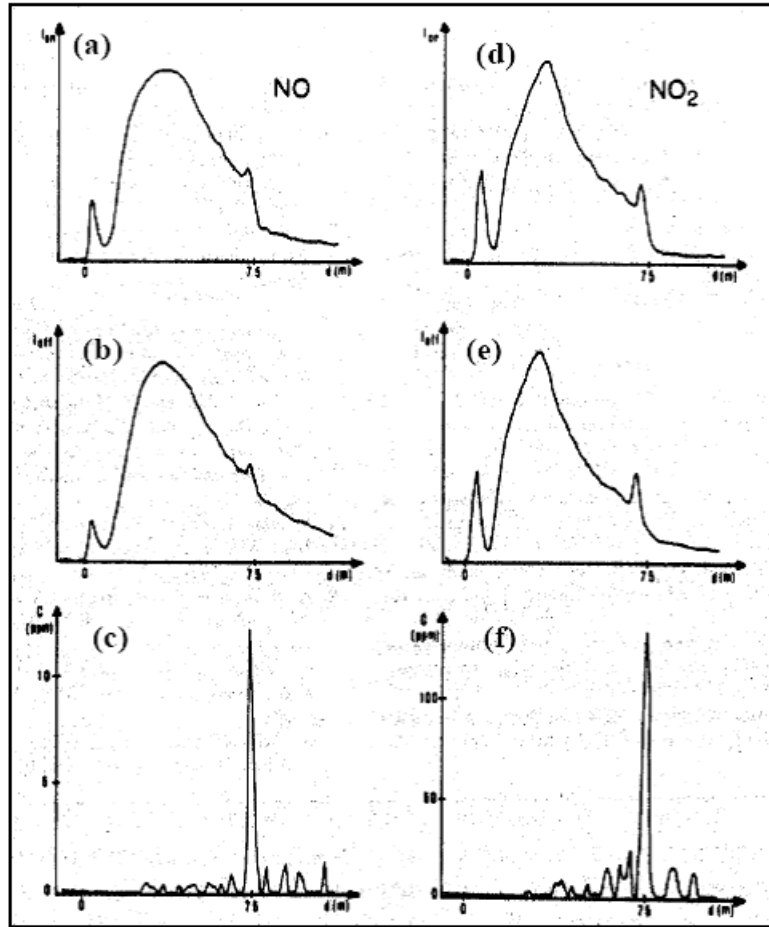


Fig III.16 – Exemples de mesures de concentrations [Kölsch H. J., Rairoux P., et al 1989] pour NO (c) et NO₂ (f) par méthode DIAL à partir des mesures de λ_{ON} ((a) et (d)) et λ_{OFF} ((b) et (e)).

4.3 Les Lidars Raman opérationnels

Le principe exploité dans la mesure Raman est le décalage en fréquence de l'onde diffusée qui est spécifique à chaque espèce. On peut ainsi distinguer, par simple filtrage spectral, les molécules telles que H_2O et N_2 , dont les décalages sont de 3652 cm^{-1} et 2331 cm^{-1} , respectivement. Ce décalage est indépendant de la longueur d'onde émise, ce qui permet d'utiliser des lasers commerciaux courants, tels que les lasers Nd:YAG, sans contrainte particulière quant à la longueur d'onde (pas d'asservissement). Le processus de diffusion Raman est toutefois très faible (sa section efficace est de l'ordre de $10^{-29} \text{ cm}^2 \text{ sr}^{-1}$ comparée à celle de la diffusion Rayleigh qui est de $10^{-26} \text{ cm}^2 \text{ sr}^{-1}$). La mesure de signaux Raman nécessite donc un laser puissant et/ou un télescope de grand diamètre et des détecteurs très sensibles.

La transmission atmosphérique peut être un effet limitant à prendre en compte pour le choix de la longueur d'onde du laser. Par ciel clair, la diffusion Rayleigh est le principal effet

limitant et l'utilisation de grandes longueurs d'ondes est préférable si l'on souhaite faire des mesures à grande distance (cas du Lidar Raman de l'OHP (Observatoire de Haute Provence) pour le sondage de la haute troposphère qui fonctionne à 532 nm [Sherlock V, 1999]. Pour des systèmes étudiant plutôt la couche limite, des longueurs d'ondes plus courtes sont parfois utilisées (cas du Lidar de Renaut et Capitini, 1988, à 266 nm) [Renaut et Capitini, 1988]. Ce dernier à l'avantage de fonctionner de nuit comme de jour, car le rayonnement de fond de ciel est négligeable pour $\lambda < 290$ nm. Pour le sondage dans la troposphère (0-10 km), également de nuit et de jour, des longueurs d'ondes intermédiaires sont couramment utilisées (355 nm pour le Lidar CART (Cloud and Radiation Testbed Site) de l'ARM (Atmospheric Radiation Measurement) [Goldsmith et al, 1998], et 355 nm de nuit, 351 nm de jour, pour le SRL (Scanning Raman Lidar) de la NASA [Whiteman et al, 1992].

Pour permettre une mesure de jour, ces systèmes utilisent des filtres interférentiels étroits (0,3 nm) afin de réduire le flux du fond de ciel. Ces systèmes sont très puissants (lasers de 300 à 400 mJ à 30 Hz et télescopes de 61 et 76 cm respectivement pour le Lidar du CART et le SRL). Par conséquent, la dynamique du signal reçu est très grande pour un sondage de 0 à 10 km d'altitude. Ces systèmes ont ainsi des voies optiques dédoublées, avec deux champs différents : champ large (~2 mrad) pour les basses couches et champ étroit (~0,3 mrad) pour les hautes couches (ce qui réduit également le flux du fond de ciel).

Les signaux issus des basses couches sont généralement assez forts et leur détection est possible en mode analogique. A l'inverse, les signaux issus des couches plus élevées sont faibles et doivent être mesurés en mode comptage de photons.

4.3.1 Le Lidar Raman IGN-SA

Par rapport aux systèmes CART et SRL, le Lidar Raman IGN-SA campagne ESCOMPTE est un système beaucoup plus modeste. Il est installé à bord d'un camion et, est par conséquent, facilement transportable. Dans sa version actuelle, il permet de faire des mesures de nuit, au zénith, mais il est prévu de le doter d'une capacité de mesure directionnelle (sur l'hémisphère) de jour.

Les essais récents ont montré que par temps clair, il permettait de restituer des profils de rapport de mélange jusqu'à 6-8 km d'altitude. Sa distance de sécurité oculaire est de 200 m pour dix secondes d'exposition. Le Lidar Raman IGN-SA est composé d'un laser Nd : YAG triplé (355 nm) en émission coaxiale avec le télescope de réception (Fig.II.17), d'un couplage par fibre optique, d'un boîtier de filtrage spectral et de détection par photo-multiplificateurs

(PM) à trois longueurs d'onde (355 nm-Rayleigh/Mie, 387 nm-Azote, 408 nm-Vapeur d'eau) et d'un canal externe en détection directe (à 355 nm) sur le côté du télescope.

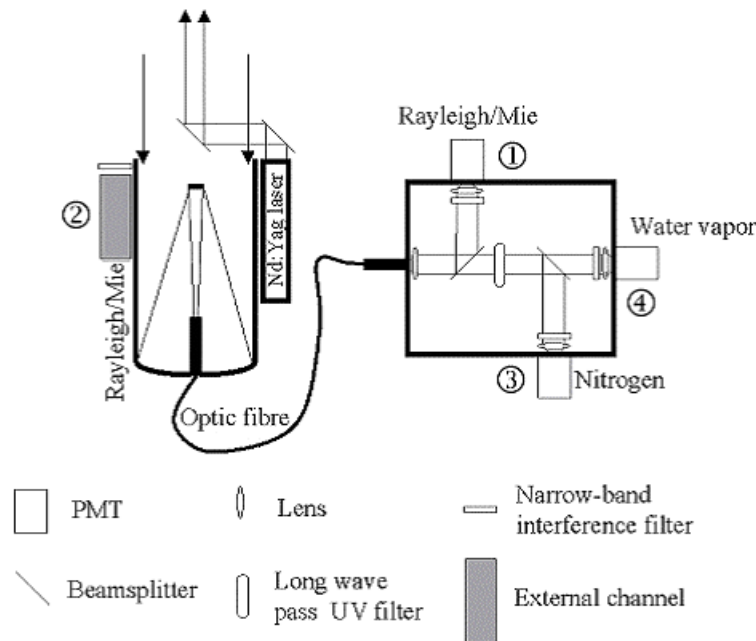


Fig III.17–Vue schématique du Lidar Raman IGN-SA. Les voies d'acquisition sont numérotées de 1 à 4.

Par ailleurs, les signaux Rayleigh/Mie permettent de suivre l'évolution du contenu en aérosols et de la couverture nuageuse tout au long des mesures. Ces informations sont utiles d'un point de vue qualitatif pour détecter des périodes temporelles et les portions d'atmosphère où l'extinction est trop forte pour permettre une mesure précise du rapport de mélange.

L'inversion du signal Rayleigh/Mie permet également d'estimer la transmission des aérosols pour une correction précise des signaux azote et vapeur d'eau (ceci n'est utile que pour la détermination de concentrations absolues). Pour la détermination du rapport de mélange, une correction de transmission différentielle par un modèle standard (par exemple : Modtran) est généralement suffisante (précise à 3-4%).

Dans ce système, les voies optiques et les canaux d'acquisition ne sont pas dédoublées. Par conséquent, les signaux issus des basses couches peuvent être saturés. Cette saturation est toutefois limitée car le dimensionnement du système est bien optimisé (puissance laser, diamètre du télescope et rapport signal/bruit des mesures). Une modélisation de la saturation est possible et permet ainsi de restituer des signaux non biaisés dans les basses couches.

Parmi les évolutions prévues à court terme, nous envisageons d'utiliser des filtres interférentiels étroits afin de pouvoir réaliser des mesures Raman de jour. Nous prévoyons également de mettre au point un dispositif de balayage mécanique (motorisation de

l'ensemble télescope et laser) pour pouvoir effectuer des mesures directionnelles sur tout l'hémisphère. Cette dernière fonction est particulièrement utile pour les applications de couplage avec des mesures GPS [Tarniewicz et al 2000].

Eléments Lidar	Caractéristiques	Valeurs
Emission Laser Quantel Brillant (Nd:YAG triplé)	Fréquence de répétition Energie par pulse Divergence (après afocal) Diamètre faisceau (après afocal)	10 Hz 30 mJ @ 355 nm ≈ 0,1 mrad 27 mm
Réception Télescope type Cassegrain Fibre optique quartz	Diamètre/focale Diamètre/champ en réception	30 cm / 1 m 0,8 mm / 0,8 mrad
Filtrage Rayleigh/Mie Azote Vapeur d'eau	λ / FWHM / transmission	Filtres interférentiels 355 nm / 4,7 nm / 35% 387 nm / 7 nm / 40% 408 nm / 6 nm / 40%
Détection Hamamatsu Série 7400	RQ @ 355 / 387 / 408 nm	Photo-multiplicateurs ~ 20%
Acquisition Rack Licel mode AD/PC $\Delta t = 50$ ns ($\Delta z = 7,5$ m)	Signal / mode	355 nm / AD (analogique/digital) 387 nm / PC (comptage de photons) 408 nm / PC

Tableau III.3 caractéristiques des éléments du Lidar Raman IGN-SA

4.3.2 Calcule du rapport de mélange de vapeur d'eau et l'air sec

Le rapport de mélange est défini comme le rapport des densités de vapeur d'eau et d'air sec :

$$q = \rho_{H_2O} / \rho_{sec} \quad (III.46)$$

La densité d'air sec est accessible via la densité d'azote, car ce gaz est bien mélangé dans la basse atmosphère ($z < 100$ km) : $q = (\rho_{H_2O} / \rho_{N_2}) \cdot x_{N_2}$, avec r_{N_2} le rapport de mélange en masse d'azote dans l'air sec.

En introduisant les masses molaires de vapeur d'eau et d'azote notées respectivement M_{H_2O} et M_{N_2} et leurs concentrations N_2 , $N_{H_2O}(z)$ et $N_2(z)$, accessibles par la mesure Lidar, on obtient pour le rapport de mélange :

$$q(z) = \frac{N_{H_2O}(z)}{N_{N_2}(z)} \cdot \left(\frac{M_{H_2O}}{M_{N_2}} \cdot r_{N_2} \right) \quad (III.47)$$

Les mesures à 387 et 408 nm donnent accès à la concentration d'azote et de vapeur d'eau après correction de différents effets. Les signaux mesurés sur les canaux vapeur d'eau et azote sont reliés aux concentrations par les équations suivantes [Goldsmith et al, 1998] :

$$S_{H_2O}(z) = \frac{E_0 c A}{h\nu_0 2z^2} \Delta t T(0, z, \lambda_{355}) T(0, z, \lambda_{408}) O(z) T_4 \eta_4 \sigma_{H_2O} N_{H_2O}(z) \quad (III.48)$$

$$S_{N_2}(z) = \frac{E_0 c A}{h\nu_0 2z^2} \Delta t T(0, z, \lambda_{355}) T(0, z, \lambda_{387}) O(z) T_3 \eta_3 \sigma_{N_2} N_{N_2}(z) \quad (III.49)$$

avec $E_0/h\nu_0$ le nombre de photons émis, c la célérité de la lumière, Δt la durée d'intégration (50 ns), A la surface de réception du télescope, z la distance Lidar - couche sondée, $T(0, z, \lambda_x)$ la transmission atmosphérique du sol à la distance z à la longueur d'onde λ_x , $O(z)$, la fonction de recouvrement en réception ou overlap (principalement due à la défocalisation au niveau de la fibre optique dans le télescope), T_y la transmission optique sur la voie y ($y = 3$ pour N_2 et 4 pour H_2O pour notre système), η_y le rendement quantique du PM sur la voie y , σ_{N_2} et σ_{H_2O} les sections efficaces de rétrodiffusion [Inaba, 1976].

Notons que l'utilisation de filtres interférentiels larges (5-6 nm) permet de s'affranchir de la dépendance en température des sections efficaces [Inaba, 1976], [Whiteman et al, 1992] et [Sherlock et al, 1999]. Du fait de l'acquisition des signaux en mode comptage de photons, une saturation a lieu dans les basses couches où le niveau du signal est le plus élevé (diminution en $1/z^2$ avec la distance). Avec ce système, cette saturation devient importante lorsque le nombre de photons/porte de 50 ns devient supérieur à 1 (typiquement de 0 à 1 000 m). La première étape du traitement des données consiste donc à désaturer les signaux à l'aide d'une fonction ajustée sur des mesures spécifiques faites au préalable. Ces mesures sont réalisées avec un filtre commun à 387 nm sur les voies 3 et 4 (correspondant en mode normal aux signaux N_2 et H_2O). La seule différence sur les deux voies provient ainsi des termes de transmission optique (T_y) et des rendements quantiques (η_y).

Dans ces conditions, le signal mesuré sur la voie 3 est exempt de saturation (le signal est faible car on mesure la réflexion sur la dernière lame) alors que le signal sur la voie 4 (en transmission) est, lui, saturé. Ces deux signaux permettent ainsi de modéliser les effets de saturation (une fraction rationnelle est ajustée par moindres carrés).

Afin d'arriver aux signaux modélisés par Equ. III.48 et III.49, il faut aussi éliminer la contribution du fond de ciel (signal additif constant). Celui-ci est estimé sur une portion du signal où il n'y a plus d'information utile ($z > 20$ km, l'acquisition se faisant jusqu'à 40 km).

Afin de prendre également en compte des effets de génération d'électrons secondaires dans les PM, une fonction d'ordre supérieur ou égal à 1 est ajustée.

Lorsqu'on forme le rapport de signaux désaturés, corrigés du fond de ciel, un grand nombre de termes présents dans Equ. III.48 et III.49 disparaissent. Il reste ensuite à corriger uniquement des effets différentiels : transmissions atmosphériques, transmissions optiques, rendements quantiques des PMs, sections efficaces et les termes reliant les concentrations aux masses. Le rapport de mélange s'écrit finalement :

$$q(z) = \frac{S_{H_2O}(z)}{S_{N_2O}(z)} \frac{T(O, z, \lambda_{387})}{T(O, z, \lambda_{408})} \frac{T_3}{T_4} \frac{\eta_3}{\eta_4} \frac{\sigma_{N_2}}{\sigma_{H_2O}} \frac{M_{H_2O}(z)}{M_{N_2}} r_{N_2} \quad (III.50)$$

Avant de former le rapport des signaux Lidars, $S_{H_2O}(z) / S_{N_2}(z)$, il faut procéder à une étape de filtrage et d'intégration des signaux. Vu le rapport signal/bruit (RSB) de nos signaux, nous effectuons une moyenne temporelle sur au moins cinq minutes et verticale variable en altitude. Le pas de cette dernière est déterminé de manière automatique en analysant la variabilité des deux signaux. L'épaisseur est ajustée de manière à avoir un $RSB \geq 5$, avec une limite inférieure de 50 m et supérieure de 500 m. Une moyenne glissante est appliquée avec la largeur ainsi déterminée. Les données finales sont conservées avec une résolution verticale de 50 mètres.

5. Conclusion

L'objectif de ce chapitre était la présentation du sujet de notre étude ainsi que celle des données utilisées dans ce cadre. Nous avons commencé par une description théorique des différentes méthodes Lidar et plus précisément le Lidar à rétrodiffusion qui fait l'objet de cette étude, tout en présentant la méthode d'inversion permettant d'en extraire les paramètres physiques qui peuvent être exploités dans notre étude comme des données expérimentales, à l'instar de coefficients d'extinction et de rétrodiffusion. Ces derniers ont une grande dépendance vis-à-vis le type de l'atmosphère à savoir l'homogénéité en fonction de l'altitude, la nature des aérosols existants et la négligence de concentration des gaz devant les particules de grosse tailles.

Dans la suite, nous avons présenté quelques résultats qualitatifs obtenus par Lidar qui ont été effectués sur certains cites, en donnant ainsi des cartes en trois dimensions des polluants atmosphériques en fonction du temps et l'altitude.

Chapitre 4

Détection de la distribution de taille des aérosols désertiques par Lidar

1. Méthodes de caractérisation des aérosols

La caractérisation de la pollution atmosphérique tend à devenir une préoccupation majeure. Si la pollution par les gaz est de mieux en mieux mesurée, les aérosols restent difficiles à quantifier de manière précise car la diversité des caractéristiques physico-chimiques ainsi que leurs variabilités spatiales sont beaucoup plus nombreux que dans le cas des polluants gazeux. Les campagnes ou les réseaux de mesures doivent couvrir plusieurs échelles spatio-temporelles et couplent des étapes de calibrage, mesures, inter comparaison instrumentale et validation de données. Comme pour les gaz, les mesures doivent être spécifiques, sensibles, précises et sont basées sur les propriétés des aérosols. Les particules sont caractérisées par la composition chimique, la morphologie et la distribution pour leur taille, masse et volume. Les techniques de mesures sont nombreuses et associées aux différentes caractéristiques des aérosols.

On peut classer les méthodes de mesures des aérosols selon plusieurs catégories :

1. Les techniques de mesures de la concentration en masse :
 - Prélèvements sur filtre [Witz, 1990]
 - Méthodes de la jauge β [Willeke and Baron, 1993]
 - Microbalance oscillante TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) [Patashnick and Rupprecht., 1991]
 - Méthodes aérodynamiques [Renoux et Boulaud, 1998].
2. Les techniques de mesures de la concentration en nombre :
 - Le compteur de noyaux de condensation, CNC [Cheng, 2001 ; Hinds, 1999]
3. Les techniques de mesures de la concentration en surface [Brunauer, et al, 1938]
4. Mesure de la distribution de taille des particules :
 - Méthodes électriques
 - Analyseur à mobilité différentielle (DMA) [Flagan, 2001 ; Hinds, 1999]

- Batteries électriques de diffusion [Fierz, 2002]
- Caractérisation d'un aérosol à l'aide de l'ELPI (Electrical Low Pressure Impactor) [Keskinen, 1992]
- Méthodes optiques
 - Compteur optique à particules (OPC) [Hinds, 1999]
 - Granulométrie à diffraction [Rader et Ohern, 2001]
- Lidar aérosols

2. Mesure par Lidar

La grande majorité des LIDAR actuels ne fournit qu'une évaluation qualitative des aérosols, au travers de l'extinction ou de la visibilité atmosphérique et d'une première ébauche de caractérisation en évaluant le taux de particules sphériques présentés dans l'atmosphère par l'analyse du rapport de dépolarisation et la mesure des coefficients d'extinction et de rétrodiffusion totaux.

Néanmoins, bien que reposant sur une analyse qualitative, ces instruments permettent de fournir en continu une documentation fine de la stratification atmosphérique et de sa dynamique. De ce fait, ils sont largement utilisés afin de fournir un suivi de la hauteur de la couche limite atmosphérique [ECLAP], une évaluation du bilan radiatif [LITE, GLAS, CALIPSO], voire de l'identification de certains paramètres météorologiques comme les zones [ESCOMPTE, ELO] de pré-condensation susceptibles d'influencer fortement la nébulosité. Enfin, des études sont actuellement engagées, visant à coupler ces instruments, devenus très opérationnels, à des outils de modélisation multi échelles, afin de fournir une information en continu sur la nébulosité présente dans toute la colonne atmosphérique et, à terme, de prendre en compte précisément l'action des aérosols dans les outils de modélisation physico-chimiques.

Par ailleurs, plusieurs études récemment engagées ont fourni des premiers résultats encourageants sur la caractérisation quantitative des aérosols atmosphériques. Dans un premier temps elles ont été appliquées à la caractérisation des nuages stratosphériques polaires et à leur action sur le "trou d'ozone", et plus récemment ces études ont porté sur les aérosols troposphériques et urbains. Des modèles d'interaction lumière-matière ont été développés pour des particules non sphériques (sphéroïdes, fractales,...), qui ont permis de confirmer une forte dépendance en longueur d'onde de la réponse optique des particules.

2.1 Méthode utilisant un Lidar mono-fréquence couplé à la micro-analyse de filtres impactés

La précision des mesures effectuées par les techniques classiques est limitée par les faibles quantités impactées. De plus, la majorité de ces méthodes ne donnent pas d'informations sur la composition des aérosols.

Le Lidar rétrodiffusion permet de réaliser des cartes tridimensionnelles des polluants. Mais cette méthode nécessite de disposer d'une hypothèse a priori quant à la forme de la distribution de taille et à la composition des aérosols. On utilise alors les mesures Lidar pour déterminer la concentration et la taille moyenne de la distribution des particules.

Pour remédier à cette difficulté, on a choisi de combiner les mesures d'impaction et le Lidar. La distribution de taille des aérosols atmosphériques est déterminée par comptage sur les filtres observés au microscope électronique à balayage. Une microanalyse par spectroscopie de fluorescence X atomique a permis de déterminer leur composition (résultat quantitatif).

2.1.1 Prélèvements par impaction

La distribution de taille des aérosols atmosphériques a été déterminée par comptage sur les filtres observés au microscope électronique à balayage après un dépôt d'une couche d'or pour améliorer la sensibilité. Ces filtres en Téflon ont été impactés au niveau du sol à l'aide d'une pompe. Une microanalyse par spectroscopie de fluorescence X atomique a permis de déterminer leur composition. Nous avons alors pu déterminer la distribution spatiale de la concentration totale par Lidar, dont l'interprétation est aidée par les données tirées de l'analyse des filtres. Dans le cadre de la campagne ELO [Frejafon. E, Kasparian. J, 1998], Les filtres chargés d'aérosols ont été observés au microscope électronique à balayage (MEB) (Fig. IV.1). On distingue trois types de particules. Le type le plus abondant correspond à des particules fines granulaires, de forme fractale, réparties de manière homogène sur le filtre. Ces particules forment par endroits des amas de quelques microns de diamètre. Le second type est constitué de particules d'aspect lisse, dont la taille atteint quelques microns. Enfin, d'autres particules sont aussi observés, dont certaines en forme de lamelles cristallines, mais en faible quantité.



Fig IV.1 – Vue à fort grossissement ($\times 10000$) d'un filtre de prélèvement d'aérosols en milieu urbain

Les images obtenues au MEB ont aussi servi à déterminer la distribution de taille des particules impactées (outre son importance pour l'évaluation des effets des particules sur la santé, cette information est indispensable pour inverser les signaux Lidar). Et ceci en comptant sur les images prises les particules préalablement réparties en classes de tailles. Pour assurer une signification statistique aux décomptes effectués, des grossissements pour chaque type de particules ont été effectués. Exemple, des surfaces de $6,2 \cdot 10^4 \mu\text{m}^2$ (à un grossissement 1000 x) ont été considérées pour compter les particules de plus de $3 \mu\text{m}$, et des surfaces de $6,2 \cdot 10^2 \mu\text{m}^2$ (à un grossissement 10 000 x) pour compter les particules en dessous de cette taille. D'après la Fig. IV.2, la distribution de taille normalisée présente deux pics : l'un pour les petites particules, centré sur 20 nm de rayon et le second correspondant à des grosses particules et centré sur 900 nm de rayon.

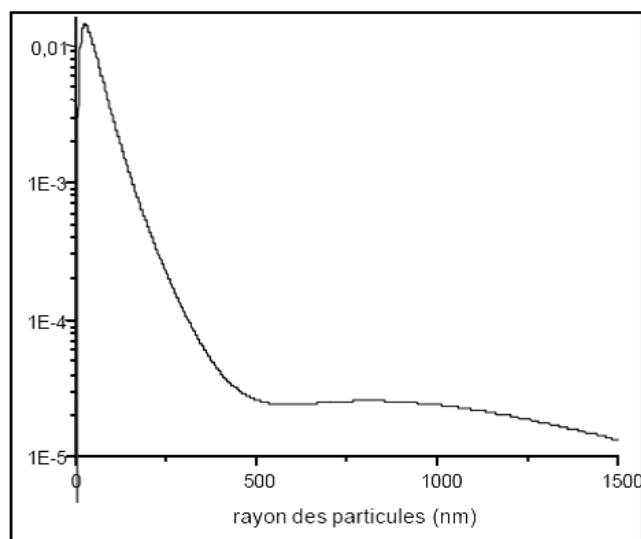


Fig IV.2 – Distribution de taille normalisée des aérosols urbains effectuée dans le cadre de la campagne, estimée à partir de l'étude par MEB des filtres impactés

La microanalyse par spectroscopie de fluorescence X atomique a permis de déterminer la composition chimique des différents types de particules. Les spectres réalisés correspondant aux types primordiaux sont présentés sur les figures suivantes :

La Fig. IV.3 représente le spectre des particules granulaires à l'instar de suies provenant de la combustion d'hydrocarbures incluant des composés soufrés et carbonés, comme les particules produites par les moteurs diesel. Tandis que la Fig. IV.4 correspond aux particules lisses de grand diamètre comme silicium et l'oxygène entrant dans la composition de silice.

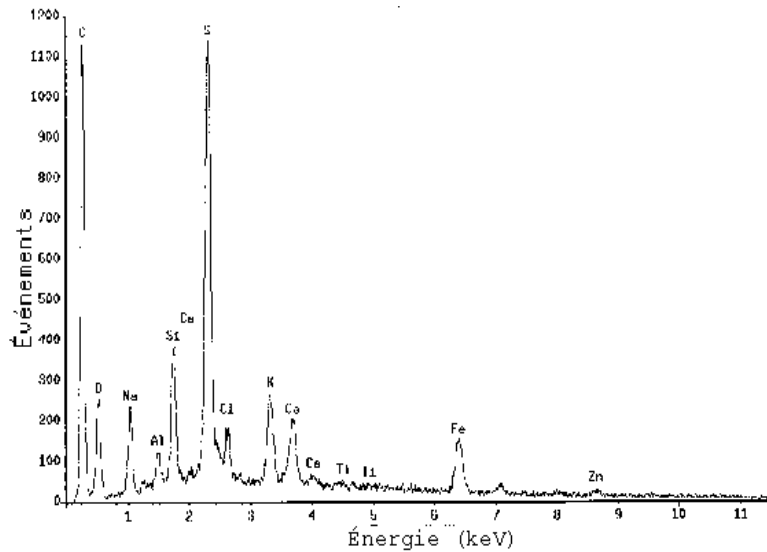


Fig IV.3 – Spectre de microanalyse d'une zone de filtre correspondant à un agglomérat de particules granulaires de diamètre 0.1 µm environ

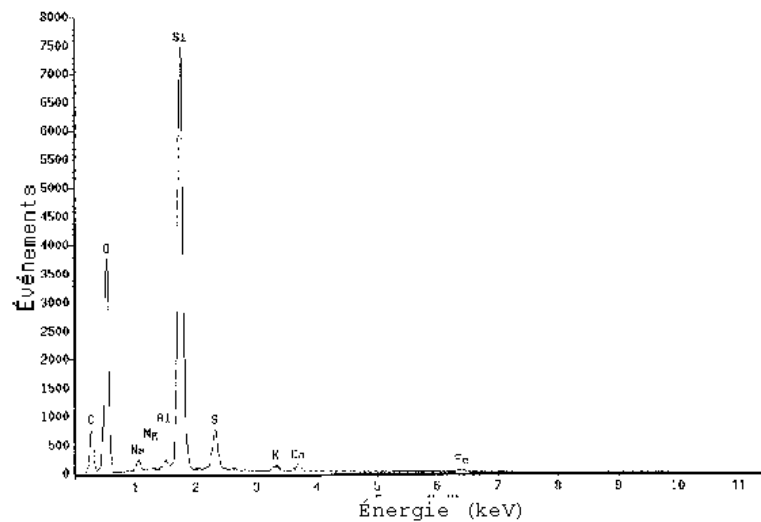


Fig IV.4 – Spectre de microanalyse d'une zone de filtre correspondant à une particule lisse de 1 µm de diamètre

La nature de l'analyse de ces spectres est seulement qualitative car les intensités observées pour les pics dépendent non seulement de la concentration de l'atome correspondant, dans la portion d'échantillon soumis à l'analyse mais aussi de leur section efficace, influencée par le voisinage de chaque atome. Seules les variations des intensités relatives d'un spectre à l'autre traduisent effectivement des variations des abondances relatives des éléments correspondants. Les sections efficaces d'extinction et de rétrodiffusion sont ainsi calculées en fonction du rayon, pour chaque type de particule. Il existe trois types de particules :

- La théorie de Rayleigh est utilisée pour calculer la section efficace des particules plus fines de faible rayon inférieur à 20 nm.
- Les particules de rayons moyens compris entre 20 nm et 500 nm (essentiellement des suies) sont de formes fractales, une théorie dérivée de celle de Sorensen [Sorensen C, 1992] développée dans laboratoire est appliquée pour le calcul de section efficace.
- Et enfin, le mode correspondant aux aérosols de tailles plus importantes (centré sur 0,9 μm) est composé de 50% de suies et de 50% de particules minérales. Pour chaque type de particule, un algorithme particulier basé sur la théorie de diffusion de Mie (pour les particules à symétrie proche de la symétrie sphérique) doit être utilisé pour calculer la section efficace.

Les sections efficaces d'extinction et de rétrodiffusion sont ainsi calculées en fonction du rayon, pour chaque type de particule. La distribution de taille de la Fig. IV.2, permet ensuite

d'estimer la valeur de $\overline{\sigma_{back}^{Aero}}$, $\overline{\sigma_{ext}^{Aero}}$ et le rapport $\frac{\alpha_{ext}^{Aero}}{\beta_{Aero}}$

2.1.2 Mesures à distance par Lidar

Les prélèvements de particules sur des filtres donnent des informations détaillées sur la concentration et la composition des aérosols atmosphériques. Mais les prélèvements ne donnent pas accès à la répartition géographique des aérosols. Ils sont en effet représentatifs de leur lieu de prélèvement. Afin d'avoir accès à la dynamique de la pollution urbaine par les aérosols, On va donc effectuer des mesures par Lidar de la concentration. Ces mesures sont complémentaires des mesures ponctuelles. En effet, elles permettent de cartographier en trois dimensions la concentration en aérosols atmosphériques et de suivre son évolution temporelle.

$$\alpha_{ext}(z,\lambda) = \alpha_{ext}^{molec}(z,\lambda) + \alpha_{ext}^{Aero}(z,\lambda) \quad (IV.1)$$

$$\beta_{ext}(z,\lambda) = \beta_{molec}(z,\lambda) + \beta_{Aero}(z,\lambda) \quad (IV.2)$$

$\alpha_{ext}^{molec}(z,\lambda)$ et $\beta_{molec}(z,\lambda)$ peuvent être calculés, en fonction de l'altitude et de la longueur d'onde, à partir de profils verticaux de température et de pression générés par un modèle atmosphérique [Seinfeld, 1985]. C_{molec} est connu et est égal à $8\pi/3$.

Ayant calculé $\alpha_{ext}^{molec}(z,\lambda)$ et $\beta_{molec}(z,\lambda)$, on accède alors à $\alpha_{ext}^{Aero}(z,\lambda)$ et $\beta_{molec}(z,\lambda)$. Il reste alors à déterminer la distribution spatiale de la concentration totale par Lidar, dont l'interprétation est aidée par les données tirées de l'analyse des filtres. En effet :

$$\alpha_{ext}^{Aero}(\lambda) = \int \sigma_{ext}^{Aero}(\lambda, r) \rho(r) dr = \int \pi \cdot r^2 Q_{ext} \rho(r) dr = N_0(z) \overline{\sigma_{ext}^{Aero}} \quad (VI.3)$$

$$\beta_{Aero}(\lambda) = \int \sigma_{back}^{Aero}(\lambda, r) \rho(r) dr = \int \pi \cdot r^2 Q_{back} \rho(r) dr = N_0(z) \overline{\sigma_{back}^{Aero}} \quad (VI.4)$$

Les valeurs de $\overline{\sigma_{back}^{Aero}}$ et $\overline{\sigma_{ext}^{Aero}}$ sont calculées alors en fonction de la distribution de taille normalisée des aérosols à partir des mesures de prélèvement au niveau du sol.

Alors d'après Equ. IV.3 et IV.4, le nombre total de particules $N_0(z)$ en fonction de la distance est alors accessible. Bien qu'une distribution en nombre de particule soit plus pertinente en termes de santé publique, une concentration en masse ($\mu g/m^3$) peut aussi être déterminée, en utilisant la distribution de taille normalisée.

- ***Exemple d'un profil de concentration obtenu durant la campagne ELO (pour Etude Lyon Ozone) :***

Le signal Laser utilisé dans le cadre de cette campagne est un signal UV de longueur d'onde 399 nm dans les normes de sécurité oculaires. La détection est assurée par un photomultiplicateur placé directement au foyer du télescope, et le signal est enregistré sur un oscilloscope numérique de bande passante 1 MHz. La fonction logarithmique du signale Lidar ($L(z)$) corrigé en distance au carré est représentée sur la Fig. IV.5.

A une distance de 1800 m, c'est à dire à une altitude de 1100 m environ, un fort décrochement de la courbe $L(z)$ est observable. Ceci traduit une baisse importante du coefficient de rétrodiffusion b , provenant d'une diminution de la concentration en aérosols.

Cette nette diminution met en évidence la fin de la couche limite. En effet, la couche limite représente la couche d'air au voisinage de la terre dont l'écoulement est perturbé par la rugosité du sol.

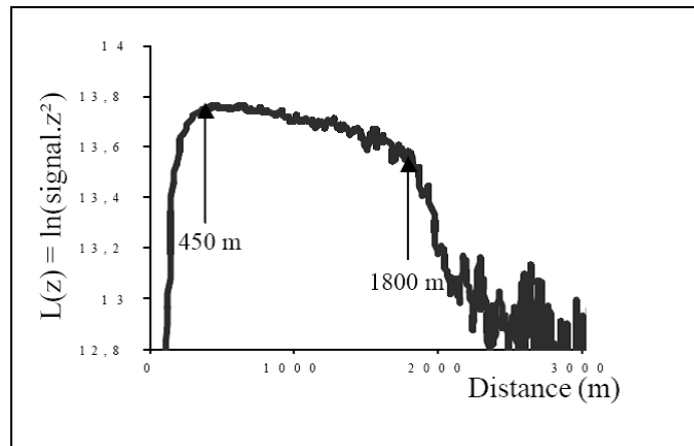


Fig IV.5 – Logarithme du signal Lidar corrigé en distance au carré

Le rapport entre les coefficients d’extinction et de rétrodiffusion est déterminé comme cela mentionné auparavant par l’algorithme de Klett (Fig. IV.6). Notons que pour les distances supérieures à 2000 m, le rapport reste égal à $8\pi/3$ soit environ 8,4. Ceci signifie que seule la contribution Rayleigh est encore présente et donc que la contribution des aérosols est quasi nulle.

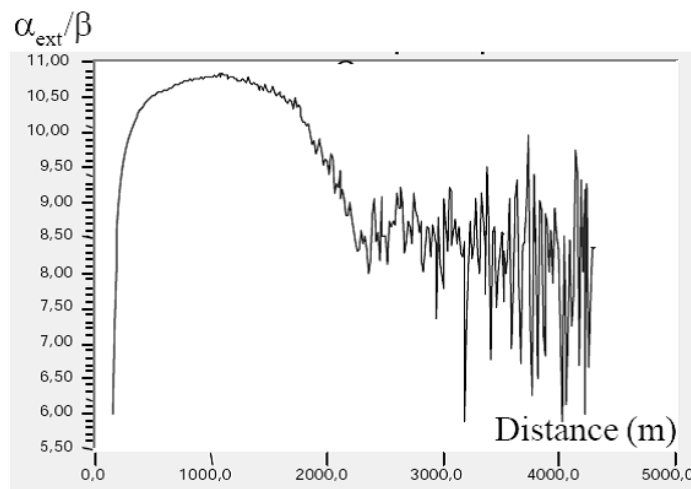


Fig IV.6 – α_{ext}/β en fonction de la distance

On obtient ainsi la concentration d’aérosols. La concentration massique de particules correspondantes est ensuite déterminée à partir de la distribution de taille obtenue au microscope électronique à balayage. La Fig. IV.7 montre un tel profil de concentration. La concentration atteint ici une valeur maximale de 18 mg/m^3 et devient quasi nulle après une distance de 2200 m, soit une altitude de 1300 m, ce qui vérifie a posteriori l’hypothèse

$\beta_{Aero}(z_m = 0)$. Il faut cependant noter que la validité des résultats obtenus à l'intérieur de la couche limite diminue loin du sol car le point de référence est au niveau du sol. En revanche, l'aspect qualitatif des mesures reste valable, même en altitude.

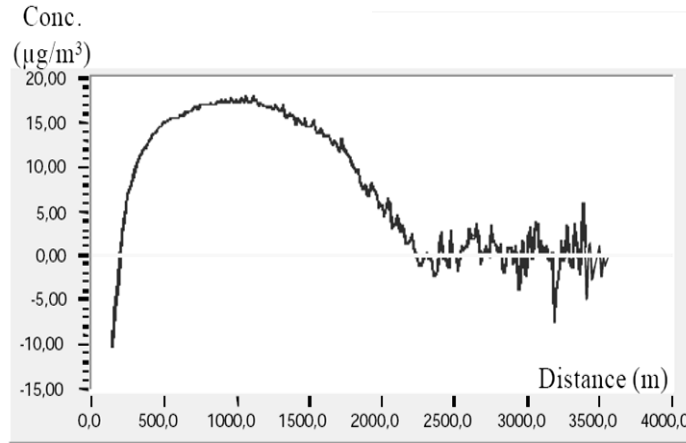


Fig IV.7 – Concentration en fonction de la distance obtenue à partir du signal Lidar

L'inconvénient de cette méthode, c'est une méthode un peu lourde à cause de l'étude des filtres et utilise comme hypothèse forte que l'atmosphère est homogène verticalement.

2.2 Mesure de concentration d'aérosols par la méthode Lidar multispectral toute optique

2.2.1 Méthode multispectrale avec une distribution de taille prédéfinie

Cette méthode multispectrale à peu longueurs d'ondes est appliquée pour déterminer la distribution de taille moyenne des aérosols stratosphériques, dont la forme est choisie à priori, par exemple caractérisation des aérosols stratosphériques provenant de l'éruption du Mont Pinatubo [Del Guasta, 1994].

La méthode utilisée consiste à réaliser un ajustement non-linéaire de manière à reproduire les coefficients d'extinction et de rétrodiffusion mesurés aux différentes longueurs d'onde.

Il existe plusieurs fonctions de distribution tout dépend de la nature des particules atmosphériques. Quelques distributions servent cependant dans pas mal d'applications.

Par exemple, les deux distributions log-normale monomodales et multimodale [Seinfeld, 1985] ont été utilisées pour modéliser les aérosols stratosphériques, Djermendjian [Deirmendjian, 1964] utilisée pour une atmosphère brumeuse ou nuageuse et la distribution de Junge [Junge, 1963] pour caractériser une atmosphère claire ou avec une légère brume.

- **Distribution Log-normale**

$$\rho(r) = \sum_{i=1}^p \frac{N_i}{\sqrt{2\pi \ln \sigma_i}} \cdot \exp \left[-\frac{(\ln r - \ln R_i)^2}{2(\ln \sigma_i)^2} \right] \quad (IV.5)$$

Où le nombre de modes p peut varier de 1 à 3. Chacun de ces modes i est caractérisé par un rayon médian R_i , un écart type σ_i et son poids relatif N_i dans la concentration totale.

Le rayon R_0 correspondant au maximum de la distribution est $R_0 = \exp(\mu - \varepsilon^2_{quad})$.

- **Distribution de Djermendjian**

$$\rho(r) = a_2 \left(\frac{r}{a_1} \right)^6 \exp \left(-\frac{6 \cdot r}{a_1} \right) \quad (IV.6)$$

Avec a_1 : le rayon correspondant au maximum de la distribution.

a_2 : une constante de normalisation.

La concentration en particules N_0 est obtenue en intégrant Equ IV.6 entre 0 et l'infini.

- **Distribution de Junge**

$$\rho(r) = \frac{a_1}{r^{a_2}} \quad (IV.7)$$

Avec a_1 : la constante de normalisation.

a_2 : l'exposant de Junge.

La concentration des particules N_0 est déterminée, pour cette distribution, par l'intégration de r entre $r_{min} = 0,1 \mu\text{m}$ et $r_{max} = 2 \mu\text{m}$.

La recherche de la distribution de taille est effectuée en minimisant le paramètre χ^2 qui représente une différence entre le logarithme du signal Lidar mesuré et le logarithme simulé, ce dernier calculé en fonction des sections efficaces de chaque type de particules.

$$\chi^2 = \frac{1}{j} \sum_{j=1} \frac{\left(S_j(z, \lambda_j) - F(z, \lambda_j) \right)^2}{\varepsilon(\lambda_j)^2} \quad (IV.8)$$

Où : $S_j(z, \lambda_j)$ est le logarithme de la mesure Lidar $I(z, \lambda_j)$, à la longueur d'onde λ_j , corrigée en distance et normalisée par l'intensité I_0 du laser et les caractéristiques de réception, décrites par la compression géométrique $Y(z)$.

$$S_j(z, \lambda_j) = \ln \left(\frac{I(z, \lambda_j)}{I_0} \cdot z^2 \cdot \frac{1}{Y(z)} \right) \quad (IV.9)$$

$\varepsilon(\lambda_j)$ traduit le bruit sur les données Lidar, à la longueur d'onde λ_j .

$F(z, \lambda_j)$ est la fonction qui modélise les mesures et qui s'écrit.

$$F(z, \lambda_j) = \ln(\beta(z, \lambda_j)) + 2 \cdot \int_0^z \alpha_{ext}(z, \lambda_j) dr \quad (IV.10)$$

Pour minimiser la valeur de $\chi^2(N, R, \sigma)$ à z et λ fixés, une procédure itérative effectue un ajustement non linéaire des paramètres a_i de la distribution choisie, jusqu'à ce qu'un minimum global soit obtenu. Les valeurs de $\rho(z)$, $\alpha(z)$ et $\beta(z)$ sont alors calculées pour l'ensemble des valeurs a_i de ce minimum global. La distance z est ensuite augmentée d'un pas Δz et les signaux Lidar sont corrigés de l'extinction entre z_{min} et z . Puis, le minimum de $\chi^2(N, R, \sigma)$ est recherché pour la nouvelle valeur de z .

On procède ainsi jusqu'à ce que z ait atteint une valeur maximale z_{max} déterminée.

L'organigramme suivant montre clairement l'enchaînement des étapes de cette procédure.

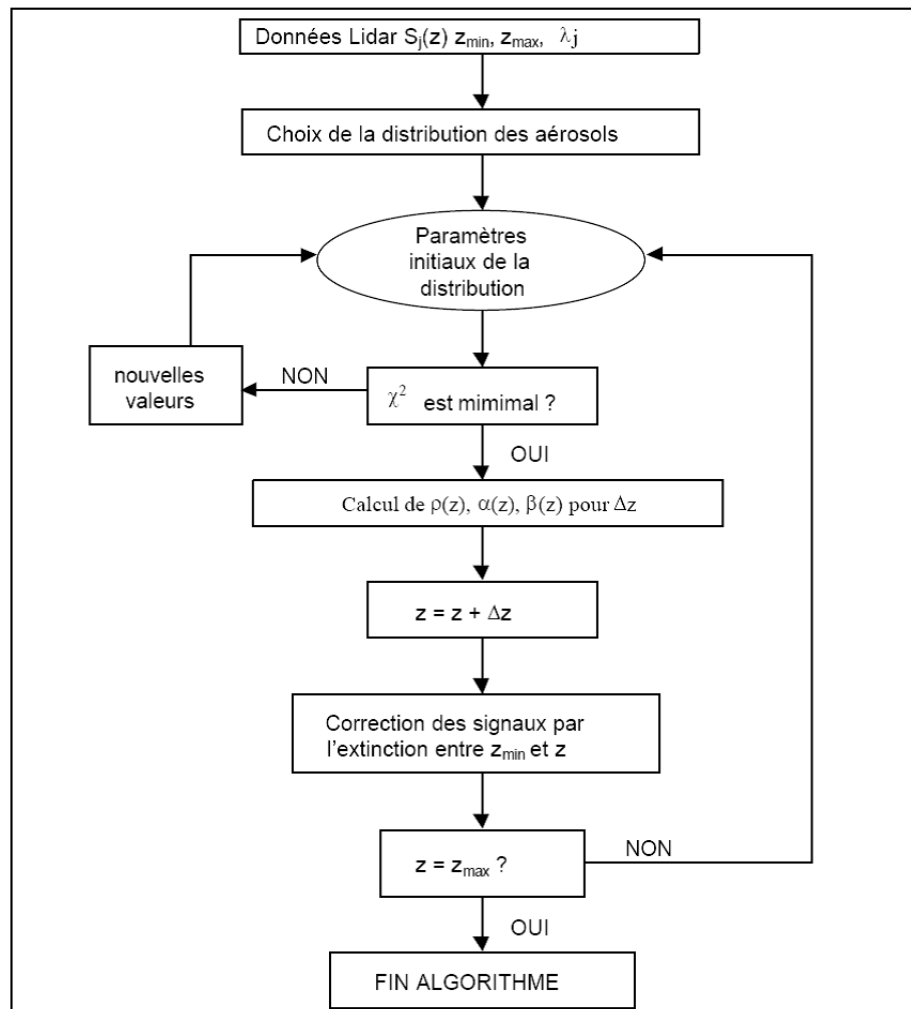


Fig IV.8 – Ajustement non linéaire des paramètres de la distribution de taille des particules en fonction de distance de longueurs d'onde et du signal Lidar

A noté cependant, que cette méthode a été utilisée lors de nombreuses campagnes avec de bon résultats [Rairoux, 1991] lorsque l'atmosphère ne contient pas un éventail trop large de types de particules (par exemple du brouillard, des aérosols stratosphériques...).

Des études réalisées dans cet axe, montrent que cet algorithme est peu stable et présente des incertitudes parfois importantes dans les paramètres de la distribution recherchés. Ces incertitudes dues aux données brutes et à la configuration géométrique du système Lidar.

2.2.2 Méthode multispectrale toute optique

La technique de mesure de télédétection Lidar multi-spectrales [Ligon, 1996] est une application très attractive pour La caractérisation à distance de la distribution de taille des aérosols et la distribution des indices de réfraction à partir de mesures Lidar à plusieurs longueurs d'onde sans faire d'hypothèses a priori sur la forme de la distribution, ce qui était le cas de la méthode précédente. Elle est basée sur des approches stochastiques comme la méthode de Monte-Carlo ou encore la méthode les algorithmes génétiques que nous avons utilisée dans notre simulation pour caractériser une atmosphère désertique. Ces approches permettent d'accélérer considérablement le temps de calcul, même à partir de mesures possédant un faible rapport signal sur bruit et caractériser ainsi de manière quasi-instantanée la répartition spatio-temporelle de la distribution de taille des aérosols.

Les coefficients d'extinction s'écrivent de la façon suivant :

$$\alpha_{ext}^{Aero}(\lambda, z) = \int \sigma_{ext}^{Aero}(\lambda, r, m) \rho(r, z) dr = \int \pi \cdot r^2 Q_{ext}(\lambda, r, m) \rho(r, z) dr \quad (IV.11)$$

$$\beta_{Aero}(\lambda, z) = \int \sigma_{back}^{Aero}(\lambda, r, m) \rho(r, z) dr = \int \pi \cdot r^2 Q_{back}(\lambda, r, m) \rho(r, z) dr \quad (IV.12)$$

$$\rho(r, z) = N_0 \cdot g(r) \quad (IV.13)$$

$\rho(r, z)$: la distribution de taille des aérosols, exprimée comme le produit du nombre de particules $N(z)$ par la distribution normalisée $g(r, z)$.

r : étant la taille des particules.

On peut encore réécrire les équations précédentes un peu différemment :

$$\alpha_{ext}^{Aero}(\lambda, z) = N_0 \int_0^{\infty} K_{ext}(\lambda, r, m) g(r, z) dr \quad (IV.14)$$

$$K_{ext}(\lambda, r, m) = \pi r^2 Q_{ext}^{Aero}(\lambda, r, m) \quad (IV.15)$$

Où : $K_{ext}(\lambda, r, m)$: la fonction de base (Kernel fonction).

Dans notre approche, la résolution de ces équations intégrales passe par une discrétisation sur la taille des particules. Si $g(r, z)$ est supposée limitée à l'intérieur d'un intervalle fini (r compris entre r_{min} et r_{max}), l'intégrale de Equ IV.14 peut alors être approximée par une somme sur un nombre discret M de rayons :

$$\alpha_{ext}^{Aero}(\lambda, z) = N_0 \sum_{i=1}^M \overline{K_{ext}}(r_i, \lambda, m) f(r_i) \quad (IV.16)$$

Où : $\overline{K_{ext}}(r_i, \lambda, m) = \frac{1}{\delta r} \int_{r_i - \delta r/2}^{r_i + \delta r/2} K_{ext}(r, \lambda, m) dr$ est la moyenne de la fonction de noyau sur

l'intervalle de largeur δr centré sur r_i et $f(r_i)$ correspondant à la distribution de taille des aérosols dans le même intervalle.

De la même façon, le coefficient de rétrodiffusion peut être écrit sous la forme :

$$\beta_{Aero}(\lambda, z) = N_0 \sum_{i=1}^M \overline{K_{back}}(r_i, \lambda, m) f(r_i) \quad (IV.17)$$

$$\text{Où : } \overline{K_{back}}(r_i, \lambda, m) = \frac{1}{\delta r} \int_{r_i - \delta r/2}^{r_i + \delta r/2} K_{back}(r, \lambda, m) dr \quad (IV.18)$$

$$K_{back}(\lambda, r, m) = \pi r^2 Q_{back}^{Aero}(\lambda, r, m) \quad (V.19)$$

On obtient ainsi deux équations discrètes de coefficients d'extinction et rétrodiffusion en fonction de nombre de longueurs d'onde utilisés ($j=1 : N$), et de nombre d'intervalles correspond à la discrétisation de rayons des particules ($i=1 : M$).

$$\begin{cases} \alpha_j = N_0 \sum_{i=1}^M (\overline{K_{ext}})_{ji} f_i \\ \beta_j = N_0 \sum_{i=1}^M (\overline{K_{back}})_{ji} f_i \end{cases} \quad (IV.20)$$

Et finalement, on représente chacune par un système matriciel:

$$\begin{bmatrix} \alpha_1 \\ \alpha_2 \\ \alpha_3 \\ \cdot \\ \cdot \\ \alpha_N \end{bmatrix} = N_0 \cdot \begin{bmatrix} K_{ext1}^1 & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & K_{ext1}^M \\ \cdot & & & & & \\ \cdot & & & & & \\ \cdot & & & & & \\ \cdot & & & & & \\ \cdot & & & & & \\ K_{extN}^1 & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & K_{extN}^M \end{bmatrix} \begin{bmatrix} f_1 \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ f_M \end{bmatrix} \quad (IV.21)$$

$$\begin{bmatrix} \beta_1 \\ \beta_2 \\ \beta_3 \\ \cdot \\ \cdot \\ \beta_N \end{bmatrix} = N_0 \cdot \begin{bmatrix} K_{back1}^1 & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & K_{back1}^M \\ \cdot & & & & & \\ \cdot & & & & & \\ \cdot & & & & & \\ \cdot & & & & & \\ \cdot & & & & & \\ K_{backN}^1 & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & K_{backN}^M \end{bmatrix} \begin{bmatrix} f_1 \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ f_M \end{bmatrix} \quad (IV.22)$$

Où $\alpha_1, \dots, \alpha_N$ et β_1, \dots, β_N sont les données de mesures expérimentales en fonction de longueurs d'onde et la distance qu'on peut les déduire directement du signal Lidar en utilisant l'inversion de Klett.

K_{ext} et K_{back} sont calculées en utilisant la théorie de la diffusion de Mie si on suppose que les particules sont sphériques ou similaires à une sphère, dans le cas contraire (forme irrégulière des particules), des modèles prenant en compte le non sphéricité des particules [Mishchenko, 1996] doivent être appliqués. Pour d'autres types de particules qui ont de forme fractale, comme les suies, le modèle fractal peut bien sûr être employé [Sorensen C., 1992].

Le vecteur $f(r)$, correspondant à la distribution de taille des aérosols normalisée, est l'inconnu. La détermination des inconnues (fonctions de bases) qui passe nécessairement par l'inversion de système matriciel est très délicate, à cause de nombre élevé d'intervalles de discrétisation de rayons M par rapport au nombre de longueurs d'onde N , dans la but d'approximer l'intégrale des Equ IV.11 et IV.12. Il est égale au maximum le double.

L'approche statistique utilisée, basée sur les algorithmes génétiques (Fig.IV.9) qui est une démarche utilisée dans de nombreux problèmes d'optimisation. Elle permet de s'affranchir du traitement direct des erreurs. La population initiale est un ensemble de vecteurs de distribution de taille $[f_i]$, où chaque individu f_i est une distribution de taille discrétisée sur M tailles différentes de particules.

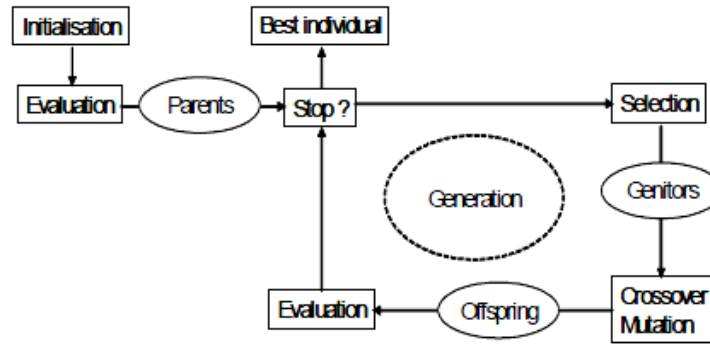


Fig IV.9– Principe général de l'algorithme génétique

La population initiale uniforme f_i^0 est générée de manière aléatoire et le nombre d'individus ne doit pas rester fixe tout au long de la procédure. L'algorithme génétique avance de population en population en utilisant des générateurs génétiques standards jusqu'à ce que le critère d'optimisation soit satisfait, c'est-à-dire minimiser la grandeur χ^2 qui est donnée par :

$$\chi^2 = \frac{1}{j} \sum_{j=1}^J \left[\frac{(\alpha_j^m - \alpha_j^a)^2}{\varepsilon_j^2} \right] \quad (IV.23)$$

α^m : Les données expérimentales, tandis que α^a est l'ajustement initial des coefficients d'extinction via l'ajustement de vecteur de distribution f_i .

ε_j : expriment l'erreur due à la discrétisation et à la non-unicité de la solution.

Les longueurs d'ondes doivent être bien choisies, car il est nécessaire qu'elles soient proches de dimensions des particules pour que la procédure de la simulation soit plus pertinente et sensible. Pour un intervalle de longueurs d'ondes donné (par exemple fixé par l'expérience), l'utilisation simultanée de $\alpha_{ext}(\lambda)$ et de $\beta(\lambda)$ permet d'accéder à une plage de taille plus grande.

3. Détection de la distribution de tailles des particules désertiques par la méthode Lidar multispectrale en utilisant la méthode des algorithmes génétiques

3.1 Introduction

La distribution de taille des aérosols est une propriété physique très importante qui répond aux préoccupations scientifiques et mêmes publiques en termes de santé et environnement. Elle fait l'objet de plusieurs recherches d'actualités pour modéliser la pollution atmosphérique dont fait parti le travail que nous avons effectué.

Notre intérêt s'est appuyé sur l'étude des particules désertiques caractérisant une grande partie du globe terrestre, pour lesquelles nous avons essayé de détecter leurs formes de distributions de taille par la méthode Lidar multispectrale en utilisant un spectre de lumière Laser allant de l'UV à l'IR moyen, et dont les longueurs d'ondes ont été fixés dans les valeurs suivantes : ($\lambda=0.193, 0.694, 1.064, 3.37$ et $10.60 \mu\text{m}$). Pour chaque longueur d'onde, on doit donc avoir un profile de coefficients d'extinction correspondant.

La méthode stochastique qu'on va utiliser pour l'optimisation des paramètres de distribution est la méthode des algorithmes génétiques au lieu de Monte Carlos, car cette méthode est une approche plus efficace et permet d'accélérer considérablement le temps de calcul.

Finalement les résultats obtenus seront comparés avec deux modèles de distribution que nous allons considérer Longtin et Chomette.

3.2 Modélisation des aérosols désertiques

Plusieurs études ont montré que les propriétés radiatives des aérosols d'origine désertique peuvent induire des changements régionaux importants dans les flux radiatifs au sommet de l'atmosphère, de l'ordre de 15 W/m^2 dans le spectre solaire et de 5 W/m^2 dans le spectre thermique [Tegen, 1995]. Cependant, une grande incertitude persiste sur leur distribution verticale et sur leur transport à l'échelle synoptique [Sokolik, 1999]. Les particules de grosse et petite taille ont chacune leur importance dans les processus atmosphériques. Les petites particules qui ont un impact radiatif important, sont supposées être transportées sur de longues distances. Les particules microniques ont pour leur part une surface plus grande, et peuvent ainsi être le siège de modifications chimiques dans la composition des gaz atmosphériques. Elles peuvent également agir comme des noyaux de condensation et donc modifier la microphysique nuageuse. Cependant, du fait de leur taille, ces particules sont supposées sédimenter rapidement.

3.2.1 Modélisation de Longtin

Les travaux de Longtin et al [Longtin, 1988] pour caractériser les aérosols désertiques s'étaient axés sur trois types de composantes, carbonée [Shettle et Fenn, 1979], hydrosoluble (le sulfate d'ammonium [Toon., 1976]) et minérale, chacune ayant sa propre granulométrie, sa fraction volumique et son indice complexe de réfraction. Les minéraux contiennent eux-mêmes deux sortes de mélanges, externe et interne. Le mélange externe est constitué de particules de quartz pur et de quartz dopé suivant une certaine proportion, alors que le

mélange interne est présent dans ces particules de quartz dopé sous la forme des particules de quartz recouvertes d'hématite selon diverses fractions volumiques f_i .

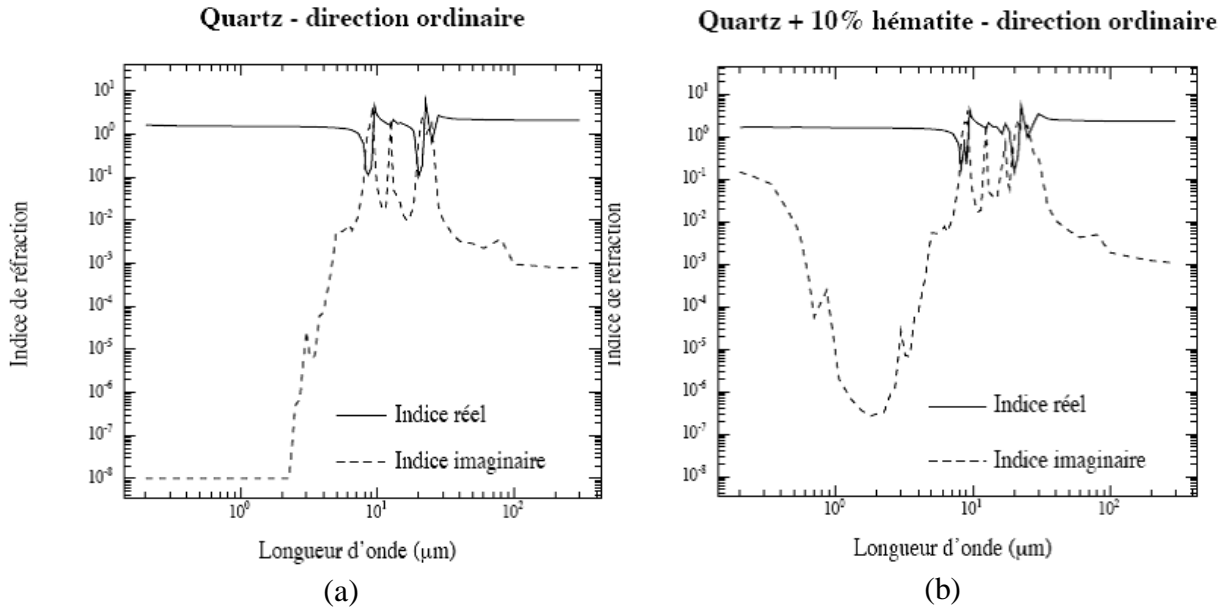


Fig IV.10– Indices de réfraction du quartz
(a) quartz pur d'axe optique ordinaire
(b) quartz dopé comportant une fraction volumique de 10% d'hématite [Longtin et al, 1988]

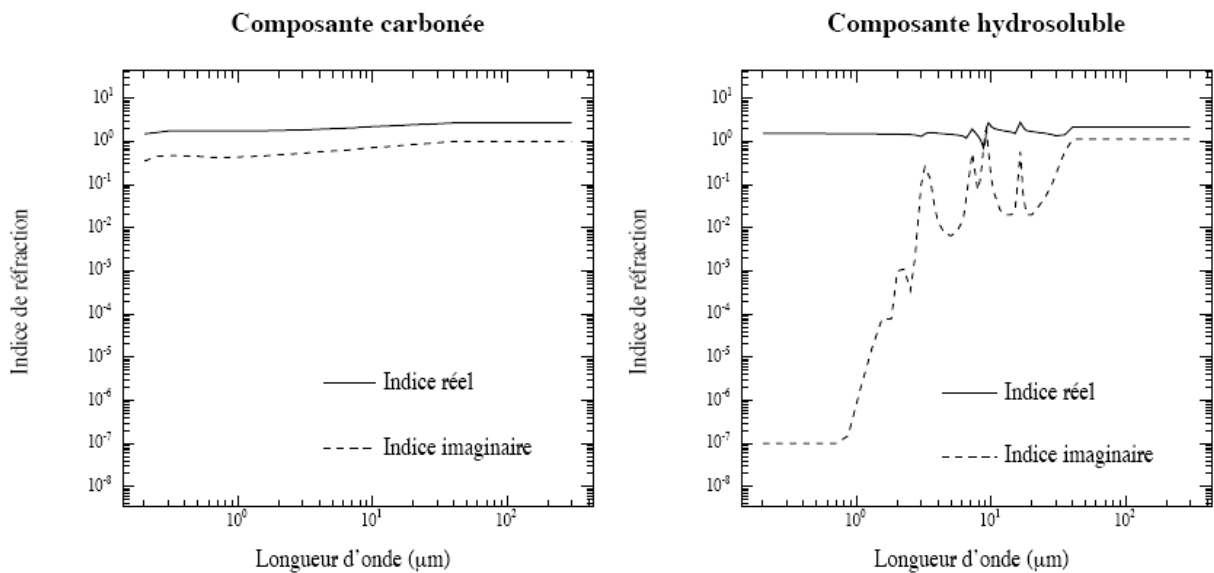


Fig IV.11– Indices de réfraction caractérisant les modes fins de particules employés dans la modélisation de Longtin [Longtin et al, 1988]

Longtin a utilisé la théorie de Mie pour calculer les paramètres optiques des aérosols en fonction de l'indice de réfraction de chaque composante, en supposant ainsi que les particules

ont une forme sphérique. Il a considéré une relation entre la proportion de grosses particules et l'action éolienne de telle manière on enregistre une augmentation de la concentration d'aérosol dans l'atmosphère sous l'action de la vitesse des vents v (m/s).

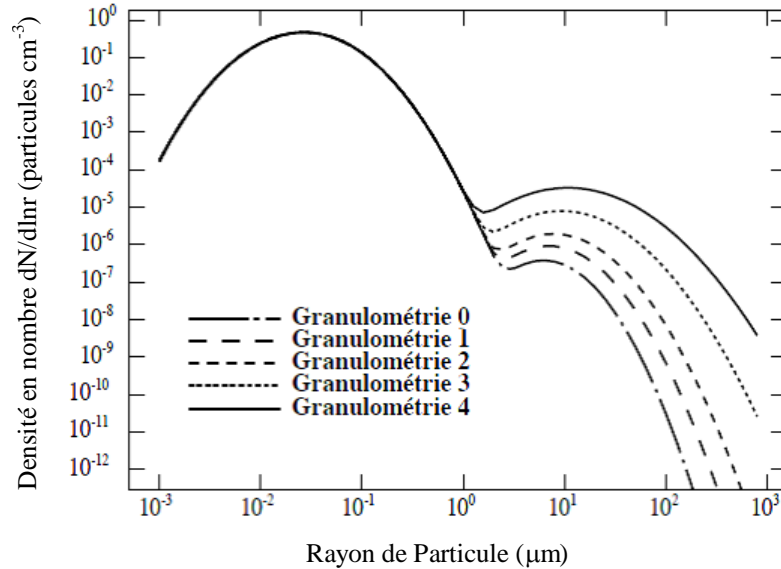


Fig IV.12 – Exemples de distributions en taille de particules du modèle d'aérosol désertique de Longtin et al., normalisées à une particule par centimètre cube d'air

Les spectres des coefficients volumiques d'extinction issus de la théorie de Mie sont présentés dans la Fig. IV.13 pour des longueurs d'onde comprises entre 0,2 et 30 μm .

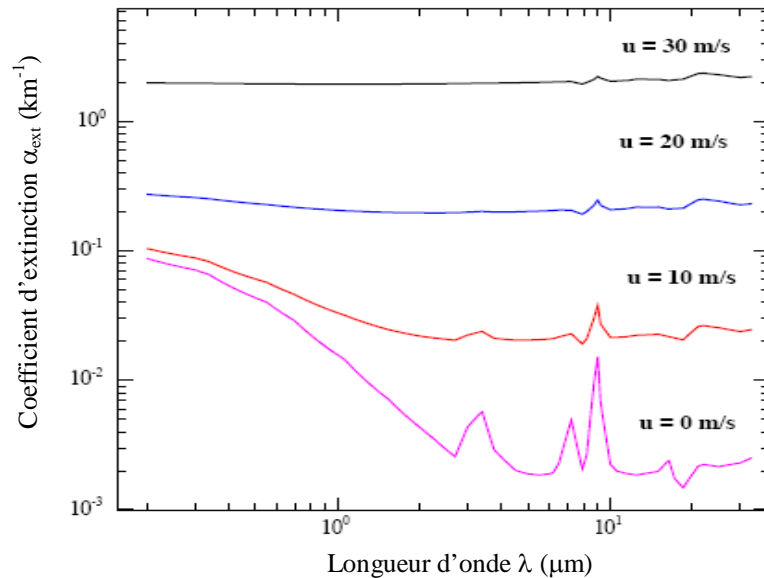


Fig IV.13 – Coefficients d'extinction calculés par le modèle d'aérosols désertiques de Longtin et al., pour les valeurs du paramètre éolien u : 0, 10, 20 et 30 m/s.

En règle générale, on observe l'augmentation des paramètres précédents avec le paramètre ν . Pour les granulométries croissantes, on augmente la concentration en particules minérales, entraînant ainsi une augmentation proportionnelle des coefficients d'extinction, d'absorption et de diffusion.

On peut noter aussi la dépendance spectrale du coefficient d'extinction pour $\nu=0$ m/s et 10m/s, tandis que pour 20 et 30 m/s cette dépendance disparaît, même dans les régions du spectre où la partie imaginaire de l'indice de réfraction présente des variations significatives (Fig. IV.10). Ces variations s'expliquent par l'évaluation granulométrique avec ν . Pour une valeur de ν nulle, les particules fines sont prépondérantes (en nombre), caractérisées par une extinction dépendant de la longueur d'onde. Les valeurs de ν plus élevées sont associées à la présence de grosses particules minérales, dont l'extinction spectralement neutre devient prépondérante (Ce modèle suppose que le volume des composantes carbonées et hydrosolubles reste constant au cours du soulèvement de poussière, et c'est la concentration en composante minérale qui dépend de la vitesse du vent [Jaenicke, 1988]).

3.2.2 Modélisation de Chomette

Le modèle de Chomette [Chomette, 1999] est basé sur les phénomènes de transport et de dépôt et leurs influence sur les propriétés microphysiques et radiatives des aérosols désertiques. Il a considéré en effet, que la contribution des particules minérales dans distribution en taille est très faible [Alfaro et al, 1998] et le processus de transport, même à grande distance, n'affecte pas ces compositions minéralogiques de l'aérosol tant qu'il se réalise en atmosphère sèche [Rahn et al, 1976], ce qui implique une faible évolution de l'indice complexe au cours du temps. Et par conséquent, un seul jeu d'indices complexe de réfraction a été utilisé dans cette étude (Fig.IV.14) contrairement à Longtin. Ces indices sont calculés en fonction de longueurs d'onde de visible à l'infrarouge [Grams et al. 1974 ; Volz, 1973 ; Patterson et al, 1977].

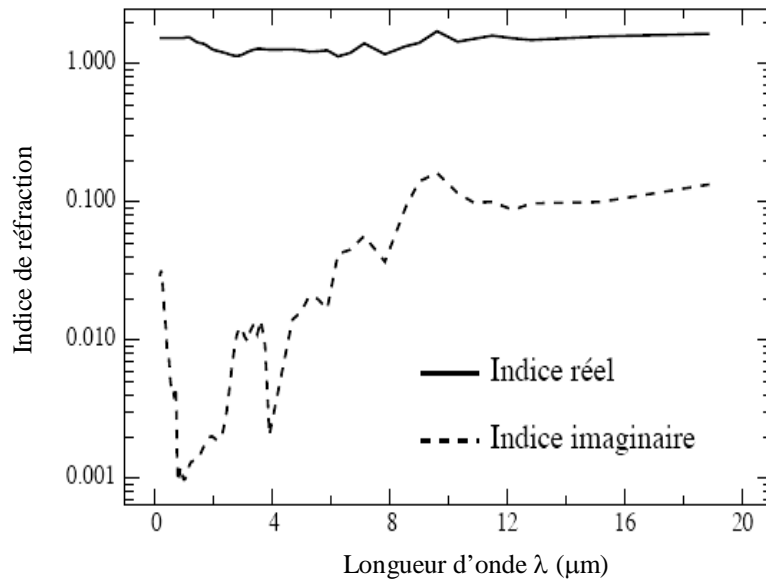


Fig IV.14– Indices complexes de réfraction utilisés dans la modélisation de Chomette.

L'évolution de la granulométrie de l'aérosol désertique au cours du transport est influencée par la sédimentation affectant principalement les grosses particules. Donc, plus on s'éloigne de la source, plus le spectre granulométrique tend à s'orienter vers les particules les plus fines.

La modélisation réalisée par Chomette associée à un jeu d'indice complexe, présente deux couples de distributions granulométriques provenant de d'Almeida et d'Alfaro.

Les mesures in situ D'Almeida [D'Almeida et al., 1991] donnent deux granulométries :

La première distribution c'est « wind carrying dust » (WCD) caractérise l'aérosol désertique transporté au-dessus du continent après son soulèvement, ce qui n'exclut la présence que des plus grosses particules. Et la deuxième distribution « background » (BG) caractérise les particules loin de leur source, c'est une granulométrie fine avec peu de grosses particules par rapport à la distribution WCD.

La granulométrie d'Alfaro et al, notée (A1) inclut les particules minérales en suspension pour les différents types de sol sèche (en particulier d'origines sahélienne et subsaharienne). Pour compléter cette description granulométrique, une dernière distribution (A2) est déduite de A1 en modélisant la sédimentation des grosses particules de (A1) durant le transport loin des sources.

Les calculs de Mie nécessaires pour établir les paramètres optiques de l'aérosol exigent la connaissance de la distribution en taille de particules. Pour cela et comme a été le cas pour Longtin, Chomette a calculé les coefficients d'extinction de ces granulométries par la théorie de Mie, en considérant que les particules ont de forme sphérique.

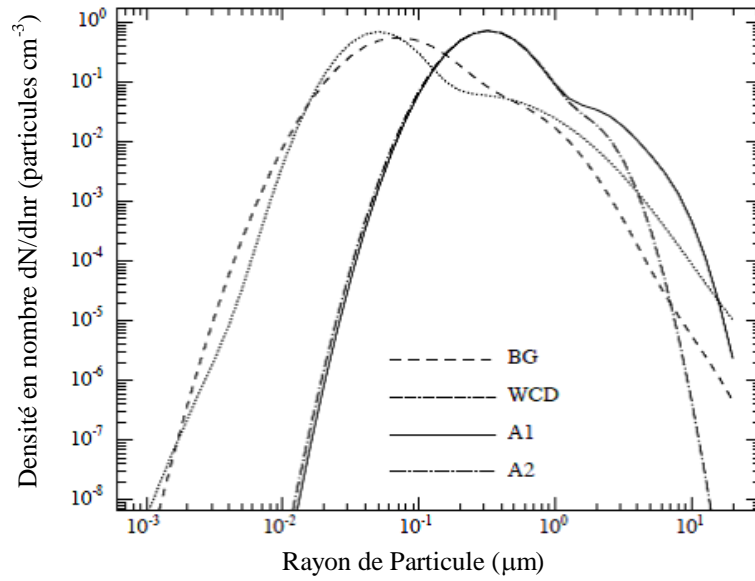


Fig IV.15 – Granulométries utilisées dans la modélisation de l’aérosol désertique de Chomette [1999], normalisées à une particule par centimètre cube d’air.

Les spectres des coefficients volumiques d’extinction issus de la théorie de Mie sont représentés dans la Fig. IV.16 pour des longueurs d’onde comprises entre 0,2 et 30 μm . Ces spectres correspondent les deux modes granulométriques citées dessus d’Almeida et d’Alfaro.

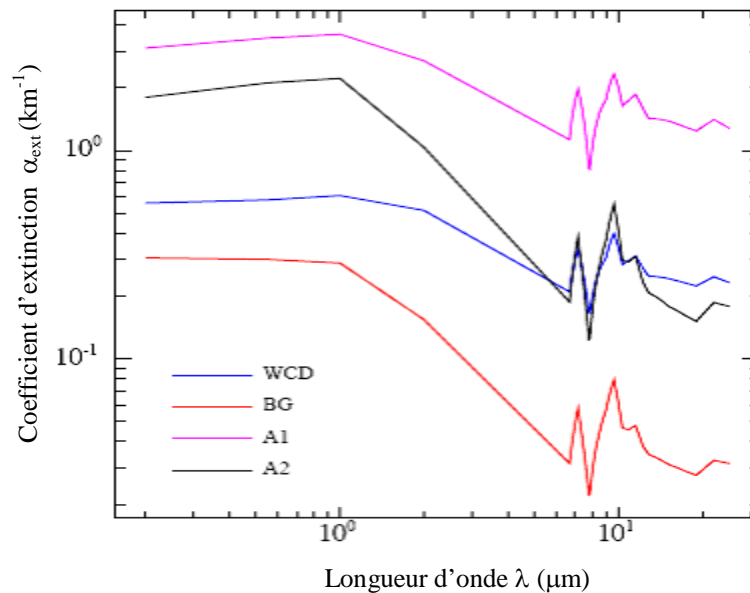


Fig IV.16 – Coefficients d’extinction de la modélisation de Chomette en fonction de longueur d’onde dans le visible et proche infrarouge

3.3 Propriétés optiques d'un aérosol désertique de forme sphérique

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 force 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.

3.3.1 Section efficace et efficacité

Les paramètres fondamentaux de la théorie de Mie (applicables aux particules dont la forme est similaire à une sphère) sont d'une part l'indice complexe de réfraction et d'autre part le paramètre de taille $2\pi r/\lambda$. Le paramètre de taille est la variable essentielle pour savoir si l'on peut effectuer l'approximation simplificatrice du dipôle électromagnétique (Rayleigh).

Les variations des sections efficaces d'extinction, de diffusion, d'absorption et de rétrodiffusion ainsi que leurs efficacités correspondantes en fonction du paramètre de taille, sont reportées sur les Fig. IV.17, IV.18, IV.19 et IV.20 en utilisant les deux modèles désertiques de Longtin et Chomette (différents indices de réfraction), dans le cas d'une particule unique. Ces calculs ont été obtenus par application de la théorie de Mie.

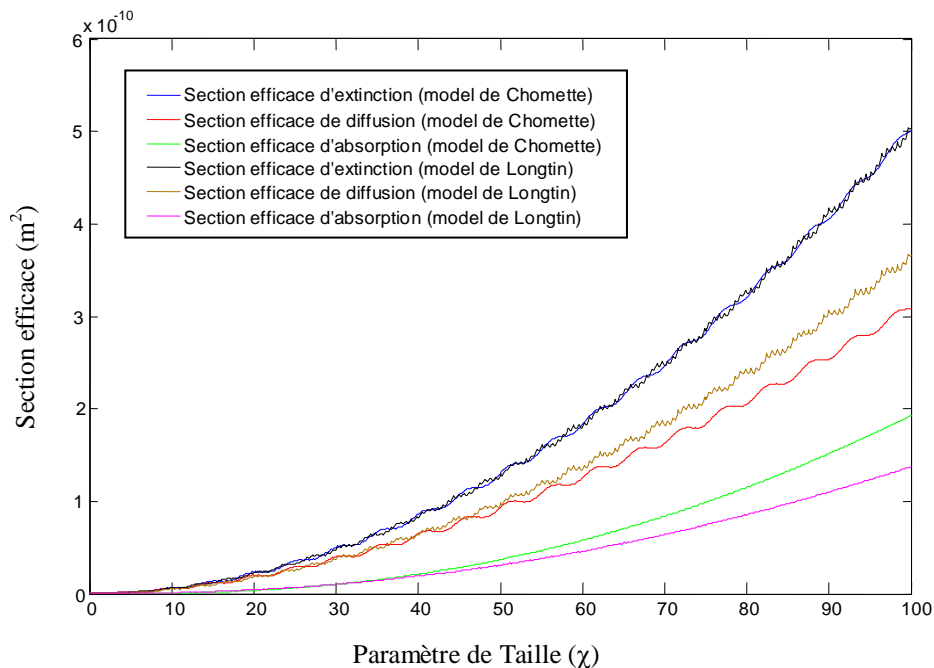


Fig IV.17 – Sections efficaces d'extinction α_{ext} , de diffusion α_s et d'absorption α_{abs} en fonction de paramètre de taille χ , pour les deux modèles Longtin et Chomette à 550nm

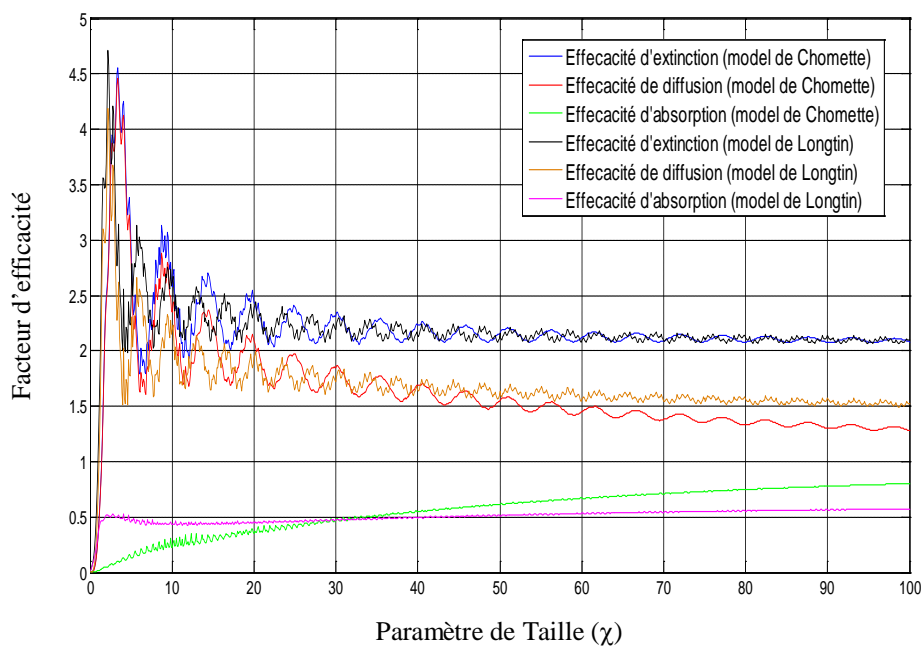


Fig IV.18 – Facteurs d'efficacités d'extinction Q_{ext} , de diffusion Q_s et d'absorption Q_{abs} en fonction de paramètre de taille χ , pour les deux modèles Longtin et Chomette à 550nm

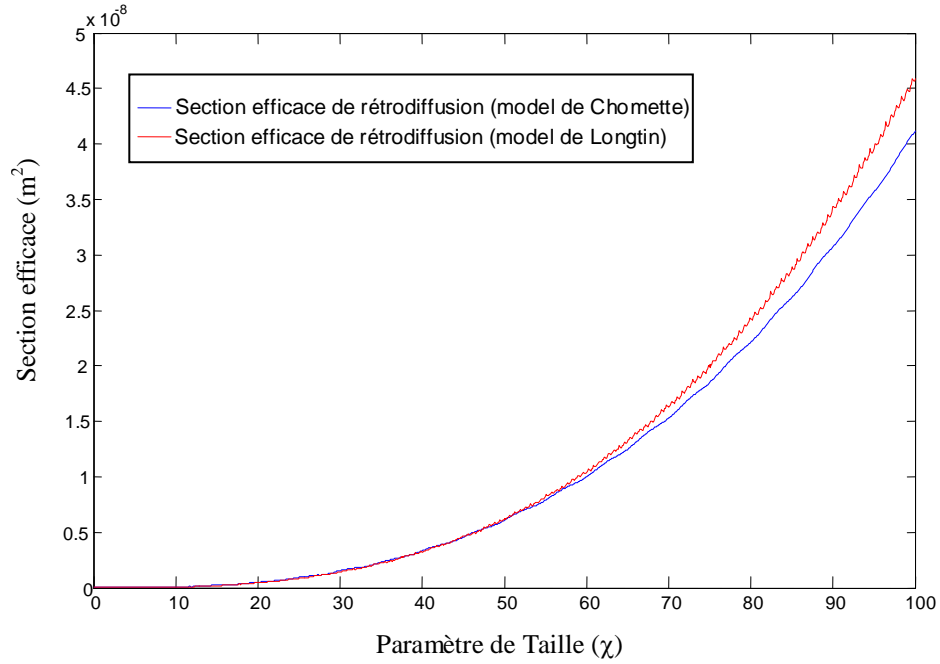


Fig IV.19 – Sections efficaces de rétrodiffusion α_{back} en fonction de paramètre de taille χ , pour les deux modèles Longtin et Chomette à 550nm

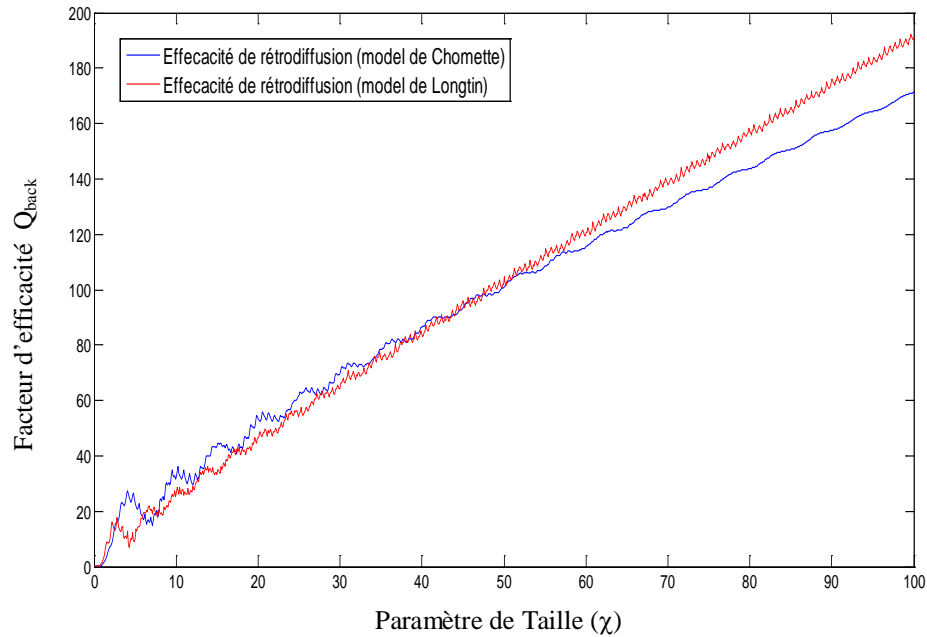


Fig IV.20 – Facteurs d'efficacités de rétrodiffusion Q_{back} en fonction de paramètre de taille χ , pour les deux modèles Longtin et Chomette à 550nm

D'après les figures ci-dessus, on peut remarquer tout d'abord une bonne corrélation entre les courbes correspondant les deux modèles désertiques de Longtin et Chomette, aussi bien en extinction qu'en rétrodiffusion, ce qui confirme la possibilité d'appliquer l'un ou l'autre modèle pour la caractérisation des aérosols.

Deuxièmement, on peut remarquer de part et d'autre des oscillations amorties ainsi que des ondulations s'étendant le long de paramètre de taille. Les maxima et les minima des oscillations sont dus aux interférences des ondes électromagnétiques transmises et diffractées par la particule sphérique, donc il s'agit ici d'une diffraction anormale [Van de Hulst, 1981].

Les ondulations de faibles largeurs résultent des ondes électromagnétiques sphériques évanescentes diffusées de la surface de l'aérosol dans toutes les directions [Kerker, 1969]. Ces petites ondulations sont bien apparais dans les courbes correspondent aux modèles de Longtin et Chomette surtout pour les petits paramètres de taille.

Au-delà de paramètre de taille $\chi=30$ pour lequel l'efficacité d'absorption de Chomette commence à augmenter par rapport à celle de Longtin (qui reste pratiquement constante), les ondulations de Chomette deviennent négligeable voir nulles, ce qui explique que lorsque l'absorption augmente à l'intérieur de la particule, les amplitudes des oscillations et des ondulations diminuent. Si l'absorption atteint l'unité les oscillations et les ondulations vont disparaître.

En ce qui concerne l'absorption (Fig. IV.17), la section efficace d'absorption augmente avec le volume de la particule où pénètre le rayonnement. Aussi le facteur d'efficacité d'absorption (Fig. IV.18) croit avec la taille des particules jusqu'à la valeur asymptotique 1. La variation de l'absorption ne dépend pas seulement de paramètre de taille des particules mais elle est influencée aussi par la partie imaginaire de l'indice de réfraction [Barber et Hill, 1990], ce qui montre le petit écartement entre les efficacités de Longtin et Chomette.

Pour l'extinction (Fig. IV.18), 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 6). 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 du taux d'absorption, Donc on peut dire que l'absorption réduit les oscillations d'interférence.

Le facteur d'efficacité de diffusion dépend fortement du paramètre de taille qui représente un rapport adimensionnel du diamètre l'aérosol par la longueur d'onde du rayonnement incident. Quant le diamètre de l'aérosol et la longueur d'onde sont à peu près du même ordre, dans ce

cas le facteur d'efficacité de diffusion touche son maximum et son comportement peut être considéré comme une sorte de résonance qui apparaît quant le diamètre de l'aérosol et la longueur d'onde du rayonnement incident sont relativement comparables.

3.3.2 Diffusion d'un rayonnement par un aérosol isolé en suspension

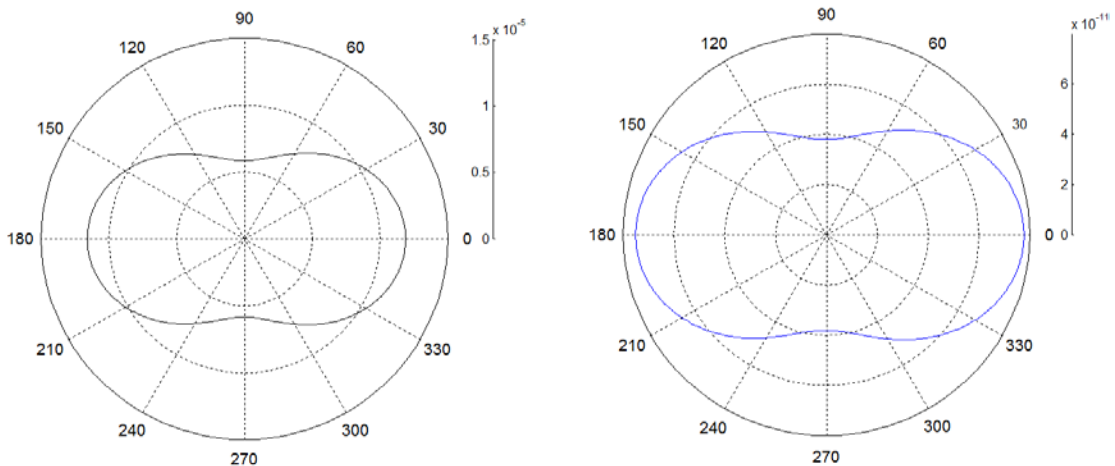
La connaissance de la distribution angulaire de l'intensité diffusée apporte donc des informations cruciales sur la taille des aérosols mais également dans une moindre mesure sur leur indice de réfraction. Le rayonnement entrant en interaction avec la particule sphérique peut être dévié de sa direction originale d'un angle θ .

$$E_{\theta}^s = \frac{i}{kr} e^{-ikr} \cos \phi \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \left[A_n \frac{dP_n^l(\cos \theta)}{d\theta} + B_n \frac{P_n^l(\cos \theta)}{\sin \theta} \right] \quad (IV.24)$$

$$E_{\phi}^s = \frac{i}{kr} e^{-ikr} \sin \phi \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \left[A_n \frac{P_n^l(\cos \theta)}{\sin \theta} + B_n \frac{dP_n^l(\cos \theta)}{d\theta} \right] \quad (IV.25)$$

On préfère donc exprimer l'intensité I_s diffusée dans une direction (θ, ϕ) par une sphère illuminée sous une intensité I_i sous la forme :

$$I_s = \frac{I_i}{k^2 r^2} (|S_1(\theta)|^2 \cdot \sin^2 \phi + |S_2(\theta)|^2 \cdot \cos^2 \phi) \quad (IV.26)$$



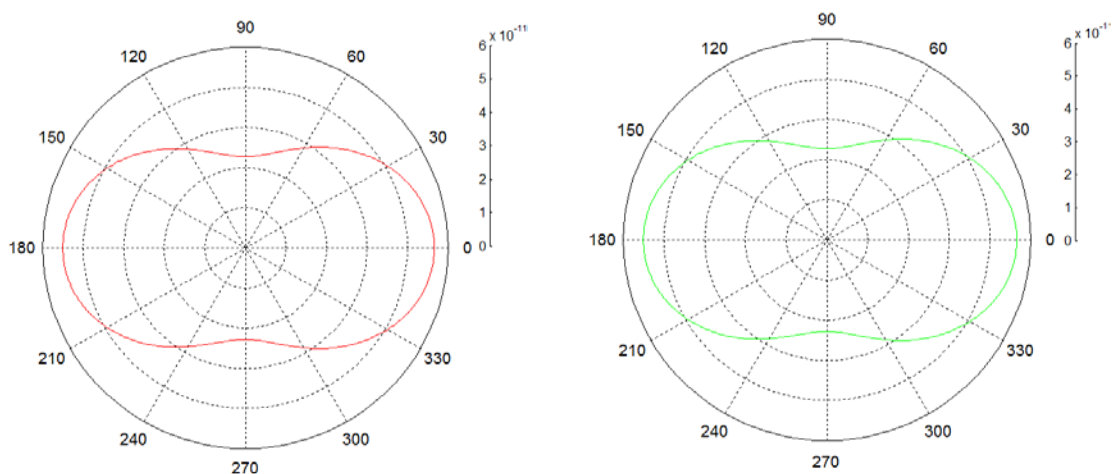


Fig IV.21 Indicatrices de diffusion normalisée simulées par un code de Mie à $\lambda=550$ nm et $\chi=0.1$ pour différents types de particules (a : particule désertique selon le modèle de Chomette, b : composante carbonée, c : composante hydrosoluble, d : quartz + 10% hématite)

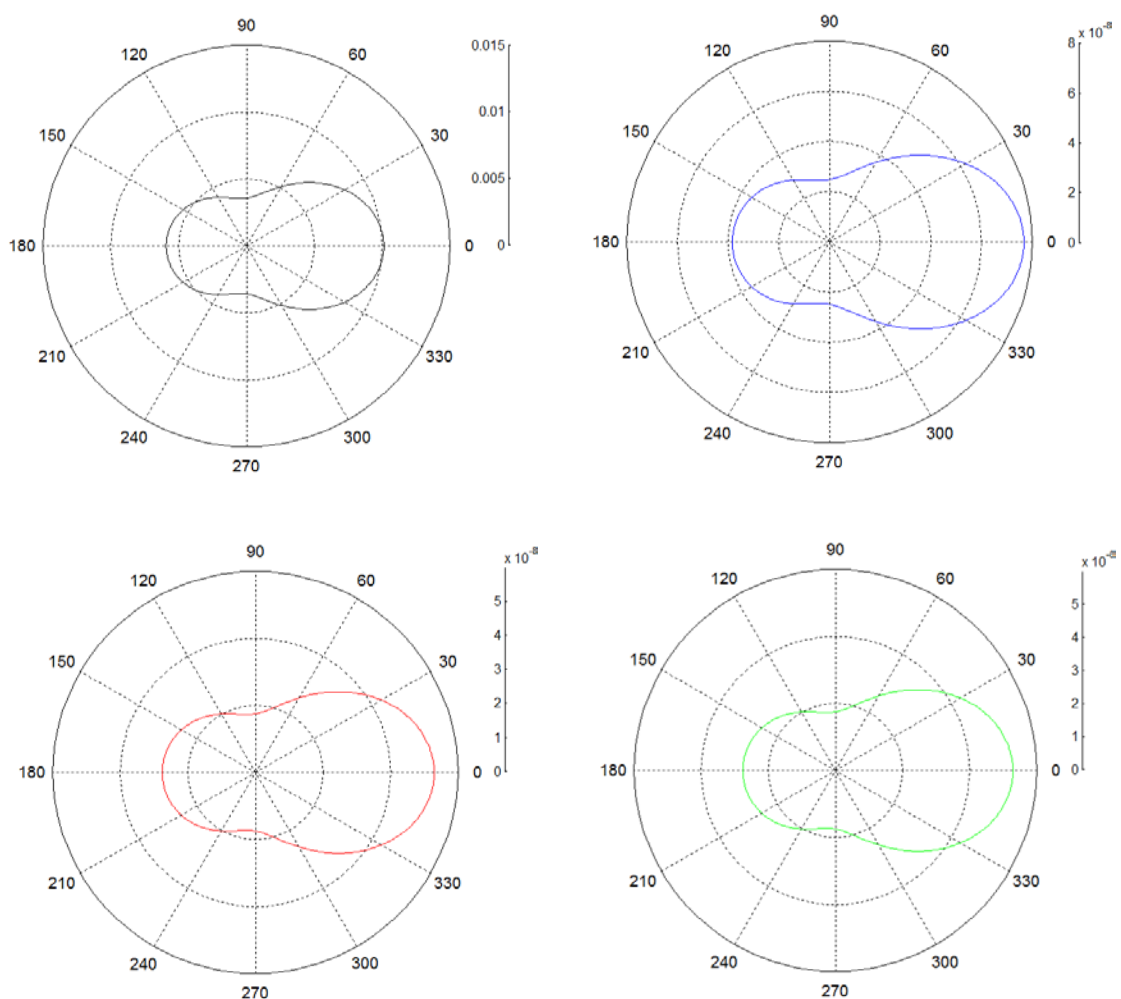


Fig IV.22 Indicatrices de diffusion normalisée simulées par un code de Mie à $\lambda=550$ nm et $\chi=0.5$ pour différents types de particules (a : particule désertique selon le modèle de Chomette, b : composante carbonée, c : composante hydrosoluble, d : quartz + 10% hématite)

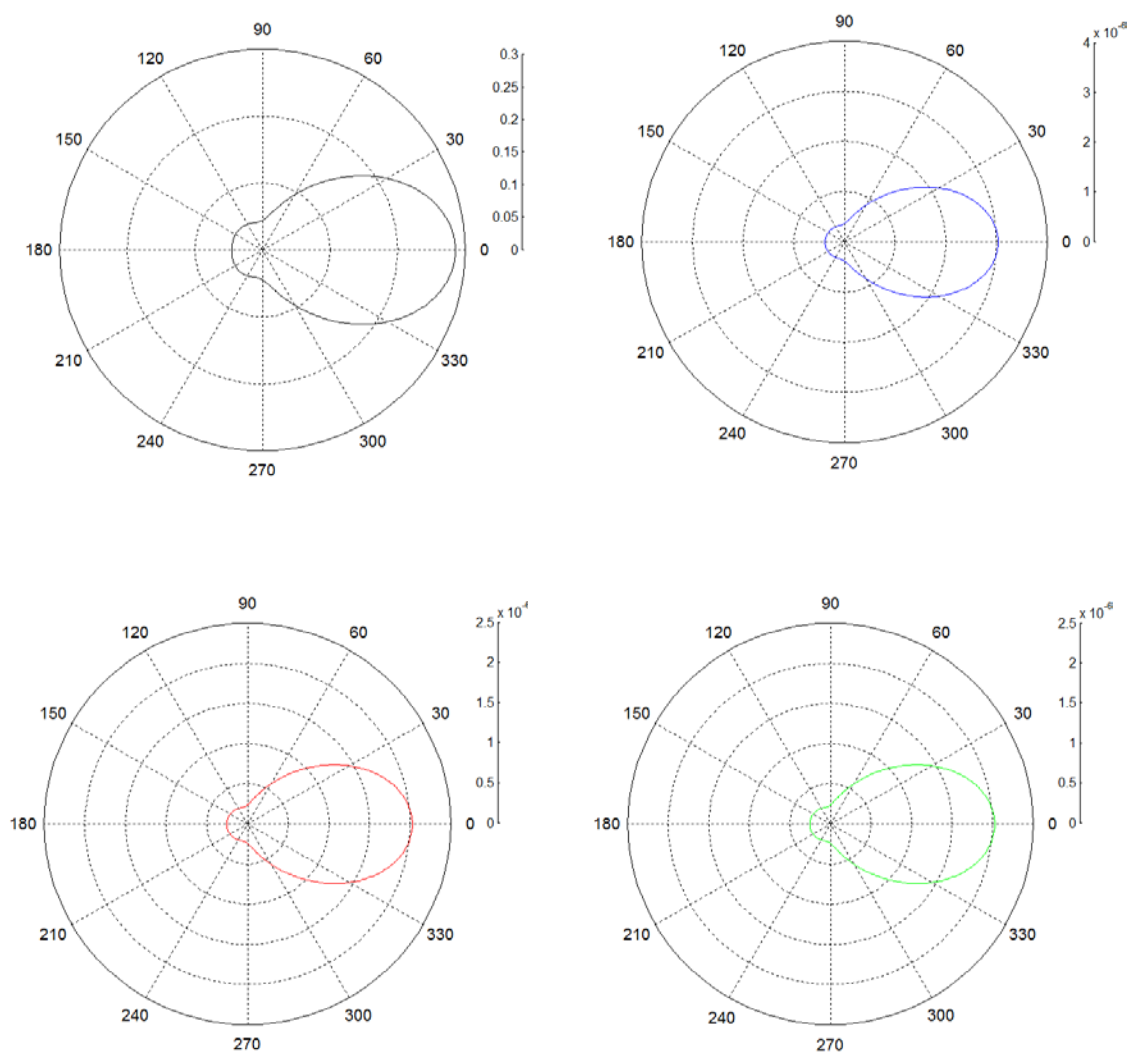
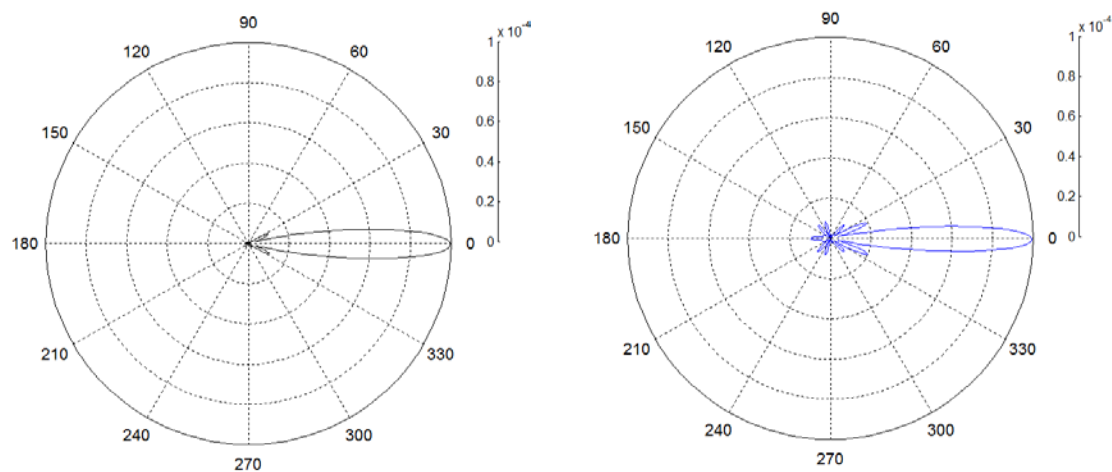


Fig IV.23 Indicatrices de diffusion normalisée simulées par un code de Mie à $\lambda=550$ nm et $\chi=1$ pour différents types de particules (a : particule désertique selon le modèle de Chomette, b : composante carbonée, c : composante hydrosoluble, d : quartz + 10% hématite)



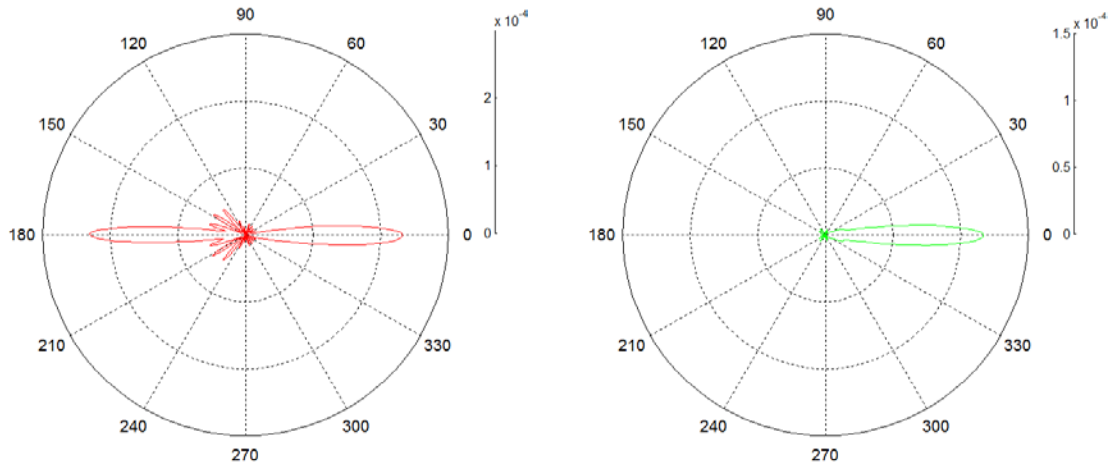


Fig IV.24 Indicatrices de diffusion normalisée simulées par un code de Mie à $\lambda=550 \text{ nm}$ et $\chi=10$ pour différents types de particules (a : particule désertique selon le modèle de Chomette, b : composante carbonée, c : composante hydrosoluble, d : quartz + 10% hématite)

Les Fig. IV.21, IV.22, IV.23 et IV.24 fournissent des résultats importants sur la redistribution angulaire de l'intensité diffusée. Les calculs ont été effectués sur des particules individuelles. 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.

Les amplitudes des pics qui sont affectées de façon importante par l'indice de réfractifs et le paramètre de taille (Fig. IV.24), s'étendent ou s'élargissent ou carrément disparaissent quand le paramètre de taille diminue. En fait pour un paramètre de taille très petit ($r \ll \lambda$) l'intensité diffusée est une simple radiation dipolaire (diffusion de Rayleigh) qui présente une parfaite symétrie de l'intensité entre la diffusion avant et la rétro-diffusion.

Pour des paramètres de taille très grands ($r \gg \lambda$), l'intensité totale diffusée par l'aérosol est une contribution de l'intensité diffusée par diffraction et l'intensité, diffusée par plusieurs réflexions et réfractifs. C'est pour ça, nous constatons des pics résultant principalement des interférences des rayonnements transmis et diffractés par l'aérosol sphérique.

3.4 Distribution de taille des aérosols désertiques

3.4.1 Comparaison avec le modèle Longtin

La détection de la distribution en taille exige la connaissance à priori, d'un part de profile d'extinction issus des mesures Lidar multispectrale et d'autre part de l'indice de réfraction de l'ensemble des composants entrant dans la composition de l'atmosphère désertique. Dans notre première application, on a choisi la modélisation désertique de Longtin, dont les indices complexes des différents composants en fonction de longueurs d'onde sont présentés dans les Fig. IV.10 et IV.11. Ces paramètres vont nous servir à calculer les facteurs d'efficacités d'extinction nécessaires.

Concernant le profile de coefficients d'extinction que nous avons utilisé comme mesure, a été inspiré du modèle de Longtin avec un paramètre éolien $v = 0 \text{ m/s}$ (Fig. V.13). Donc avec ces deux données que nous avons imposées (indices de réfractons et profile d'extinction), une simulation par les algorithmes génétiques permettra de caractériser d'une manière adéquate et dans une durée plus courte par rapport aux autres méthodes.

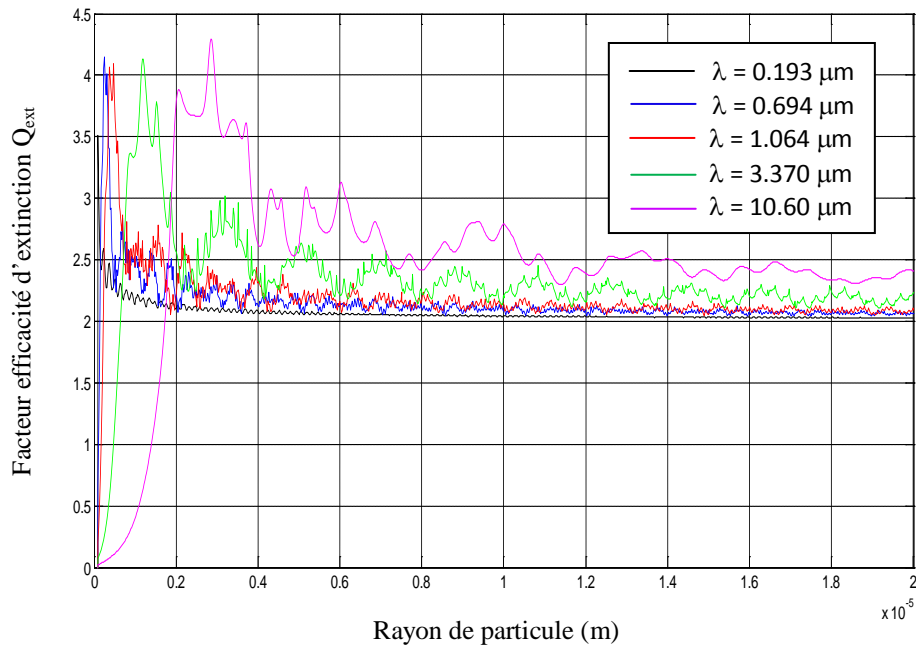


Fig IV.25 – Facteurs d'efficacités d'extinction de Mie, calculés en fonction de rayons de particule et à plusieurs longueurs d'onde en utilisant le modèle de Longtin

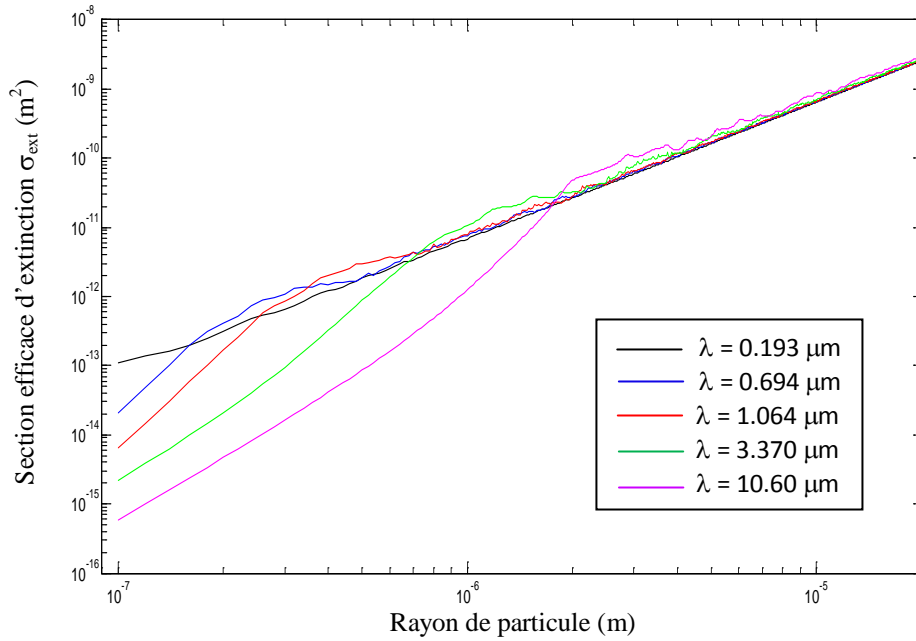


Fig IV.26 – Sections efficaces d'extinction de Mie, calculées en fonction de rayons de particule et à plusieurs longueurs d'onde en utilisant le modèle de Longtin

Les variations des efficacités d'extinction et les sections efficaces correspondantes sont reportées sur les Fig. IV.25 et IV.26, pour différentes valeurs de rayons de particules. Ces calculs sont obtenus par l'application de la théorie de Mie, en supposant que les aérosols sont sphériques.

De la Fig. IV.25, on peut en extraire deux remarques importantes :

Premièrement, elle présente des valeurs presque nulles pour les particules ayant de faibles dimensions quelque soit la longueur d'onde du Laser. Néanmoins, ces paramètres optiques augmentent brutalement lorsque le rayon des particules est similaire à la longueur d'onde.

La deuxième remarque, est la tendance asymptotique de l'efficacité d'extinction vers la valeur 2 pour des particules de grande taille, ce qui implique que 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 der 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 perdu leur passage sans modification. Ces effets de diffraction augmentent avec le rayon de la sphère et sont équivalents à la diffraction par un trou. 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.

La forme de la distribution en taille des aérosols désertiques obtenue, est montrée sur la Fig.IV.27 pour des rayons de particules compris entre 0.1 μm et 20 μm , et ceci en faisant une comparaison avec celle du modèle de Longtin, dont le paramètre éolien est $v = 0 \text{ m/s}$.

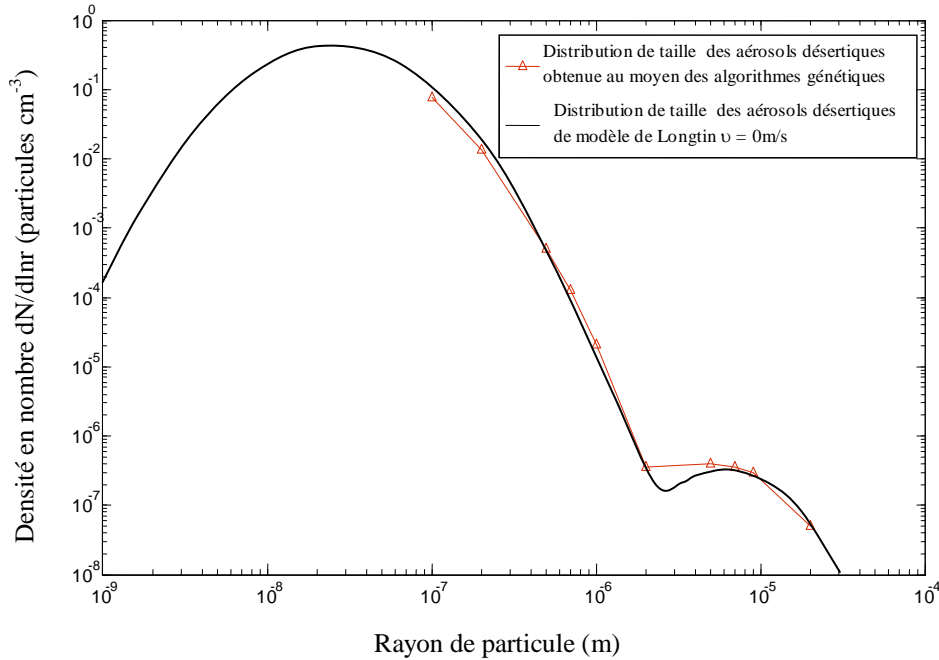


Fig IV.27 – Comparaison entre la distribution de taille des aérosols désertiques obtenue au moyen des algorithmes génétiques et proposée par Longtin

Dans ce modèle, le paramètre éolien modifie aussi la granulométrie des particules minérales, son augmentation provoque un accroissement de la fraction des grosses particules, et donc du rayon médian r_i et de l'écart type σ_i . Longtin utilise dans sa modélisation quatre valeurs du paramètre éolien v , dont la valeur extrême la plus bas que nous avons utilisé correspond à une vitesse de vent $v = 0 \text{ m/s}$ (courbe noire Fig. IV.27). En effet, comme le montre la courbe rouge de la Fig. IV.25, notre résultat permet de couvrir uniquement la gamme de taille entre 0.1 à 20 μm .

La caractéristique de Longtin présente deux seuils correspondant aux petites et grosses particules centrées respectivement sur 0.1 μm et 9 μm . On peut dire que les particules de faible dimension constituent le mode principal. Tandis que la distribution de taille calculé par les algorithmes génétiques possède un seuil extrême correspond aux petites particules de 0.1 μm . Ce dernier est pratiquement très proche et adéquat avec la courbe comparatif de Longtin. Un autre seuil pour les grosses particules centré sur 9 μm est obtenu. Elle présente presque la même forme que la précédente. On peut dire ainsi que les deux courbes sont très proches et démontrent une bonne corrélation.

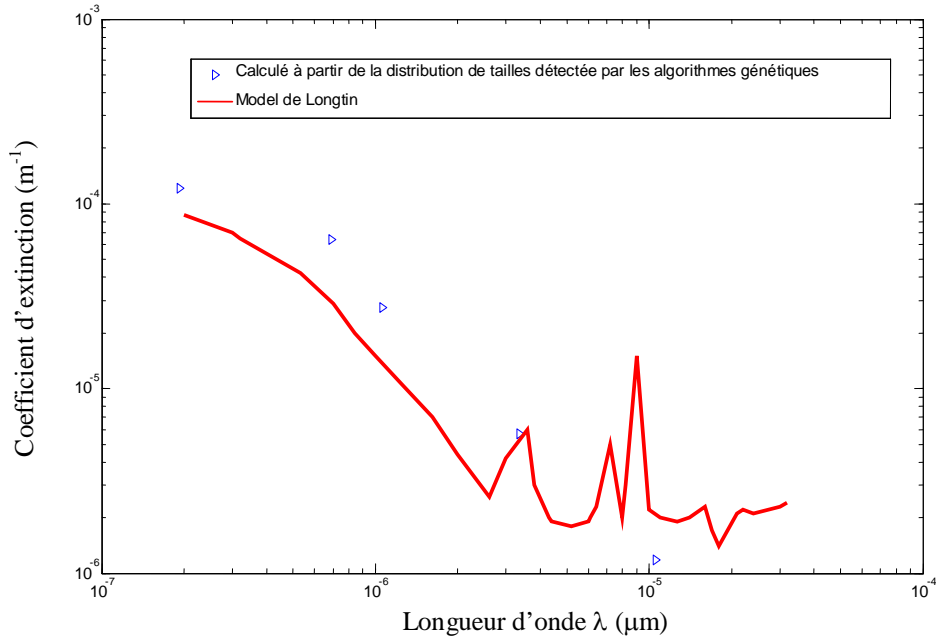


Fig IV.28 – Comparaison entre les coefficients d’extinction ; calculé à partir de la distribution de taille donnés par les algorithmes génétiques (triangle bleu) et calculé par le model de Longtin (trait rouge)

Ce résultat est bien confirmé par la Fig. IV.28, de telle manière on reproduit les coefficients d’extinctions à partir de la distribution de taille trouvée, puis, on les compare avec la distribution modélisée par Longtin avec $v = 0 \text{ m/s}$.

On remarque une petite divergence entre les deux profiles d’extinction de l’ordre de quelque (m^{-1}). Cette divergence est due à l’erreur de discrétisation de l’équation de coefficient d’extinction (Equ.IV.20), qui fait approximer l’intégrale à des intervalles de rayons des particules.

Pour que l’erreur soit le plus faible possible, le nombre d’intervalles utilisé pour l’approximation doit être important. Mais, cette condition n’est pas toujours optimale, parce qu’elle engendre à son tour d’autres effets négatifs, ce qui nous emmène cependant à un autre compromis. Plus le nombre d’inconnus (individus dans les algorithmes génétiques) augmente, ceci implique la complication l’optimisation et le prolongement du temps de calcul.

3.4.2 Comparaison avec le modèle de Chomette

Étant considéré maintenant le modèle de Chomette caractérisant les propriétés microphysiques des particules désertiques. Pour rappelle, ce modèle utilise un seul jeu d’indice de réfraction comme a été présenté dans la Fig. IV.14. Ceci nous permet de calculer ainsi les sections efficaces et les facteurs d’efficacité d’extinction en utilisant la théorie de

Mie pour les particules sphériques ou similaires à une sphère, comme l'indique les Fig. IV.24 et IV.25. Le profil de mesure expérimental utilisé dans ce cas, est extrait du model granulométrique proposé par Chomette et plus précisément le mode BG (background caractérisation loin de source) (Fig. IV.16).

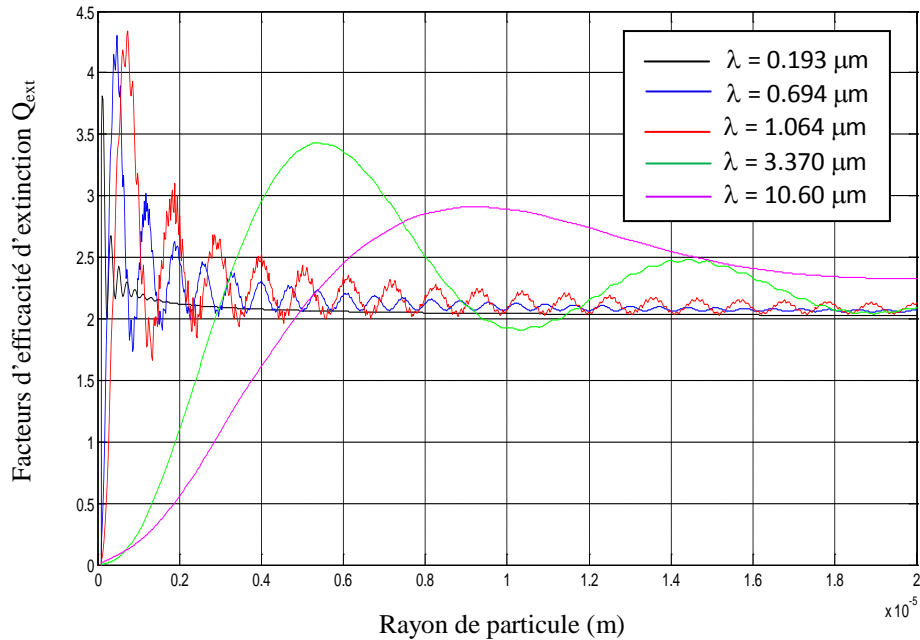


Fig IV.29 – Facteurs d'efficacité d'extinction de Mie, calculés en fonction de rayons de particule et à plusieurs longueurs d'onde en utilisant le modèle de Chomette

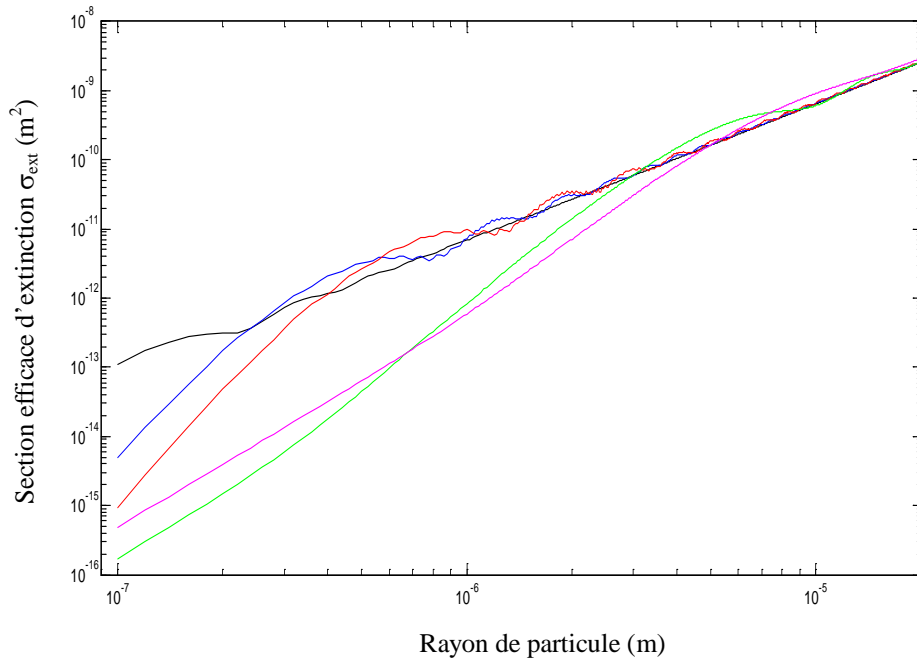


Fig IV.30 – Sections efficaces d'extinction de Mie, calculées en fonction de rayons de particule et à plusieurs longueurs d'onde en utilisant le modèle de Chomette

On peut tirer les mêmes remarques que le modèle précédent :

- Facteurs d'efficacité nuls pour les particules de dimensions négligeables.
- Facteurs d'efficacité tendent vers 2 pour les très grosses particules.
- Un pic correspond à la valeur maximale pour les particules dont le rayon est du même ordre de grandeur que la longueur d'onde.

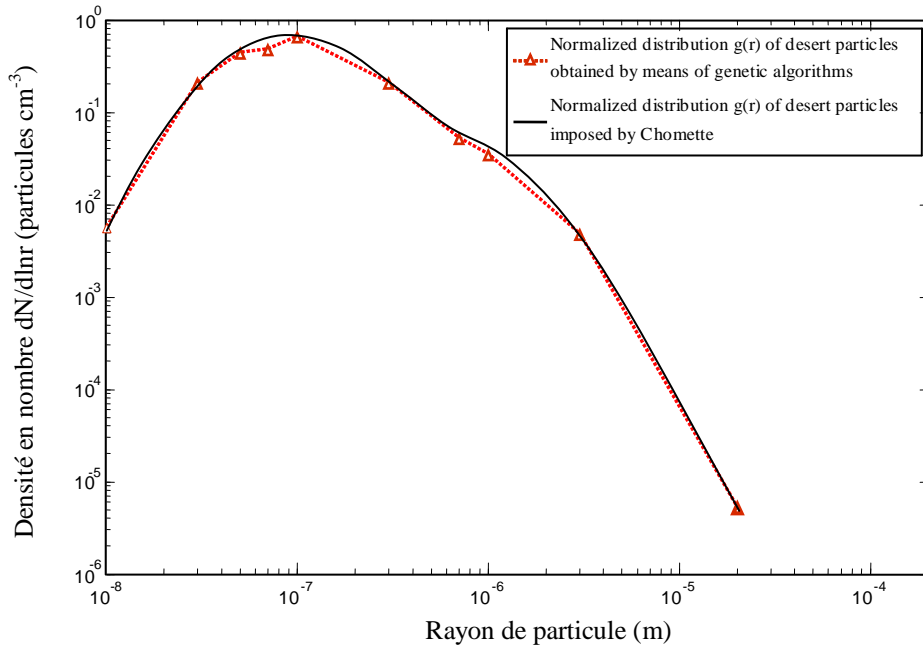


Fig IV.31 – Comparaison entre la distribution de taille des aérosols désertiques obtenue au moyen des algorithmes génétiques et calculée par Chomette

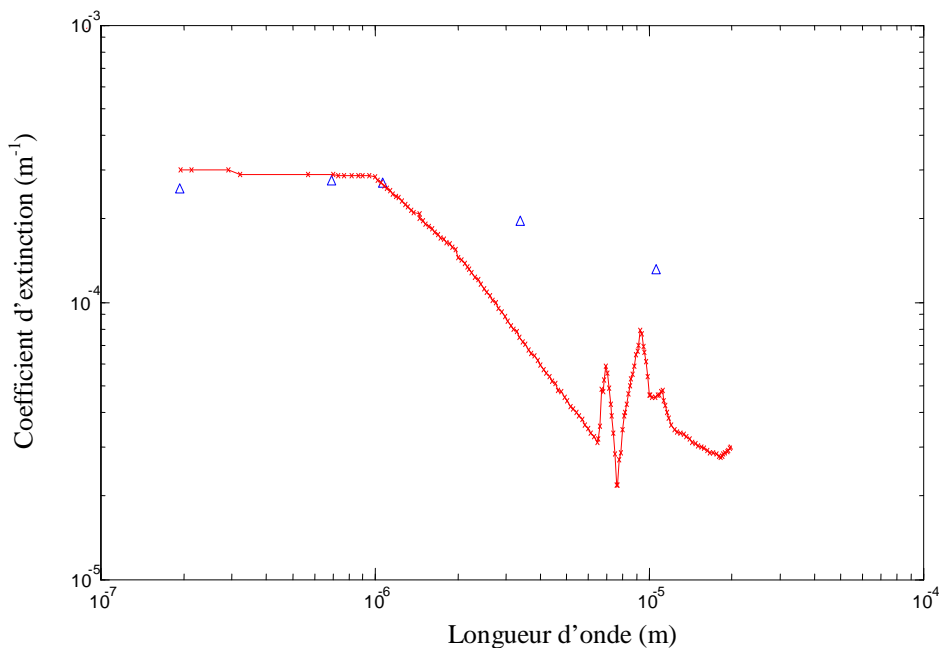


Fig IV.32 – Comparaison entre les coefficients d'extinction ; calculé à partir de la distribution de taille donnée par les algorithmes génétiques (triangle bleu) et calculé par le model de Chomette (trait rouge)

La comparaison entre la distribution en taille que nous avons optimisée et celle proposée par Chomette en mode background (BG), est montrée par la Fig. IV.31.

Il semble que les deux courbes sont proches et présentent une meilleure conformité. La forme de chacune de deux variations est assimilée à deux courbes gaussiennes dont la première caractérisant la fine granulométrie est centrée sur un rayon égale à $0.1 \mu\text{m}$. Tandis que les particules un peu grosses (ayant une faible densité), ont un seuil granulométrique à environ $0,8 \mu\text{m}$ comme le montre la Fig. IV.31.

La Fig. IV.32 traduit l'erreur de calcul issue de discrétisation numérique de coefficients d'extinction, en fonction de rayons des particules et les longueurs d'ondes de Lidar. Bien qu'il existe un écart visuel entre les deux variations correspond aux coefficients d'extinction, néanmoins, il reste acceptable ce qui confirme encore la validité de notre résultats.

4. Conclusion

Nous avons réalisé dans ce chapitre une présentation de l'aérosol désertique dans un contexte théorique, combinant deux principaux paramètres, la composition minéralogique et la distribution en taille avec l'utilisation de deux modélisations différentes Longtin et Chomette.

Les méthodologies de mesure présentées permettent de caractériser d'une part la charge en aérosols désertique de l'atmosphère, de leur impact local et d'autre part de caractériser les propriétés micro-physiques (taille, concentration, distribution,..) de ces particules.

Pour la caractérisation de la distribution de taille des aérosols désertiques, qui est un paramètre physique très important en termes de santé et environnement, plusieurs méthodes Lidar ont été appliquées dans ce sens. Parmi ces méthodes, il ya une méthode originale à une seule longueur d'onde dans l'UV permettant d'accéder à l'évolution de concentrations des aérosols spatialement et temporellement. Elle s'appuie sur le couplage de plusieurs instrumentations comme l'équipement Lidar, l'analyseur par rayon X, le microscope électronique à balayage (MEB) et l'équipement d'analyse numérique. Cependant cette méthode présente deux inconvénients.

Bien qu'elle donne une bonne caractérisation physico-chémique de l'air, elle ne représente en contrepartie que son lieu de prélèvement au niveau du sol. Ainsi, elle ne permet pas de remonter à la concentration en aérosols avec exactitude ; elle exige en effet, une source Laser multi-spectrale afin de balayer les différentes tailles des particules.

Pour distinguer entre les petites et les grosses particules, nous avons étendu le système Lidar ultraviolet (UV) déjà existant dans l'infrarouge (IR).

Cette méthode qui est appelée méthode des distributions prédéfinies, réalise un ajustement non-linéaire des paramètres de la distribution de taille, dont la forme est choisie a priori, de manière à reproduire les coefficients d'extinction et de rétrodiffusion mesurés aux différentes longueurs d'onde.

Mais elle reste néanmoins moins efficace parce que tous les types de particules qui existent dans l'atmosphère ne peuvent être décrits par une seule fonction de distribution. Elle est utilisée dans le cas où l'atmosphère est peu complexe et ne contient pas un éventail trop large de types de particules (par exemple du brouillard, des aérosols stratosphériques...).

Enfin, pour surmonter les insuffisances précédentes, une autre technique toute optique encore plus pertinente utilisée également dans cette contribution pour déterminer la distribution de taille des particules sans faire d'hypothèses à priori ce qui était le cas de la méthode précédente. On parle de la méthode Lidar multi-spectrales UV-Vis-IR qui est basée sur la théorie statistique. Le choix des longueurs d'onde utilisé ici est très important car l'algorithme de simulation n'est sensible que lorsque la dimension des particules est proche de la longueur d'onde. Les distributions de taille qu'on a obtenues par cette méthode sont comparées avec les deux modèles théoriques imposés par Longtin et Chomette. Leur estimation est très satisfaisante, parce qu'ils représentent une bonne corrélation.

CONCLUSION GENERALE

Plusieurs méthodes de mesure Lidar ont été adoptées pour caractériser les aérosols atmosphériques qui jouent un rôle très important dans le bilan radiative terrestre. Même si leurs concentrations et propriétés optiques et physico-chimiques sont maintenant bien mesurées à l'aide de capteurs ponctuels ou des instruments passifs, le Lidar est l'unique technique permettant l'obtention de la distribution verticale des particules et cartographier en trois dimensions la concentration de ces polluants. Tout d'abord une méthode originale, utilisant une seule longueur d'onde dans l'UV, a été développée au laboratoire. Elle est basée sur l'impaction et l'étude de filtres au niveau du sol qui permettent d'obtenir des informations complémentaires sur la distribution de taille des aérosols et sur leur composition. Cependant la méthode utilisée nécessite l'impaction de filtres puis l'étude de ceux-ci par microscopie électronique à balayage et enfin le comptage des particules pour accéder à la distribution de taille des aérosols. Il faut ensuite utiliser des algorithmes adaptés pour évaluer les sections efficaces de diffusion de cet ensemble. Enfin, une hypothèse forte est faite en prenant le rapport des coefficients d'extinction et de rétrodiffusion constant en fonction de l'altitudes seul le nombre total $N_0(z)$ de particules par unité de volume varie.

Pour éliminer ces contraintes, il serait intéressant de réaliser une diagnostique tout optique de la distribution de taille et de la concentration des aérosols. Or, des mesures des coefficients d'extinction et de rétrodiffusion à plusieurs longueurs d'onde le permettent. De plus, plus la plage des longueurs d'onde utilisée étendue et plus l'intervalle des rayons des particules sur lequel l'inversion peut être faite avec précision est large. Il est donc intéressant d'avoir une source laser accordable sur une grande plage de longueur d'onde.

En effet, en utilisant un Lidar UV-IR, la dynamique des différentes classes de particules est accessible. L'infrarouge, bien moins diffusé par les particules de petite taille, il est sensible principalement aux particules de taille micrométrique. De même, l'ultraviolet proche est efficacement diffusé par les petites particules, d'où une sensibilité accrue pour cette classe de particules.

Dans ce sens, notre travail c'était appuyé sur la détection d'une propriété physique très importante qui est la distribution de taille des aérosols désertiques par la méthode LIDAR multi-spectrale en utilisant un spectre de lumière Laser allant de l'UV à l'IR moyen, dont les

CONCLUSION GENERALE

longueurs d'ondes ont été fixés dans les valeurs suivantes : ($\lambda = 0.193, 0.694, 1.064, 3.37$ et $10.60 \mu\text{m}$). Et ceci en appliquant la théorie statistique des chaînes de Markov et en particulier les algorithmes génétiques. Nos résultats obtenus sont comparés par la suite avec des modèles de distribution désertique très connus : le modèle de Longtin et le modèle de Chomette. Leur estimation est très satisfaisante, parce qu'ils représentent une bonne corrélation avec les deux modèles cité dessus.

BIBLIOGRAPHIE

BIBLIOGRAPHIE

- Abramowitz, M., and Stegun, I., *Handbook of Mathematical functions with formulas, graphs and mathematical tables*, Dover publications inc., New-York (1964).
- Alfaro, S.C., Gaudichet, A., Gomes, L. et Maillé, M., *Mineral aerosol production by wind erosion: aerosol particle sizes and binding energies*, *Geophys. Res. Lett.*, 25, No 7, p 991, (1998).
- Angström, A., *The parameters of atmospheric turbidity*, *Tellus*, 16, p 6, (1964).
- Ashkin, A., *Acceleration and Trapping of Particles by Radiation Pressure*, *Phys. Rev. Lett.* 24(4), p 156, (1970).
- Barber, P. W. and S. C. Hill, *Light scattering by particles: Computational methods*, *World scientific*, Singapour (1990).
- Bohren, C. F., and Huffman, D. R., *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*, John Wiley & Sons, New-York (1998).
- Born, M., et Wolf, E., *Principles of optics*, Pergamon Press, Oxford, 6, (1985).
- Brasseur, G.P., Orlando, J.J., Tyndall, G.S., *Atmospheric Chemistry and Global Change*. Oxford University Press ed., (1999).
- Brunauer, S., Emmett, P.H and Teller, E, J., *Am. Soc.*, 60, p 309, (1938).
- Chazette, P., *Aérosol anthropique : impact climatique et environnemental*, *Techniques de l'ingénieur*, article R21, (2004).
- Chazette, P., Randriamiarisoa, H., Sanak, J., Couvert, P., and Flamant, C., *Optical properties of urban aerosol from airborne and ground based in situ measurements performed during the ESQUIF program*, *J. Geophys. Res.*, 110, (2005b).
- Cheng, Y.S., *Condensation Detection and Diffusion Size Separation Techniques*. Dans Baron, P.A., et Willeke, K. (editors), *Aerosol Measurement. Principles, Techniques, and Applications* (2nd Ed.) John-Wiley & Sons (2001).
- Chomette, O., Legrand, M., and Marticorena, B., *Determination of the wind speed threshold for the emission of desert dust using satellite remote sensing in the thermal infrared*, *J. Geophys. Res.*, 104, p 31207, (1999).
- Chylek, P., Kiehl, J.T., Ko, M.K.W., and Ashkin, A., *Surface waves in light scattering by spherical and nonspherical particles*, in *Lights scattering by irregularly shaped particles*, D.W. Schuerman, Editor, p 153, Plenum Press: New-York, (1980).
- CITEPA - Décembre 2001, Sambat, S., Oudart, B., Fontelle, J.P., Beguier, S., Chang, J.P., Duval, L., *Inventaire des émissions de particules primaires, 2^{em} étape – Rapport final*".
- D'Almeida, G. A., Koepke, P. et Shettle, E. P., *Atmospheric aerosols - global climatology and radiative characteristics*. A. Deepak Publishing, Hampton, Virginia, p 561, (1991).
- Deirmendjian D., *Scattering and polarization properties of water clouds and hazes in the visible and infrared*, *Appl. Optics* 2, p 187, (1964).

BIBLIOGRAPHIE

- Del Guasta M., Morandi M., et al., *Multiwavelength lidar observation of thin cirrus at the base of the Pinatubo stratospheric layer during the EASOE campaign*, Geophysical Research Letters 21, p 1339, (1994).
- Fierz, M., Scherrer, L., Burtscher, H., *Real-time measurement of aerosol size distributions with an electrical diffusion battery*. Journal of Aerosol Science 33, p 1049, (2002).
- Fiocco, G. and Smullin, L.D., *Detection of scattering layers in the upper atmosphere (60-140 km) by optical radar*, Nature, 199, p 1275, (1963).
- Frejafon, E., Kasparian, J., Wolf, J.P. et al, *Laser applications for atmospheric pollution monitoring*, Eur. phys. J. D 4, p 231, (1998).
- Ghio, A. J. et Samet, J. M., *Metals and air pollution particles*, Air pollution and health, eds. Academic Press, p 635, (1999).
- Goldsmith, J.E.M., Blair, F., Bisson, E., and Turner, D.D., *Turn-key Raman lidar for profiling atmospheric water vapor, clouds, and aerosols*, in Appl. Opt., 37, p 4979 (1998).
- Grams, G. W., Blifford Jr, I. H., Gillette, D. A. et Russell, P. B., *Complex index of refraction of airborne soil particles*, J. Appl. Meteorol., 13, p 459, (1974).
- Haeffelin, M., Boitel, C., Goukenleuque, G., Grall, M., Lapouge, F., Morille, Y., Pietras, C., Romand, B., *Observatoire SIRUS pour l'étude des nuages et de leur impact radiatif*, AEI2004, Paris, p 23, (2004).
- Haywood, J.M., and Boucher, O., *Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols*, A review, Reviews of Geophysics, 38, 4, p 513, (2000).
- Hinds, W.C., *Aerosol technology : properties, behavior, and measurement of airborne particles*. John Wiley & Sons (1999).
- Hovenac, E.A. and Lock, J.A., *Assessing the contribution of surface waves and complex rays to far-field scattering by use of the Debye series*, J. Opt. Soc. Am. A 9(5), p 781, (1992).
- Inaba, H., *Detection of atoms and molecules by Raman scattering and resonance fluorescence in Laser monitoring of the atmosphere*, chap. 5, E.D. Hinkley (ed), Springer, Berlin-Heidelberg-New York, (1976).
- IPCC, 2007, *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, Solomon.
- Junge, C.E., *Atmospheric chemistry*, Advances in Geophysics, 4, (1958).
- Junge C. E., *Air chemistry and radioactivity*, (Academic Press, New York, 1963).
- Jaenicke, R., *Aerosol physics and chemistry, meteorology volume*, Landolt – Boernstein numerical data and functional relationships in science and technology, vol. 4b, Springer – Verlag, Berlin, 1988.
- Kerker, M., *The Scattering of Light, and other Electromagnetic radiations*, Academic press, New-York (1969).
- Kasparian, J., Rambaldi, P., Frejafon, E., Yu, J., Vezin, B., Wolf, J. P., Ritter, P., et Viscardi, P., *Characterization of urban aerosols using SEM-microscopy, X-Ray analysis and lidar measurements*, Atmospheric environment Soumis (1997d).

BIBLIOGRAPHIE

- Keskinen, J., Pietarinen, K., Lehtimäki, M., *Electrical Low Pressure Impactor*. Journal of Aerosol Science 23, p 353, (1992).
- Klett, J.D., *Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratio*, App. Opt. 24, p 1638, (1985).
- Kölsch, H. J., Rairoux, P., et al., *Simultaneous NO and NO₂ DIAL measurement using BBO crystals*, Appl. Optics 28, p 2052, (1989).
- Léon, J.F., Chazette, P., Pelon, J., Dulac, F., and Randriamarisoa, H., *Aerosol direct radiative impact over the INDOEX area based on active and passive remote sensing*, J. Geophys. Res., 107, (2002).
- Ligon D. A., Chen T. W., and Gillespie J. B., *Determination of aerosol parameters from light-scattering data using an inverse Monte Carlo technique*, App. Opt. 35, p 4297, (1996).
- Lock James A., *Theory of the observations made of high-order rainbows from a single water droplet* Applied optics, 26(24), p 5291, (1997).
- Longtin, D. R., Shettle, E. P., Hummel, J. R., et Pryce, J. D. *A wind dependent desert aerosol model: radiative properties*. Scientific report No 6, Hanscom Air Force Base, Massachusetts, 01731 - 5000, USA, (1988).
- Marjamäki, M., Keskinen, J., Chen, D.R., Pui, D.Y.H., *Performance Evaluation of the Electrical Low Pressure Impactor (ELPI)*. Journal of Aerosol Science 31, p 249, (2000).
- Mathieu, A., Piriou, JM., Haeffelin, M., Vinit, F., Drobinksi, P., *Identification of error sources in planetary boundary layer cloud forecast using SARTA observations*. Soumis à Geophysical Research Letters mars 2004.
- Mie G., *Beiträge zur optik trüber medien speziell kolloidaler metallösungen*, Ann. Phys. 25, p 337, (1908).
- Measures, R. M., *Laser Remote Sensing, Wiley-Interscience, New York*, pp 217, 1984.
- MIRA (2007), Achtergrond document Verspreiding van zwevendstof, 8 december 2007.
- Mishchenko, M.I., Travis, L.D., and Mackowski, D. W., *T-matrix computations of light scattering by nonspherical particles: A review*, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, 55, p 535, (1996).
- Mishchenko, M.I., Travis L.D., Lacis, A.A., *Scattering, absorption, and emission of light by small particles*. New York, Cambridge: University Press; 2002
- Mueller, H, *The foundations of Optics*, J. Opt. Soc. Am., 38, p 661, (1948).
- Naqwi, A.A and Dusrt, *Light scattering Applied to LDA and PDA measurements part1 : Theory and numerical treatments*. Part. Part. Syst. Charact., Vol. 8, p 245,(1991).
- Neuber, A R., Rairoux, P., and Wandinger U., eds. Springer-Verlag, Heidelberg, (1996).
- Patasnick, H., Rupprecht, E.G., *Continuous PM-10 measurement using the tapered element oscillating microbalance*. Journal of the Air and Waste Management Association 41, p 1079, (1991).
- Patterson, E. M., Gillette, D. A., et Stockton, B. H., *Complex index of refraction between 300 and 700 nm for Saharan aerosols*, J. Geophys. Res., 82, p 3153, (1977).
- Paul, S., Ducher, G., Jobard, I., Latache, C.H., et Lenco, M. *Terminologie en télédétection et photogrammétrie (Français-Anglais)*. CIFL, PUF, Paris, p 455, (1997).

BIBLIOGRAPHIE

- Putaud, J.P., Raes, F., Dingenen, R. V., *A European aerosol phenomenology - 2: chemical characteristics of particulate matter at kerbside, urban, rural and background sites in Europe*, Atmospheric Environment 38, p 2579, (2004).
- Rader, D.J., O'Hern, T.J., *Optical Direct-Reading Techniques : In Situ Sensing*. Dans Baron, P.A., et Willeke, K. (editors), *Aerosol Measurement. Principles, Techniques, and Applications* (2nd Ed.) John-Wiley & Sons (2001).
- Rahn, K. A., Shutz, L., et Jaenicke, R., *Elemental composition of Sahara aerosol and Sahara soil*, Bull. Amer. Meteor. Soc., 57, p 146, (1976).
- Rairoux P., *Mesures par lidar de la pollution atmosphérique et des paramètres météorologiques*, thèse de l'école polytechnique fédérale de Lausanne, n° 955, (1991).
- Raut, J.C., and Chazette, P., *Retrieval of aerosol complex refractive index from a synergy between lidar, sunphotometer and in situ measurements during LISAIR experiment*, Atmos. Chem. Phys., 7, p 2797, (2007).
- Rayleigh, L., *On the light from the sky, its polarization and color*, Philos. Mag. 41, p 107 et 274, (1871).
- Renaut, D and Capitini. R., *Boundary-layer water vapor probing with a solar-blind Raman lidar: validations, meteorological observations and prospects*, in J. Atmos. Ocean Tech., Vol. 5, p 585, (1988).
- Seinfeld J. H., *Atmospheric chemistry and physics of air pollution*, (John Wiley, New-York, 1985).
- Seinfeld, J.H., Pandis, S.N., *Atmospheric chemistry and physics. From air pollution to climate change*, Wiley Interscience, (1998).
- Sherlock, V., Hauchecorne, A and Lenoble, J., *Methodology for the independant calibration of Raman backscatter water-vapor lidar system*, in Appl. Opt., Vol. 38, N°27, (1999).
- Shettle, E.P. et R.W. Fenn, *Models for the aerosols for the lower atmosphere and the effects of humidity variations on their optical properties*, Environmental Research Papers, No. 676, p 94, (1979).
- Silvester, P.P. et Ferrari, R.L., *Finite Element for Electrical Engineers*, Cambridge University Press, 1996.
- Sokolik, I.N., et Toon, O.B., *Incorporation of mineralogical composition into models of the radiative properties of mineral aerosol from UV to IR wavelengths*, J. Geophys. Res., 104, p 9423, (1999).
- Sorensen C., Cai J., and Lu N., *Light-scattering measurements of monomer size, monomers per aggregate, and fractal dimension for soot aggregate in flames*, Appl. Opt. 31, p 6547, (1992).
- Stratton, J. A., *Electromagnetic theory*, McGraw-Hill, New-York (1941).
- Stokes, G. G., *On the composition and resolution of streams of polarized light from different sources*, Trans. Camb. Philos. Soc., 9, p 399, (1852).
- Stull R. B., *An introduction to Boundary Layer Meteorology*. Kluwer Academic Publishers. Dordrecht, 666p. 1988
- Tegen, I. et Fung, I., *Contribution to the atmospheric mineral aerosol load from land surface*

BIBLIOGRAPHIE

- modification, J. Geophys. Res.*, 100, p 18707, (1995).
- Tarniewicz, J., *Amélioration de la précision de la composante altimétrique du GPS par une correction du délai troposphérique utilisant une mesure externe du contenu en vapeur d'eau*, in Bulletin d'Information de l'IGN, Activité recherche 2000 , n°72, p 59, (2000).
- Toon, O. B., Pollock, J. B., et Khare, B. N., *The optical constants of several atmospheric aerosols species: ammonium sulfate, aluminum oxide and sodium chloride*, J. Geophys. Res., 81, p 5733, (1976).
- Van der Hulst H. C., *Light scattering by small particles*, New York : Dover, (1981).
- Volz, F. E., *Infrared Optical Constants of Ammonium Sulfate, Sahara Dust, Volcanic Pumice, and Flyash*, Appl. Opt., 12, p 564, (1973).
- Weidauer, D., Rairoux, P., Ulbricht, M., Wolf, J.P., Wöste, L., *Advances in atmospheric remote sensing with Lidar*, (Springer Verlag), p.423, (1996).
- Whitby, K., *Physical characterization of aerosol, in methods and standards for Environmental measurement*, National Bureau of Standards, Special publication No 464, Proceedings of 8th IMR Symposium, p 165, (1976).
- Whiteman, D.N., Melfi, S.H and Ferrare, R.A., *Raman Lidar System for the Measurement of Water Vapor and Aerosols in the Earth's Atmosphere*, in Applied Optics, vol. 31, n° 16, (1992).
- Willeke, K., and Baron, P.A., *Aerosol measurements: Principles, techniques and applications*, Van Nostrand Reinhold, New York, NY, USA. (1993).
- Wiscombe, W. J., *Improved mie scattering algorithms*. Applied Optics, 19(9), p 1505, (1980).
- Witz, S., Eden, R.W., Wadley, M.W., Dundwoody, C., Papa, R.P., Torre, K.J., *Rapid loss of particulate nitrate, chloride and ammonium on quartz fiber filters during storage* . J. Air. Waste Manage. Assoc 40 (1), p 53, (1990).
- Wolf, J.P., Kölsch, H.J. et al., *Remote Detection of Atmospheric Pollutants Using Differential Absorption Lidar Techniques.*, Demtröder, W and Inguscio, M., Ed., Plenum Publish., New-York (1990).
- Yang, P., Liou, K.N., Mishchenko, M.I., Gao, B.C., *Efficient finite-difference time-domain scheme for light scattering by dielectric particles: application to aerosols*. App. Opt. 39, p 3727, (2000).