

**Caractérisation des performances du nouveau mini  
compteur de particules LOAC embarqué sous ballon  
météorologique : application à l'étude de la variabilité  
spatiale et temporelle des aérosols de la haute  
troposphère et de la stratosphère**

Damien Vignelles

► **To cite this version:**

Damien Vignelles. Caractérisation des performances du nouveau mini compteur de particules LOAC embarqué sous ballon météorologique : application à l'étude de la variabilité spatiale et temporelle des aérosols de la haute troposphère et de la stratosphère. Physique Atmosphérique et Océanique [physics.ao-ph]. Université d'Orléans, 2016. Français. <NNT : 2016ORLE2049>. <tel-01530747>

**HAL Id: tel-01530747**

**<https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01530747>**

Submitted on 31 May 2017

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

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

**ÉCOLE DOCTORALE**  
**ENERGIE, MATERIAUX, SCIENCES DE LA TERRE ET DE L'UNIVERS**

Laboratoire de Physique et de Chimie de l'Environnement et de l'Espace LPC2E

**THÈSE** présentée par :  
**Damien VIGNELLES**

soutenue le : 24 novembre 2016

pour obtenir le grade de : **Docteur de l'université d'Orléans**  
Discipline/ Spécialité : Climat et physico-chimie de l'atmosphère

**Caractérisation des performances du nouveau mini compteur de particules LOAC embarqué sous ballon météorologique :**  
application à l'étude de la variabilité spatiale et temporelle des aérosols de la haute troposphère et de la stratosphère

**THÈSE dirigée par :**

**Jean-Baptiste RENARD**

Directeur de recherche, LPC2E

**RAPPORTEURS :**

**Slimane BEKKI**

Directeur de recherche, LATMOS

**Patrick RAIROUX**

Professeur, Université de Lyon

---

**JURY :**

**Thierry DUDOK de WIT**

Professeur de l'université d'Orléans LPC2E  
Président du jury

**Gwenaël BERTHET**

Chargé de recherche LPC2E – co-encadrant

**Colette BROGNIEZ**

Professeure de l'université de Lille 1 LOA

**François DULAC**

Chercheur-Ingénieur CEA

**Denis BOULAUD**

Docteur d'état – Directeur, chargé de mission  
à l'environnement IRSN



Pour mon père scintillant



*« La Terre est bleue comme une orange »*

Paul Eluard

*« Ce que Zidane fait avec un ballon, Maradona le faisait avec une orange »*

Michel Platini

Antonin Artaud a dit « La vie est de brûler des questions ». Ici j'allume un grand feu et invite qui le veut à venir danser avec moi autour des flammes d'où jaillissent les idées. Cette thèse expérimentale et exploratoire convient tout à fait à ma personnalité ; je ne conçois pas la vie détachée de l'expérimentation, sans le test et l'essai, sans le oui mais non mais bon, sans le trifouillage et la tergiversation, sans le et si je tourne ça ça fait quoi. L'expérimentation, c'est la vie !

Je remercie donc Michel TAGGER, directeur du LPC2E, de m'avoir accueilli et de m'avoir permis d'expérimenter quelques volcans en éruption. Merci aux membres de mon jury, Slimane et Patrick pour leur expérience ainsi que pour leur regard sur mon travail. Un grand merci également à Colette, François, Thierry et Denis. Je remercie sincèrement Jean-Baptiste pour m'avoir diffusé la lumière de ses conseils, à un angle, à deux angles ainsi qu'à la multitude polarimétrique en vols paraboliques. Je remercie également Gwenaël avant tout pour son amitié, la qualité de son encadrement, l'expérience de ses conseils, son tempérament, sa métaphysique. Je remercie Daniel pour ce qu'il a fait pour moi.

Je remercie l'équipe LOAC pour l'expérience somptueuse de leur amitié : Benoît, Vincent, Fabrice, Nicolas, Thibaut, Tjarda et Matthieu.

Je remercie toute l'équipe atmosphère du LPC2E pour leur génie et leurs qualités : dans le désordre Gisèle, Claude, Frédérique, Nathalie, Michel, Patrick, Christophe, Olivier, Bertrand. Je remercie toute l'équipe mécanique en particulier Stéphane parce qu'il me l'a demandé, l'équipe plasma, astro, planéto ainsi que l'équipe administration pour sa patience et sa bonne humeur. Je remercie les CDD, thésards, post-doc et stagiaires que j'ai côtoyés. Je remercie mes potes de courses à pieds. Je remercie le mont Etna, Bénarès, Laramie, le piton de la Fournaise, le Holuhraun er Reykjavík, Orléans, Viennes, Tromsø, quelques villes en Allemagne ainsi que toutes les personnes qui peuplent ces lieux magnifiques dont cette thèse m'a permis de faire la connaissance. Je remercie spécialement Haraldur, Baldur, Njáll, Richard, Pavla, Evgenia, Anja, Terry, Lars, Nelson, Fabrice, Jean-Paul, Amit et Hemanth.

Je remercie le B.D.R, spécialement ses éminents membres fondateurs Arthur, Maya et Julien « Vive la R'cherche ! ». Je remercie l'Empereur pour sa sagesse, les phonquyi Tzcshez ainsi que tous mes amis en particulier Éric, Kévin, Adrien, Paul-Henri, Cédric, Dave, Pablo, Kim, Denis, Rémi, Julien, Raphaël, Sliman, Sébastien, Jessy, Jeffrey et Alex. Je remercie Angéline pour l'expérience de son amour et pour son esprit magnifique, toutes mes familles pour leur soutien, Pierre pour la grandeur de son âme, ma sœur Céline que j'aime profondément pour ce qu'elle est et pour ce qu'elle représente pour moi, enfin j'embrasse les mains de ma mère Véronique, créatrice de toutes mes expériences, divine auteure de la grandeur de l'existence.



# Table des matières

Liste des acronymes .....	10
Glossaire LOAC.....	12
1 Introduction générale et contexte de l'étude.....	13
2 Les aérosols stratosphériques.....	15
2.1 Les types d'aérosols stratosphériques .....	16
2.1.1 Les particules sulfatées.....	17
2.1.2 Le black carbon et les aérosols organiques.....	23
2.1.3 Matières météoritique et cométaire.....	24
2.1.4 Autres sources de particules stratosphériques .....	25
2.2 Dynamique atmosphérique et aérosols.....	27
2.2.1 Circulation générale en stratosphère .....	27
2.2.2 Dynamique méso-échelle et petite échelle.....	30
2.2.3 Dynamique propre des particules .....	30
2.3 Interactions des aérosols avec la physico-chimie de l'atmosphère.....	30
2.3.1 Implication des aérosols sur le climat.....	30
2.3.2 Implication des aérosols sur la chimie stratosphérique .....	33
2.4 Les méthodes d'observation des aérosols stratosphériques .....	34
2.4.1 Les mesures à bord de satellites .....	35
2.4.2 Les instruments de mesure in-situ embarqués en avion stratosphérique .....	39
2.4.3 Les instruments embarqués sous ballons.....	41
2.4.4 Les instruments au sol .....	44
2.4.5 Inter-comparaisons instrumentales.....	46
2.4.6 Conclusion sur les instruments de mesures des aérosols de l'atmosphère libre.....	47
2.5 Conclusion .....	47
3 Le LOAC.....	49
3.1 Description de l'instrument.....	49
3.1.1 Principe de la mesure.....	49
3.1.2 Méthode de détection .....	51
3.1.3 Procédure d'auto-calibration du seuil de détection.....	52
3.1.4 Post-traitement de la mesure du bruit.....	54
3.1.5 Incertitudes de mesure.....	55
3.1.6 Inter-comparaison instrumentale.....	57
3.2 Evaluation des performances du LOAC sous ballons météorologiques pour l'étude de la stratosphère.....	60
3.2.1 Influence des conditions de vols sur le laser LOAC.....	63
3.2.2 Influence des conditions de vol sur le débit de la pompe.....	65
3.2.3 Influence des conditions de vols sur l'électronique .....	67



3.2.4	Influence des conditions de vols sur le seuil de détection .....	68
3.2.5	Influence des conditions de vols sur l'incertitude en concentration .....	69
3.2.6	Influence de la limite de détection en stratosphère.....	70
3.2.7	Influence de la limite de discrimination minimale.....	73
3.2.8	Etude de la répétabilité de la mesure sous ballon météorologique.....	75
3.2.9	Inter-comparaison sous ballon avec un compteur différent.....	78
3.2.10	Conclusion sur les performances du LOAC en conditions stratosphériques .....	83
4	Etude de la variabilité des aérosols stratosphériques aux latitudes moyennes par le LOAC .....	85
4.1	Les données LOAC .....	85
4.1.1	Les campagnes Voltaire-LOAC et ChArMEx.....	85
4.1.2	Evolution du contenu en aérosol au-dessus de la France pour la période 2013-2016 mesuré par LOAC 86	
4.1.3	Conclusion sur le jeu de données LOAC .....	100
4.2	Comparaison de l'évolution du contenu en extinction LOAC à des sources de données indépendantes.....	100
4.2.1	Présentation du jeu de données indépendantes .....	100
4.2.2	Stratégie de comparaison.....	101
4.2.3	Résultats .....	102
4.2.4	Discussion.....	105
4.2.5	Conclusion sur la comparaison des extinctions LOAC avec des données indépendantes....	107
4.3	Retraitement des données LOAC – version novembre 2016.....	107
5	Caractérisation des sources de la variabilité des aérosols stratosphériques.....	115
5.1	Les sources troposphériques .....	115
5.1.1	Sources volcaniques .....	115
5.1.2	Mousson indienne .....	119
5.2	Origines stratosphériques de la variabilité.....	121
5.2.1	Variation de l'extinction stratosphérique au-dessus de la France .....	121
5.2.2	Cas de l'influence des ondes de gravité sur la distribution spatiale et temporelle des aérosols	127
6	Conclusions et perspectives.....	131
6.1	Conclusions générales .....	131
6.2	Perspectives métrologiques .....	132
6.2.1	Linéarité.....	132
6.2.2	Stabilité .....	135
6.2.3	Dépendance en température.....	137
6.2.4	Influence sur le prélèvement.....	138
6.2.5	Influence du rayonnement cosmique .....	139
6.3	Perspectives statistiques .....	139
6.4	Perspectives volcaniques.....	142

6.5	Perspectives sur le déploiement sous ballon météorologique.....	143
6.5.1	Feux de biomasse .....	143
6.5.2	Volcans troposphériques.....	143
6.5.3	Accidents industriels .....	143
7	Annexes.....	144
	Liste des Tableaux .....	146
	Liste des Figures .....	147
	Bibliographie .....	156

## Liste des acronymes

°C	Degré Celsius
µm	Micromètre (10 <sup>-6</sup> mètre)
ALI	<i>Aerosol Limb Profiler</i>
AMON	Absorption par les Minoritaires Ozone et NOx
ATAL	<i>Asian Tropopause Aerosol Layer</i>
AWI	<i>Ames Wire Impactor</i>
BC	<i>Black Carbon</i>
BSO	Ballon Stratosphérique Ouvert
CALIOP	<i>Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization</i>
CALIPSO	<i>Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observations</i>
CNC	Compteur à Noyau de Nucléation / <i>Condensation Nucleus Counter</i>
CS <sub>2</sub>	Disulfure de Carbone
DMS	DiMéthylSulfure
DOAS	<i>Differential Optical Absorption Spectroscopy</i>
DUSTER	<i>Dust in the Upper Stratosphere Tracking Experiment and Retrieval</i>
EC	<i>Elementary Carbon</i>
ECMWF	<i>European Center for Medium-Range Weather Forecasts</i>
GDR	Groupement de recherche
Gg	Gigagramme (10 <sup>9</sup> grammes)
GIEC	Groupe d'Experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat
GOCART	<i>Goddard Chemistry Aerosol Radiation and Transport</i>
GOMOS	<i>Global Ozone Monitoring by Occultation of Stars</i>
H <sub>2</sub> S	Sulfure de Dihydrogène
H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	Acide Sulfurique
HALOE	<i>Halogen Occultation Experiment</i>
hPa	Hectopascal
Hz	Hertz (1 seconde <sup>-1</sup> )
IASI	<i>Infrared Atmospheric Sounding Interferometer</i>
IR	Infra-Rouge
kHz	Kilohertz
LACy	Laboratoire de l'Atmosphère et des Cyclones
LASER	<i>Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation</i>
LATMOS	Laboratoire ATmosphère, Milieux, Observations Spatiales
LIDAR	<i>Light Detection and Ranging</i>
LOAC	<i>Light Optical Aerosol Counter</i>
LPC2E	Laboratoire de Physique et de Chimie de l'Environnement et de l'Espace
MACS	<i>Multi Sample Aerosol System</i>
MicroRADIBAL	Micro Radiomètre Ballon
ms	Milliseconde (10 <sup>-3</sup> seconde)
mV	Millivolts (10 <sup>-3</sup> Volt)
MW	Mégawatt (10 <sup>3</sup> Watt)
NASA	<i>National Aeronautics and Space Administration</i>
NDACC	<i>Network for the Detection of Atmospheric Composition Change</i>

nm	Nanomètre (10 <sup>-9</sup> mètre)
OAG	Observatoire Atmosphérique Générali
OC	Organic Carbon
OCS	Oxysulfite de Carbone
OMPS	<i>Ozone Mapping Profiler Suite</i>
OSIRIS	<i>Optical Spectrograph and InfraRed Imager System</i>
OVSQ	Observatoire Versailles Saint Quentin
PALMS	<i>Particle Analysis by Laser Mass Spectrometry</i>
PIT	Plateforme d'Intégration et de Tests
PM <sub>10</sub> / PM <sub>2.5</sub>	Particulate Matter 10 µm / 2,5 µm
PSC	<i>Polar stratospheric Cloud</i>
PV	<i>Potential Vorticity</i>
QBO	<i>Quasi-Biennial Oscillation</i>
SAGE	<i>Stratospheric Aerosol and Gas Experiment</i>
SALOMON	Spectroscopie d'Absorption Lunaire pour l'Observation des Minoritaires Ozone et Nox
SIRTA	Site Instrumental de Recherche par Télédétection Atmosphérique
SMPS/DMPS	<i>Scanning Mobility Particle Sizer / Differential Mobility Particle Sizer</i>
SO <sub>2</sub>	Dioxyde de Soufre
SOPHIE	<i>Solar Occultation for Ice Experiment</i>
SP2	<i>Single Particle Soot Photometer</i>
SPARC	<i>Stratosphere Troposphere Processes and their Role in Climate</i>
SSiRC	<i>Stratospheric Sulfur and its Role in Climate</i>
STAC	<i>Stratospheric Tropospheric Aerosol Counter</i>
TEOM	<i>Tapered Element Oscillating Microbalance</i>
Tg	Teragramme (10 <sup>12</sup> grammes)
UTLS	<i>Upper Troposphere and Lower Stratosphere</i>
UV	Ultra-Violet
VEI	<i>Volcanic Explosivity Index</i>
WACCM	<i>Whole Atmosphere Community Climate Model</i>

## Glossaire LOAC

Cellule de détection	Emplacement dans le LOAC où se produit la diffusion lumineuse du laser par les particules échantillonnées
Concentration cumulée	Somme des concentrations des gammes de tailles (sur les 19 gammes de tailles si non précisé)
Concentration/extinction résiduelle	concentration/extinction associée lorsqu'aucune particule n'est présente dans la cellule de détection
Détection discrète	Régime de détection hors influence de la détection statistique
Détection statistique	Plage de gamme de taille où la détection se fait dans le bruit des concentrations résiduelles
Données brutes	Nombres de coups numérisés par 10 secondes sur les 19 gammes de tensions contenant la mesure ainsi que le bruit
Limite de détection	Moyenne de la concentration/extinction résiduelle plus $1 \sigma$
Limite de discrimination minimale	Limite à partir de laquelle une particule produit une variation de la concentration
Phase de fonctionnement	3 types de phases de fonctionnement existent : la phase de recherche de bruit, la phase de mesure et la phase de test du critère de bruit
Phase de mesure	Phase de fonctionnement pendant laquelle le laser LOAC est allumé et le système produit la mesure
Phase de recherche du bruit	Phase de fonctionnement pendant laquelle le laser LOAC est éteint et le système numérise uniquement le bruit de mesure
Phase de test de la condition du bruit	Phase de fonctionnement pendant laquelle le laser LOAC est éteint et compare la valeur de la première gamme de taille du bruit au critère de validité du bruit
Séquence de mesure	Succession des phases de fonctionnement LOAC
Seuil de détection	Borne inférieure de la première gamme de taille LOAC
Typologie	Nature optique dominante de l'aérosol dans une classe de taille donnée

## 1 Introduction générale et contexte de l'étude

Entre 1899 et 1902, après un peu de plus de 200 lâchers de ballon, le français Léon Teisserenc de Bort conclut qu'il existe entre 10000 et 16000 mètres au-dessus de la surface du sol, une couche isotherme où la température de l'atmosphère cesse de décroître avec l'altitude (Rochas, 2002). C'est la découverte de la stratosphère avec des moyens expérimentaux relativement rudimentaires tels que le météorographe (Figure 1.1, à gauche).

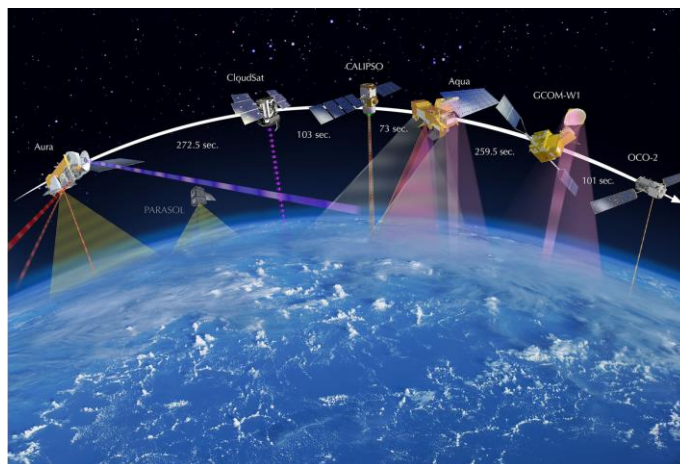


Figure 1.1 : A gauche, exemple de météorographe déployé sous ballon météorologique permettant de mesurer la température, la pression et l'humidité de l'air, employé par Léon Teisserenc de Bort en 1898. A droite, la suite de satellites *A-train* constellation appelée également *A-train*, constitué de 7 satellites se suivant embarquant environ 19 instruments dédiés à la mesure à distance des nombreux paramètres physico-chimiques de l'atmosphère terrestre

Depuis ce pionnier de l'expérimentation du ballon atmosphérique, le foisonnement des instruments spatiaux couvre jour et nuit la globalité du globe terrestre et sonde l'atmosphère de manière ininterrompue. L'exemple de la constellation *A-train*, constituée de 7 satellites placés sur la même orbite, représente l'apogée de la technologie instrumentale spatiale de nos jours (Figure 1.1, à droite). Les uns derrière les autres, un total de 19 instruments sur ces satellites placés à environ 700 km d'altitude, observent l'atmosphère en effectuant une rotation autour du globe en 1h30 environ. La puissance des calculateurs modernes permet d'assimiler toutes ces informations, ainsi que les mesures sous ballons, avions, fusées, ainsi que les mesures effectuées à partir du sol telles que les lidars, radars, stations météorologiques afin de produire des données simulées de très hautes résolutions spatiales et temporelles et de prévoir l'évolution future de notre atmosphère dans un contexte de réchauffement climatique. Chaque jour, notre connaissance de l'atmosphère est un peu plus grande.

Considérant ce développement exponentiel des technologies spatiales, est-il déraisonnable de penser qu'à terme il puisse ne plus s'avérer utile de réaliser de mesures in situ des grandeurs physico-chimiques de l'atmosphère sous ballons ? A la manière de la psychohistoire, concept de science-fiction développé dans les années 1940 par l'auteur russo-américain Isaac Asimov (2004) permettant de prévoir le futur des sociétés connaissant l'état actuelle exacte de celles-ci, pourrions-nous présupposer qu'il arrive un jour où toutes les règles physico-chimiques régissant l'atmosphère terrestre puissent être suffisamment contraintes par les sciences atmosphériques afin de décrire l'évolution du climat passé et à venir ? Et en face de cette situation, est-ce que la communauté ballon se dégonfle ?

Les exemples des performances des prévisions météorologiques à plusieurs semaines au niveau régional ainsi que les débats actuels sur l'évolution du climat à 50 ans (Slingo et Palmer, 2011) démontrent que nous n'avons à l'heure actuelle qu'une image partielle des relations qui régissent notre atmosphère. Il demeure de

nos jours de nombreuses questions scientifiques érigées en thèmes de recherche, notamment en ce qui concerne la composition des aérosols stratosphériques et leurs propriétés optiques (Bond et al., 2013; English et al., 2011; Hendricks et al., 2004; Kanakidou et al., 2005; Kremser et al., 2016; Sheng et al., 2015; Solomon, 1999). Les algorithmes de traitement des mesures à distances, telles que celles réalisées par les instruments spatiaux, nécessitent de nombreuses hypothèses notamment sur la composition des particules stratosphériques (Bourassa et al., 2008; Chahine, 1968; Thomason et al., 2010; Vernier et al., 2009). Dans la grande majorité des cas, le traitement des signaux des mesures à distance supposent que les aérosols stratosphériques sont constitués uniquement de particules liquides, sphériques, de compositions homogènes et assimilées à des gouttelettes d'acide sulfurique. Ces hypothèses mènent à sous-estimer l'hétérogénéité de la stratosphère moyenne dont, actuellement, seules les mesures in situ sous ballons stratosphériques peuvent rendre compte.

Les mesures des compteurs de particules sous ballons STAC (*Stratospheric Tropospheric Aerosol Counter*) et LOAC (*Light Optical Aerosol Counter*) développés au LPC2E (Laboratoire de Physique et de Chimie de l'Atmosphère et de l'Espace à Orléans), tendent à montrer qu'il existe, en stratosphère, une grande variabilité spatiale, temporelle ainsi que de composition de ces particules. Pouvoir décrire la composition des aérosols stratosphériques mène à terme à consolider la technique de mesure à distance et à englober toute la diversité de la composition de la stratosphère qui guide en partie l'évolution du climat et son impact sur l'environnement terrestre.

Afin d'étudier les variations locales des aérosols stratosphériques à partir des données du compteur LOAC, nous avons procédé en trois étapes. Dans un premier temps, nous avons effectué une étude minutieuse des performances de l'instrument lors de son utilisation sous ballons météorologiques. Nous avons réalisé une étude de la réponse de certains éléments du LOAC pris indépendamment sous l'influence de conditions stratosphériques simulées en laboratoire, puis pratiquer des inter-comparaisons en vols entre deux LOAC d'une part et avec un autre compteur stratosphérique d'aérosols dédié à la stratosphère d'autre part. Dans un second temps, nous avons constitué une base de données à partir des résultats d'instruments satellite, sol et de sorties de simulation globale disponibles sur la période de mesure LOAC (2013-2016) puis inter-comparé ces données en discutant les résultats. L'analyse de ces inter-comparaisons révèle de bons accords moyens sur trois ans en basse stratosphère entre les données. En moyenne stratosphère apparaissent une divergence des résultats ainsi qu'une dispersion des données LOAC plus importante que les données satellites ou lidar sol. Dans un troisième temps, nous discutons les résultats de différents cas d'étude portant sur la variabilité locale des aérosols stratosphériques obtenus avec le LOAC lors d'éruptions volcaniques, de période de mousson asiatique en Inde, le cas de la saisonnalité au-dessus de la France ou encore le cas d'une onde de gravité modulant la distribution verticale des aérosols. En perspective nous dressons les grandes lignes d'un dispositif permettant d'avancer sur la compréhension des performances météorologiques du LOAC dans la version utilisée dans cette étude. Nous discutons également de la possibilité d'étudier la base de données LOAC selon d'autres approches notamment statistiques par des méthodes dites de regroupement ainsi que d'autres perspectives sur l'utilisation du LOAC pour d'autres projets scientifiques.

## 2 Les aérosols stratosphériques

L'atmosphère est constituée de différentes couches établies en fonction du gradient de température (Figure 2.1). Depuis le sol, 4 couches atmosphériques sont discriminées : la troposphère, la stratosphère, la mésosphère puis la thermosphère.

La troposphère, s'étendant du sol à environ 15 km d'altitude aux moyennes latitudes, est caractérisée par une diminution de la température en fonction de l'altitude ce qui permet l'apparition d'instabilités dans les masses d'air. La troposphère est largement impactée par les sources de composés gazeux et particulaires se trouvant à la surface (volcans, océans, déserts, végétations, pollutions anthropiques).

La stratosphère est caractérisée par un gradient positif de température verticale. Cette augmentation de température avec l'altitude est due à la présence de la couche d'ozone et de son interaction avec le rayonnement solaire (Seinfeld et Pandis, 2006; Watanabe, 1958). Ce gradient positif de température confère à la stratosphère une grande stabilité qui limite les échanges verticaux et allonge la durée de résidence des composés qui y sont présents.

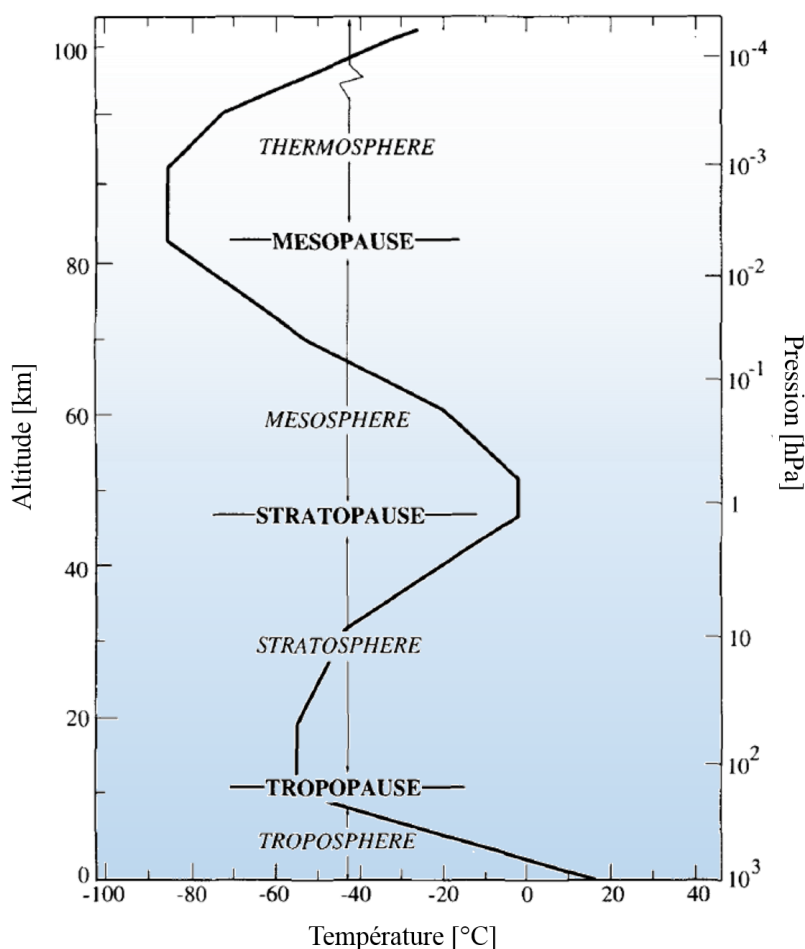


Figure 2.1 : Schématisation de la décomposition de l'atmosphère en fonction du gradient de température.  
Figure adaptée d'après Seinfeld et Pandis (2006)

La mésosphère est la troisième couche de l'atmosphère. Elle s'étend de 50 à 80 km d'altitude environ. La température en mésosphère décroît avec l'altitude.

La thermosphère est la quatrième couche de l'atmosphère qui possède comme la stratosphère un gradient positif de température. Au-delà de la thermosphère se trouve l'exosphère où commence l'espace.



## 2 Les aérosols stratosphériques

L'atmosphère libre est définie comme la partie de l'atmosphère qui se trouve au-dessus de la couche limite atmosphérique en contact avec la surface terrestre (quelques km d'altitude). L'étude des aérosols stratosphériques nécessite d'étudier les aérosols se trouvant en troposphère libre jusqu'en mésosphère car ce sont des couches atmosphériques qui influencent la stratosphère.

### 2.1 Les types d'aérosols stratosphériques

En science atmosphérique, un aérosol désigne un milieu constitué d'un fluide gazeux contenant des particules en suspension. Le gaz porteur peut être l'air atmosphérique ou tout autre gaz. Les particules sont définies comme des objets de petites tailles et de composition liquide et/ou solide en suspension dans le gaz porteur. La gamme de taille des particules s'inscrit sur plusieurs ordres de grandeur, du nanomètre (1 nanomètre =  $10^{-9}$  m) à quelques centaines de micromètres (1 micromètre =  $10^{-6}$  m).

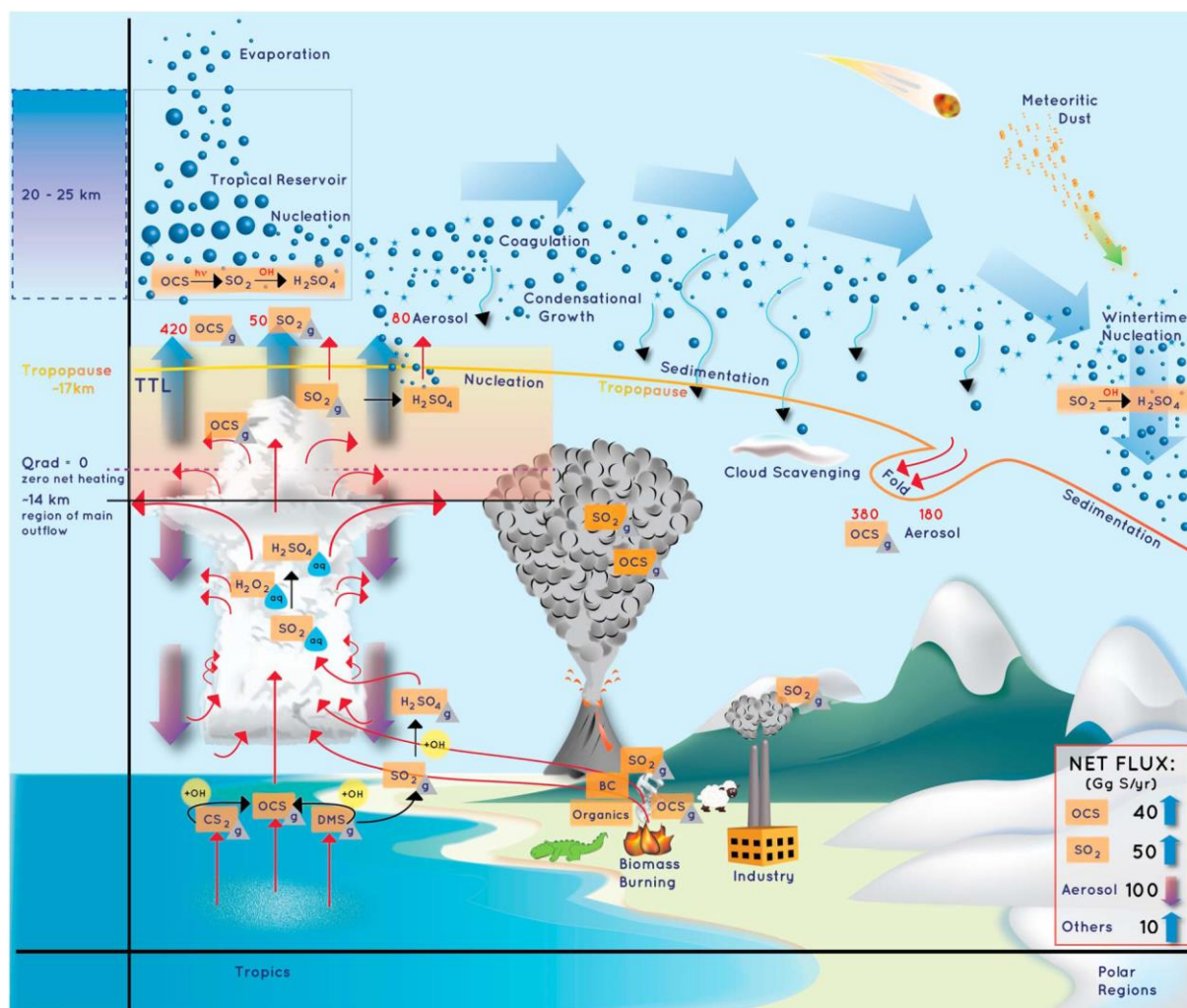


Figure 2.2 : Schématisation des particules stratosphériques, de leur transport, des flux et des principales sources (Kremser et al., 2016)

Il existe de nombreuses classifications permettant d'organiser les différents types de particules. Il est notamment possible de discriminer les particules selon leur mode de production. Lorsque le vent érode le sol, il peut charger l'air de particules, ces particules sont dites primaires car elles sont directement mises en suspension. Les poussières désertiques sont des particules primaires tout comme les cendres que produit un volcan en éruption ou les spores que libère la végétation, les embruns marins, certaines pollutions anthropiques. Les particules primaires sont généralement de tailles supérieures au micromètre. Aux particules primaires sont opposées les particules secondaires qui résultent de conversion de gaz en particules au sein de l'atmosphère. Ces particules sont de taille nanométrique. Des gaz dits précurseurs émis par le

trafic, l'industrie ou la végétation peuvent conduire à la formation de particules sous l'effet du rayonnement solaire par exemple.

Lorsqu'une particule est en suspension dans un gaz, celle-ci peut être soumise à de nombreuses interactions de différentes natures. Les particules peuvent par exemple s'agglomérer entre elles et produire des particules plus grandes par coagulation. Les particules dans un gaz humide peuvent également se voir recouvrir d'une phase liquide par condensation. Une particule peut évoluer sous l'influence de réactions chimiques au sein de sa propre composition, ou bien sous l'influence d'une énergie lumineuse. Les particules sont des objets de tailles très différentes, capables d'évoluer dans le temps, possédant un potentiel chimique élevé par de grandes surfaces spécifiques (réactions gaz-particule dites réactions hétérogènes), contribuant à l'équilibre radiatif de la Terre et à la dynamique de l'atmosphère.

Les aérosols stratosphériques sont composés d'un mélange de gouttelettes d'acide sulfurique produites par la conversion de gaz précurseurs ainsi que de particules troposphériques d'origine anthropique et naturelle ainsi que de particules provenant de l'espace ayant été accrétées par la Terre ((Kremser et al., 2016) Figure 2.2).

### 2.1.1 Les particules sulfatées

Les particules sulfatées stratosphériques ont pour origine l'oxydation du soufre provenant de la troposphère (English et al., 2011; Kremser et al., 2016). Les océans, les volcans, les feux de biomasse et l'activité anthropique sont les principales sources de gaz soufrés (Seinfeld et Pandis, 2006). Ces gaz sont l'oxysulfure de carbone (OCS), le dioxyde de soufre ( $\text{SO}_2$ ), le sulfure de diméthyle (DMS), le sulfure d'hydrogène ( $\text{H}_2\text{S}$ ) et le sulfure de carbone ( $\text{CS}_2$ ). Ces différentes espèces chimiques évoluent vers un plus haut degré d'oxydation sous l'influence du rayonnement solaire et des réactions chimiques et produisent de l'acide sulfurique ( $\text{H}_2\text{SO}_4$ ) (Figure 2.3). L'acide sulfurique peut alors être converti en particules sous la forme de gouttelette d'acide sulfurique, ce sont les particules sulfatées.

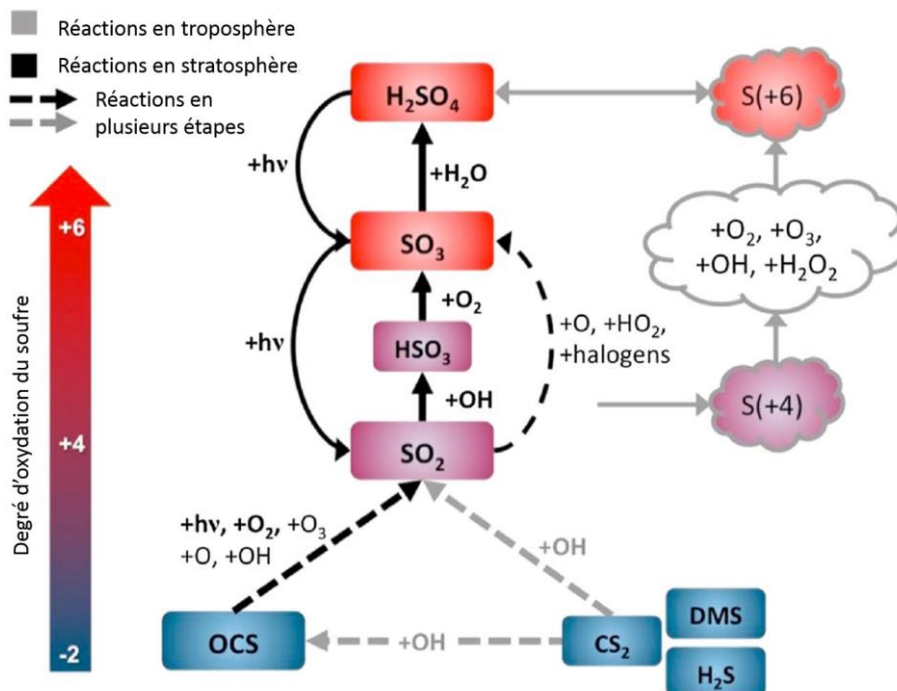


Figure 2.3 : Schématisation simplifiée des différentes réactions chimiques menant à la production de l'acide sulfurique en stratosphère. La couleur des flèches grises ou noires indiquent le lieu des réactions, respectivement en troposphère ou en stratosphère. Les couleurs bleu à rouge représentent le degré d'oxydation du soufre (adapté d'après Kremser et al., 2016)

## 2 Les aérosols stratosphériques

### a. Les particules sulfatées d'origine volcanique

Les éruptions volcaniques majeures conduisent à modifier le bilan radiatif terrestre par l'introduction massive en stratosphère de soufre précurseur de particules sulfatées (Robock, 2000). En 1815, l'éruption du Tambora, d'indice d'explosivité volcanique (VEI) de 7 sur une échelle de 8, a produit des anomalies de température de l'ordre de  $-0,4$  à  $-0,7^{\circ}\text{C}$  au sol (Stothers, 1984), l'année 1816 est connue en Europe comme l'année sans été (Stommel et Stommel, 1983).

Le  $\text{SO}_2$  injecté en stratosphère lors d'une éruption volcanique est très variable selon l'explosivité du volcan ainsi que sa position en latitude. Le dernier volcan ayant largement modifié la stratosphère est le Pinatubo (Philippines  $15^{\circ}\text{N}$  ;  $120^{\circ}\text{E}$ , Robock, 2000) en 1991. Lors de son éruption, le Pinatubo a injecté environ 20 Tg de soufre gazeux (1 Tg =  $10^{12}$  g = 1000 Gg) ce qui représente 30 à 60 fois la quantité de soufre gazeux qui réside en stratosphère hors influence des volcans (McCormick et al., 1995).

L'activité volcanique annuelle moyenne est faible devant cette éruption majeure. Carn et al. (2016) estiment qu'un flux annuel de 1.6 Tg de soufre est attribuable aux volcans en se basant sur les 30 dernières années. Ce flux annuel représente ce qu'injecte en stratosphère un volcan modéré tel que le Sarychev en 2009 (Haywood et al., 2010; Jégou et al., 2013) ou le Nabro en 2011 (Carboni et al., 2016).

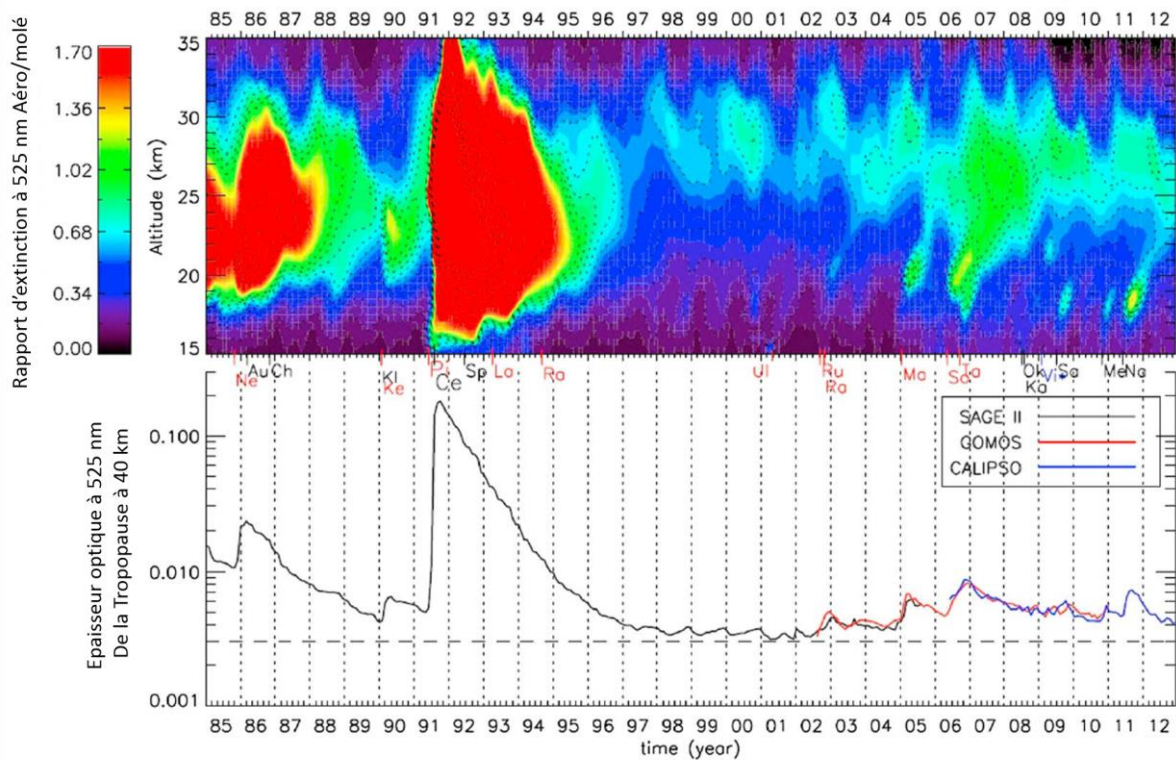


Figure 2.4 : Evolution mensuelle du contenu zonal en aérosols stratosphériques ( $-20^{\circ}\text{N}$ ,  $20^{\circ}\text{N}$ ) de 1985 à 2012 exprimée en rapport d'extinction (figure supérieure) et en épaisseur optique des aérosols stratosphériques (figure en dessous). Données satellites combinées SAGE II, GOMOS et CALIPSO. Les éruptions notables sont indiquées par des lettres : Ne : Nevado del Ruiz, Au : Augustine, Ch : Chikurachki, Ki : Kliuchevskoi, Ke : Kelut, Pi : Pinatubo, Ce : Cerro Hudson, Sp : Spur, La : Lascar, Ra : Rabaul, Ul : Ulawun, Ru : Ruang, Re : Reventador, Ma : Manam, So Soufrière Hills, Ta : Tavurvur, Ok : Okmok, Ka : Kasatochi, Sa : Sarichev, Me : Merapi, Na : Nabro. Les éruptions tropicales sont notées en rouge. Vi\* indique le feu de la forêt Victoria. (adapté d'après Kremser et al., 2016)

Les aérosols volcaniques en stratosphère contribuent à l'extinction du rayonnement solaire. L'extinction caractérise la quantité d'énergie lumineuse provenant du soleil qui n'est pas transmise jusqu'au sol par diffusion ou absorption des particules. L'extinction est exprimée en longueur<sup>-1</sup>. L'épaisseur optique est l'intégration de l'extinction suivant une distance donnée. La Figure 2.4 représente l'évolution mensuelle de la quantité des aérosols stratosphériques tropicaux entre 1985 et 2012. La Figure 2.4 supérieure représente la dépendance temporelle du rapport de l'extinction entre les aérosols et les molécules de gaz ambiant.

La Figure 2.4 inférieure représente l'épaisseur optique entre la tropopause et 40 km. Ces figures montrent que les volcans ont une influence considérable sur la quantité de particules en stratosphère. La perturbation du Pinatubo sur la stratosphère entraîne un renforcement de l'épaisseur optique d'au moins un facteur 4 pendant une période de 3 à 4 ans, avec un maximum après l'éruption d'un facteur 60 par rapport aux périodes de fond. Pour la période 2002 à 2012, plusieurs éruptions de moindre importance modifient le niveau de fond. Le temps de résidence des aérosols volcaniques en stratosphère est variable et dépend de différents facteurs comme le type de volcan (effusif ou éruptif), sa position en latitude, l'altitude d'injection, et de la période de l'année (Russell et al., 1996; Textor, 2003; Vernier et al., 2016).

La dispersion des panaches volcaniques dépend en premier lieu de la localisation des éruptions. Les volcans tropicaux injectent des aérosols qui peuvent être distribués dans les deux hémisphères très rapidement. La dispersion du volcan Tavorvur par exemple, éruption d'explosivité moyenne (VEI 4) entrée en activité le 7 octobre 2006 est représentée Figure 2.5 selon la dépendance dans le temps et suivant les latitudes par le rapport de diffusion moyen zonal. Le rapport de diffusion est défini comme la quantité de lumière diffusée par les molécules et les particules par rapport à la quantité diffusée par les molécules seulement. Cette quantité permet de mettre en évidence la contribution de la diffusion par les particules et de suivre notamment plus aisément les panaches volcaniques. Ces observations du rapport de diffusion faites par CALIOP (décrit au chapitre 2.4) montrent qu'au niveau de la tropopause, le panache est rapidement nettoyé par les processus troposphériques (Figure 2.5 D ; les fortes valeurs de rapport de diffusion disparaissent en quelques semaines). En basse stratosphère (Figure 2.5 C) le panache est dispersé aux latitudes moyennes après quelques mois, plus rapidement vers le sud. En moyenne stratosphère (Figure 2.5 A et B), le panache est plus persistant et plus étendu dans le temps et l'espace sous l'influence de la circulation lente stratosphérique de Brewer-Dobson (Holton et al., 1995). Ici le panache du Tavorvur se mélange en moyenne stratosphère avec un précédent panache, celui de la Soufrière. Lorsque l'éruption volcanique survient dans une région extratropicale, la distribution du panache se fait dans l'hémisphère d'émission et dépend principalement de l'altitude d'injection.

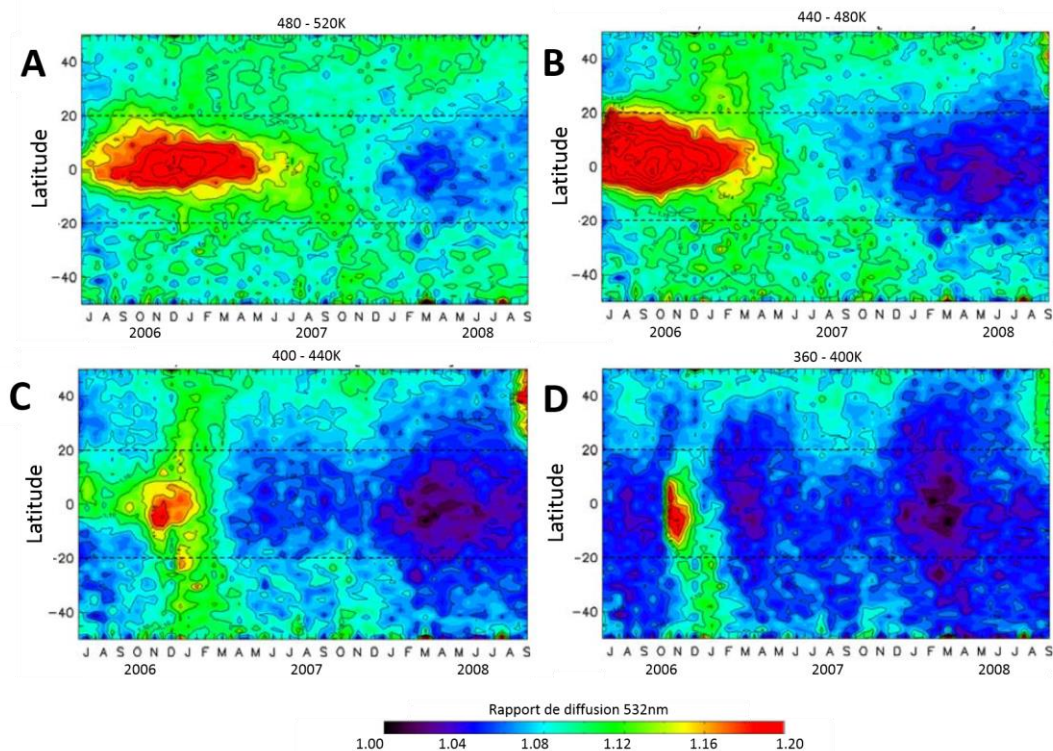


Figure 2.5 : Transport du panache du Tavorvur situé en Papouasie Nouvelle Guinée ( $-4^{\circ}\text{N}$  ;  $152^{\circ}\text{E}$ , éruption en août 2006) alors que le panache de la Soufrière ( $16^{\circ}\text{N}$  ;  $-61^{\circ}\text{E}$ , éruption en mai 2006) est encore présent en stratosphère, pour 4 niveaux d'altitudes exprimés en température potentielle (Kelvin), exprimé en rapport de diffusion d'après les mesures CALIOP zonale. La tropopause est située dans la bande 360-400K, la bande 400-440K représente la basse stratosphère, les bandes 440-480K et 480-520K représentent la moyenne stratosphère. (adapté d'après Vernier 2010)

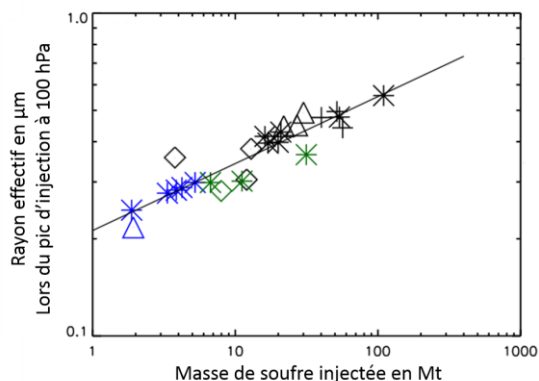


Figure 2.6 : Relation entre la masse de soufre injectée par les éruptions et le rayon effectif des particules lors du pic d'injection à 100 hPa. Les symboles représentent la saison de l'éruption (étoile : printemps, triangle : été, diamant : automne, croix : hiver), les couleurs indiquent les latitudes d'éruption (noir : tropicale, bleu : extratropical sud, vert extratropical nord) (adapté d'après Arfeuille et al. 2014)

La quantité de particules secondaires soufrées produite après une éruption dépend de la quantité de gaz précurseurs injectée par les éruptions. La taille des particules dépend également de la puissance des éruptions comme le montrent Arfeuille et al. (2014) (Figure 2.6).

La taille des particules sulfatées stratosphériques évolue dans le temps après une éruption majeure. Lors de périodes volcaniques, les particules sont de diamètres plus importants et sont organisées selon des distributions bimodales (Figure 2.7) tandis qu'en période de fond la distribution des particules est monomodale. Cette distribution en taille évolue avec le temps après une éruption, les distributions se répartissent autour de diamètres moyens plus élevés (les particules grossissent) puis la situation converge lentement vers la situation de fond si aucune éruption ne vient perturber de nouveau la situation (Jäger et Deshler, 2002). Les particules soufrées de fond possèdent des diamètres de l'ordre de 160 nm, tandis que les modes des distributions post-Pinatubo sont supérieurs à 200 nm, jusqu'à 1,5 µm pour un mode secondaire qui perdure quasiment un an après l'éruption (Jäger et Deshler, 2002).

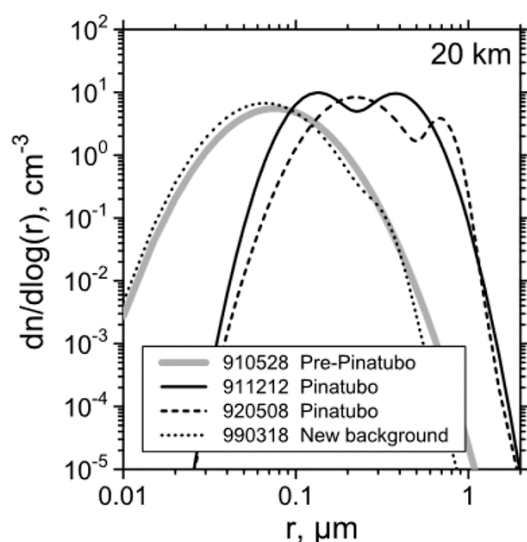


Figure 2.7 : Distribution des concentrations de particules à 20 km selon leurs rayons et pour différentes périodes de temps après l'éruption du Pinatubo en 1991 (Jäger et Deshler, 2002)

Les modèles permettent de simuler la dispersion des panaches et peuvent rendre compte des variations du transport des panaches volcaniques produites par les échauffements locaux (Aquila et al., 2012). Les panaches volcaniques influencent la dynamique stratosphérique et la circulation générale par leur effet radiatif (Pitari et Rizzi, 1993).

b. Les particules sulfatées d'origine non-volcanique

Lors des périodes d'accalmie volcanique, les gaz OCS et SO<sub>2</sub> constituent les sources d'aérosols soufrés stratosphériques les plus importantes. Les flux nets d'OCS et de SO<sub>2</sub> traversant la tropopause sont estimés être chacun de l'ordre de 45 Gg de soufre par année (1 Gg = 10<sup>9</sup> g) (Chin et al., 2000; Chin et Davis, 1995; Sheng et al., 2015). Il faut ajouter également les composés soufrés à courtes durées de vie (DMS, H<sub>2</sub>S, CS<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub>) qui contribuent au flux total de façon non négligeable (de l'ordre de 10 Gg par année). Le soufre est retiré de la stratosphère sous forme de particules avec un flux net estimé à 100 Gg par année. Le cycle du soufre en stratosphère peut être résumé schématiquement de cette façon : le soufre est émis par des sources troposphériques, injecté sous forme gazeuse en stratosphère, converti en particules puis déposé en troposphère par sédimentation. La Figure 2.8 représente le bilan détaillé des différentes espèces soufrées obtenu par simulation selon Sheng et al. (2015).

Les concentrations d'OCS mesurées au-dessus de la Suisse indiquent une certaine stabilité en stratosphère à long terme, tandis qu'en troposphère les concentrations décroissent jusque dans les années 1995 et restent depuis relativement stables (SPARC 2006 Figure 2.9).

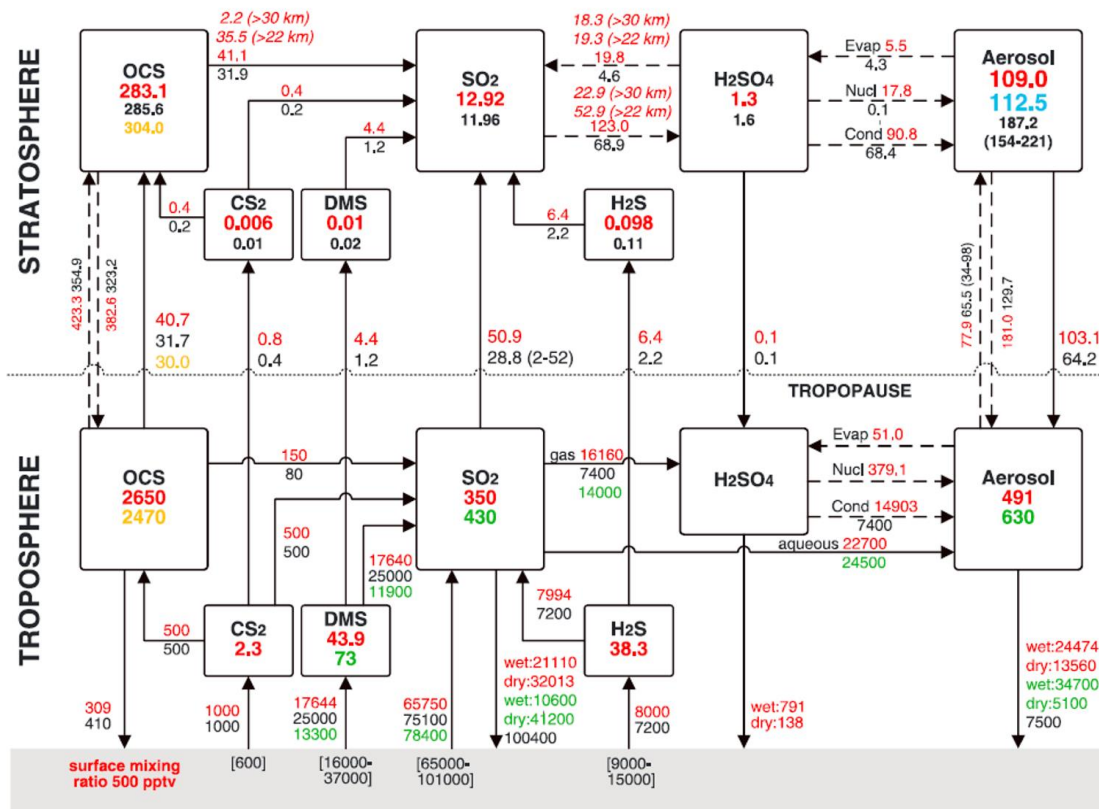


Figure 2.8 : Bilan global du soufre atmosphérique selon Sheng et al. (2015). Les flèches pleines représentent les flux nets d'émission de surface, le transport par la tropopause, les puits et les sources physico-chimiques et les transformations microphysiques en Gg de soufre par année. Les flèches en pointillées représentent le flux dans une direction ainsi que le détail des conversions microphysiques et chimiques. Les boîtes représentent les réservoirs des composés exprimés en Gg de soufre. Les données en rouges sont issues du modèle SOCOL-ARE, les données en noires proviennent de SPARC (2006). Les données en vert proviennent du modèle GOCART (Chin et al., 2000). Les données en orange proviennent de Chin et Davis (1995). Les données en bleu représentent les mesures de SAGE II (Arfeuille et al., 2014)

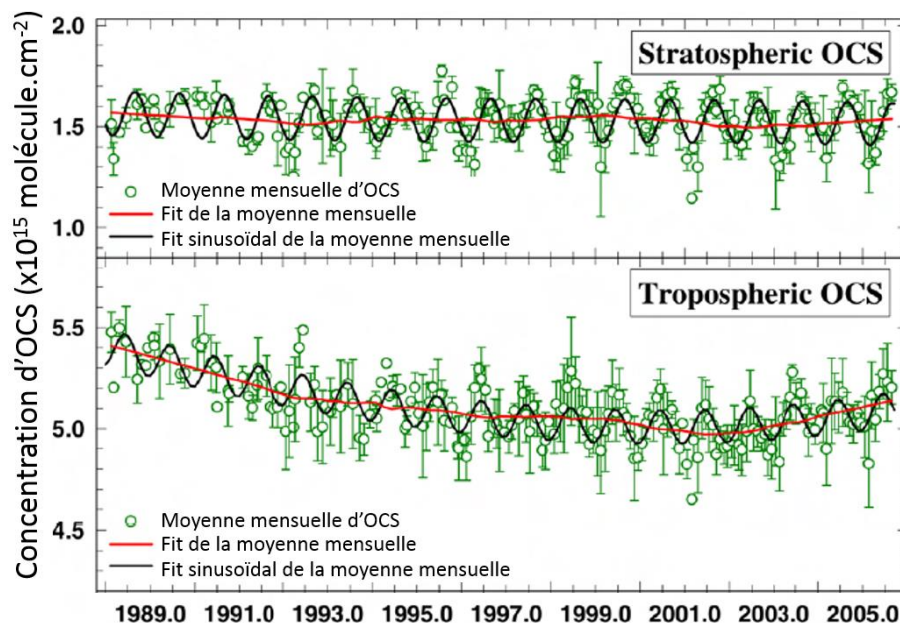


Figure 2.9 : Evolution temporelle de la concentration d'OCS en stratosphère et troposphère au-dessus de la station de Jungfraujoch (Suisse, 46°N ; 7°E) (adapté d'après SPARC 2006)

Les quantités de soufre anthropique émis dans l'atmosphère représentent 70 à 80 % du total de soufre troposphérique sous forme gazeux (SPARC 2006). L'Europe de l'ouest et l'Amérique du nord sont les premiers contributeurs d'émission de soufre à partir de la révolution industrielle tandis que la contribution du reste du monde est négligeable (SPARC 2006). A partir des années 1975 les contributions s'inversent, l'Asie et en particulier la Chine émettent de plus en plus de soufre tandis que l'Europe et l'Amérique réduisent leur émission (Figure 2.10). Entre 1970 et 2005, les émissions de soufre anthropique sont de l'ordre de 50 Tg.an<sup>-1</sup>.

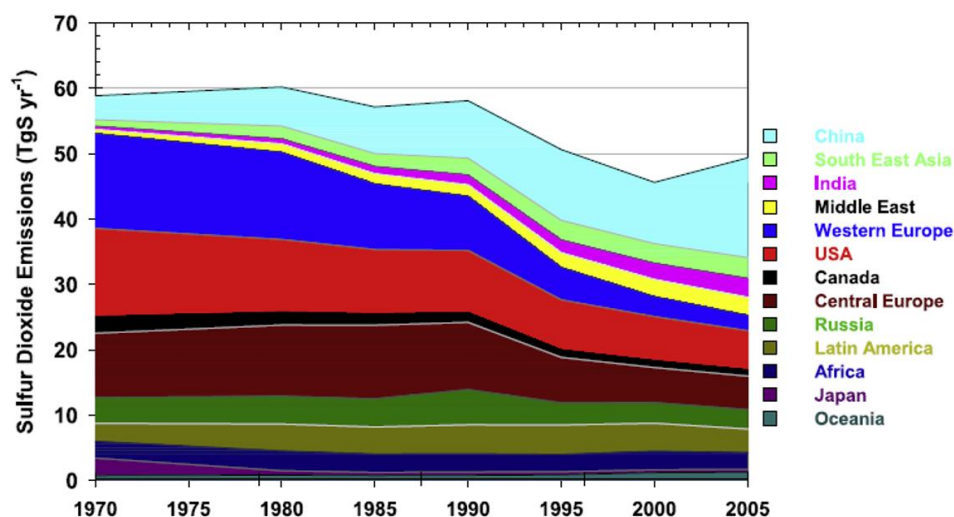


Figure 2.10 : Evolution temporelle des émissions de soufre cumulées par zone géographique entre 1970 et 2005 (Hofmann et al, 2009)

### 2.1.2 Le black carbon et les aérosols organiques

Le black carbon (BC ou carbone élémentaire EC) et les particules organiques (OC) sont les produits de combustions plus ou moins complètes, provenant de l'utilisation d'énergie fossile et de feux de biomasse (Bond et al., 2013). Les OC sont également produits par conversion des composés organiques émis par la végétation (Seinfeld et Pandis, 2006).

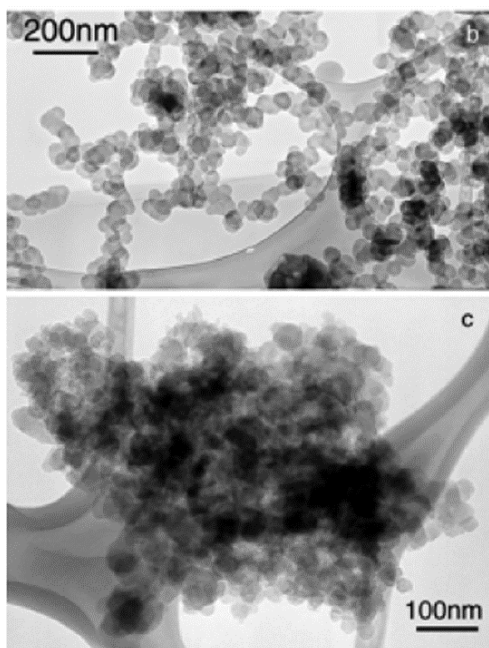


Figure 2.11 : Observations faites par microscope électronique à balayage (MEB) de particules carbonées issues de feux de forêts africains. On perçoit la structure très complexe de ces particules organisée en chaînes d'éléments de tailles similaires (Bond et al., 2013)

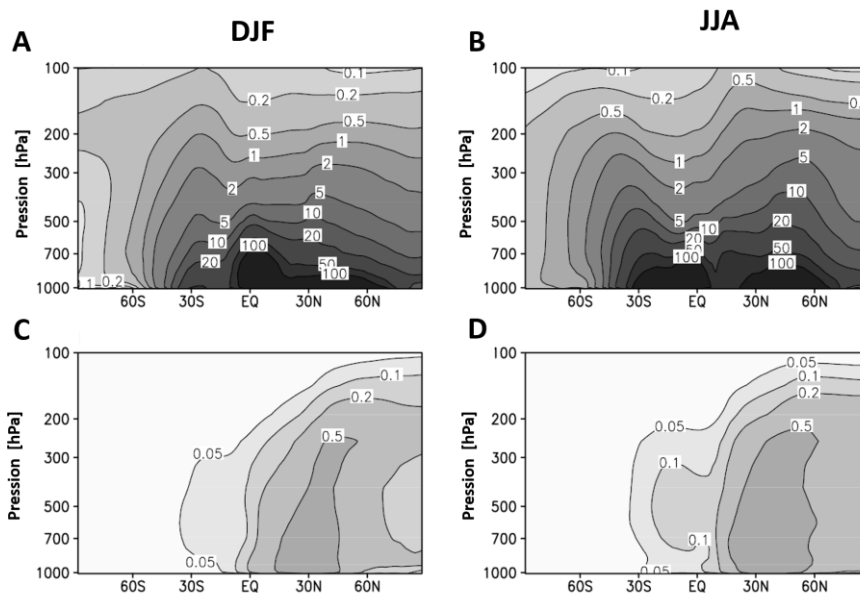


Figure 2.12 : Distribution zonale de la concentration du carbone élémentaire simulée. Les figures A et B représentent respectivement la distribution verticale de la concentration de black carbon exprimée en particule par  $\text{cm}^3$  en fonction de la latitude pour les mois d'hiver boréal et d'hiver austral. Les figures C et D représentent de la même façon la contribution du trafic aérien seulement. (Adapté d'après Hendricks et al., 2004)



Le carbone élémentaire est constitué de chaînes de sphérules elles-mêmes constituées de feuillets de graphène (cristal hexagonal bidimensionnel de carbone). Les particules de carbone élémentaire sont des particules primaires de formes très irrégulières (Figure 2.11). La détermination d'un diamètre pour ces particules est difficile, des études montrent qu'une approche fractale permet de bons résultats (Bescond et al., 2016; Ouf et al., 2010; Slowik et al., 2007). Ces particules possèdent des longueurs de l'ordre de quelques nanomètres à quelques centaines de nanomètres.

Les particules organiques possèdent une base carbonée organisée autour des groupes méthyle ( $\text{CH}_3$ ). La plus petite des molécules organiques étant le méthane ( $\text{CH}_4$ ), les molécules contenant plus d'une dizaine d'atomes de carbone sont considérées comme des particules selon les situations (Seinfeld et Pandis, 2006). La structure moléculaire de macro-chaîne de méthyle peut être plus ou moins oxydée, aromatique ou non, et contenir de nombreux éléments et fonctions chimiques. La réactivité de ces particules est considérée comme grande et leurs propriétés optiques sont difficiles à caractériser. Ces particules secondaires possèdent généralement des diamètres de l'ordre quelques dizaines de nanomètres à quelques micromètres.

Les mélanges de carbone élémentaire et de carbone organique contribuent de façon minoritaire devant les particules soufrées, de l'ordre de 1 % en masse en basse stratosphère (Schwarz et al., 2008) et moins de 0.5% en nombre selon Sheridan et al. (1994). Cependant leurs absorbances dans le visible et l'ultra-violet (UV) sont considérables devant les particules soufrées et produisent des effets d'échauffement de la basse stratosphère (Gao et al., 2008). Ces effets d'échauffements sont locaux et globaux (Hendricks et al., 2004; Penner et al., 2006). Les simulations numériques montrent que les particules carbonées influencent la convection tropicale ce qui implique des changements de la dynamique globale (Hsieh et al., 2013). Ces particules possèdent également un potentiel de nucléation important qui conditionne la formation des nuages de particules glacées qui modifient à leur tour le bilan radiatif terrestre (Kärcher et al., 2007). Une initiative du groupement de recherche 3622 (GDR suie, Bescond et al., 2016) travaille notamment à caractériser les propriétés optiques des suies.

La répartition spatiale des particules carbonées est guidée par les sources de production. L'activité anthropique se trouvant majoritairement dans l'hémisphère nord, la concentration de particules carbonées est plus importante au Nord en toutes saisons (Figure 2.12). La concentration de particules carbonées en haute troposphère est en partie due au trafic aérien. La mousson indienne influence également la répartition des particules carbonées en troposphère et basse stratosphère au moins au niveau des régions d'émission (Bergman et al., 2013; Vernier et al., 2015a).

### 2.1.3 Matières météoritiques et cométaires

La matière interplanétaire accrétée par la Terre provient principalement des comètes et des météorites. Ces objets sont constitués de silicates, de fer, de nickel, de matière carbonée, de calcium, de sodium, de magnésium et d'autres métaux. La cinétique de l'entrée atmosphérique de ces objets ainsi que la masse du corps pénétrant l'atmosphère conditionnent la morphologie et la composition des particules stratosphériques d'origine spatiale.

Les *smoke particles* désignent les particules provenant de la recombinaison des ions issus de l'ablation thermique lors de l'entrée dans la mésosphère de poussières cosmiques (Bardeen et al., 2008; Murad, 2002; Murad et Roth, 2004; Rapp et al., 2007). Par nucléation, ces ions produisent des aérosols secondaires proches de la composition de l'olivine ( $\text{Mg}_{2x}\text{Fe}_{2-2x}\text{SiO}_4$ ,  $x=4$ ) (SPARC 2006). Le flux de matière cosmique conduisant à la formation des smoke particles est estimé être de l'ordre de 3 à 300 tonnes par jour (Plane, 2012). Ce flux en masse représente de 1 à 100 Gg par année ce qui est comparable au flux en masse de soufre pénétrant dans la stratosphère ( $\sim 100$  Gg de soufre par année). Les propriétés optiques sont largement absorbantes, leurs diamètres sont de l'ordre de la dizaine de nanomètres (Hervig et al., 2009).

En plus des poussières interplanétaires, des objets plus massifs pénètrent également l'atmosphère terrestre. Ces objets de grandes masses ne sont pas totalement vaporisés en mésosphère et peuvent atteindre la surface terrestre. Lors de leur passage en stratosphère, ils déposent de la matière assimilable à des particules primaires compte tenu de leur taille supérieure au micromètre. Le flux de ces météorites n'est pas prévisible et très erratique. Par exemple, la météorite Chelyabinsk, entrée dans notre atmosphère le 15 février 2013, avait une masse estimée à 11 000 tonnes (11 Gg) (Gorkavyi et al., 2013; Popova et al., 2013; Rieger et al., 2014), trois quart de sa masse initiale est déposée lors du passage dans notre atmosphère (Borovička et al., 2013). La contribution du flux des poussières cométaires et météoritiques est difficile à établir, la contribution ponctuelle des entrées de bolides tels que le Chelyabinsk est d'autant plus incertaine.

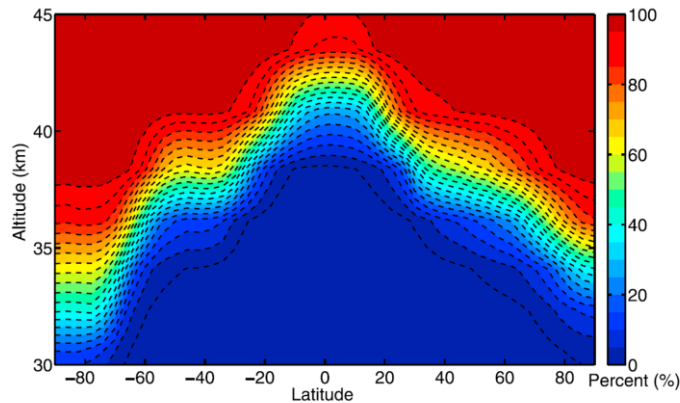


Figure 2.13 : Répartition zonale selon l'altitude du pourcentage de l'extinction due à la matière météoritique sur l'extinction stratosphérique totale (sulfate + matière météoritique). A partir de 37 kilomètres environ et aux latitudes moyennes, il est estimé que la moitié de l'extinction provient de la matière météoritique. (Neely et al., 2011)

Le pourcentage de l'extinction due à la matière météoritique croît avec l'altitude par rapport à la somme des sulfates et de la matière météoritique. A partir de 40 km aux tropiques et 35 km aux latitudes moyennes, la matière cométaire produit la majorité de l'extinction (Neely et al., 2011 Figure 2.13).

## 2.1.4 Autres sources de particules stratosphériques

### a. Les cendres volcaniques

De compositions complexes et de formes très irrégulières, les cendres volcaniques peuvent atteindre la stratosphère lors des éruptions volcaniques intenses (Kristiansen et al., 2015; Niemeier et al., 2009; Stothers, 2001). Ces particules sont riches en silice ( $\text{SiO}_2$ ) et d'une grande diversité de compositions représentatives du magma volcanique (Carn et al., 2016). L'analyse élémentaire par spectrométrie X d'une cendre du volcan islandais Eyjafjallajökull révèle la composition complexe d'une cendre volcanique (Prata et al., 2016). Leurs propriétés optiques sont difficiles à caractériser devant la grande diversité de leurs formes et de leurs compositions. Elles possèdent un pouvoir absorbant dans le spectre solaire. On considère qu'elles possèdent un faible pouvoir de réaction chimique notamment à cause de leur caractère hydrophobe peu de temps après leur production, cependant leur réactivité chimique évolue dans le temps avec leur vieillissement, ce qui rend les cendres volcaniques particulièrement difficiles à modéliser. (Kremser et al., 2016) considèrent que l'influence des cendres volcaniques sur le bilan radiatif est faible à cause de leur court temps de résidence dans l'atmosphère (Niemeier et al., 2009).

### b. Les particules biogéniques

La présence de particules biogéniques dans la stratosphère est controversée, notamment à cause de contaminations possibles lors des mesures par prélèvement. Bigg (2003) reporte que des particules biogéniques du type brochosome (particules émises par certains insectes) ont été prélevées en stratosphère (Figure 2.14).

Les propriétés optiques de ces particules sont très mal connues, leur impact sur le climat est considéré comme nul de par leur très faible concentration.

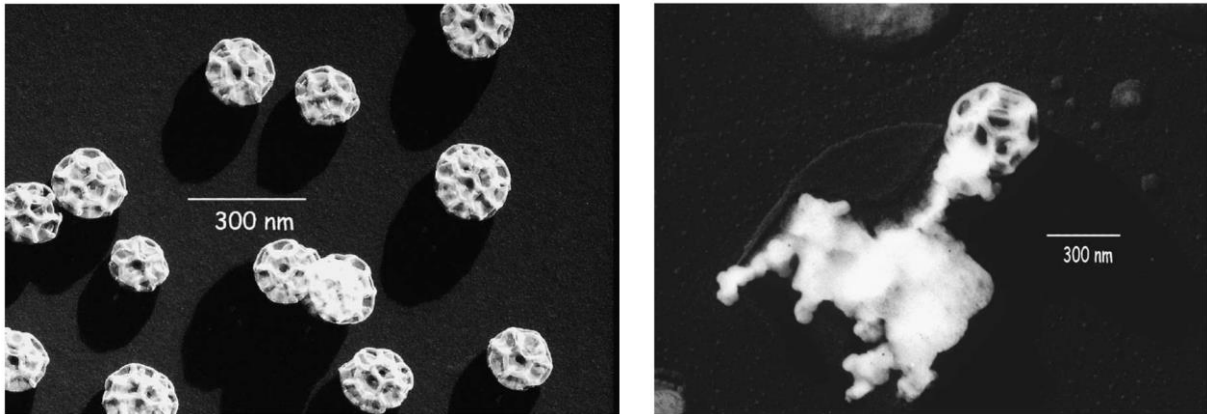


Figure 2.14 : A gauche, prélèvement réalisé en troposphère au niveau du sol, à droite prélèvement réalisé à 36,2 km d'altitude en mars 1969. Sur les deux mesures, apparaissent des particules biogéniques de type brochosome (Bigg, 2003)

c. Particules issues de la production plasma

Courty et Martinez (2015) réalisent des prélèvements au niveau du sol sur la neige fraîche après des entrées météoritiques importantes ou des périodes orageuses intenses. Ces auteurs mettent en évidence la présence au sol de particules polymérisées enrichies en métaux ainsi que des fibres métalliques. Il est possible de reproduire en laboratoire la structure de ces particules polymérisées par des méthodes impliquant des hautes énergies comme celles produites par l'onde de choc de l'entrée de météorites dans l'atmosphère (Courty et Martinez, 2015).

Les cendres sont transportées jusqu'en stratosphère lors d'évènements majeurs, leur temps de résidence est court en raison de leur vitesse de sédimentation (Kremser et al., 2016). L'existence des particules biogéniques et des particules produites par hautes énergies en stratosphère sont largement spéculatives et représentent a priori de sources très minoritaires sur le bilan climatique.

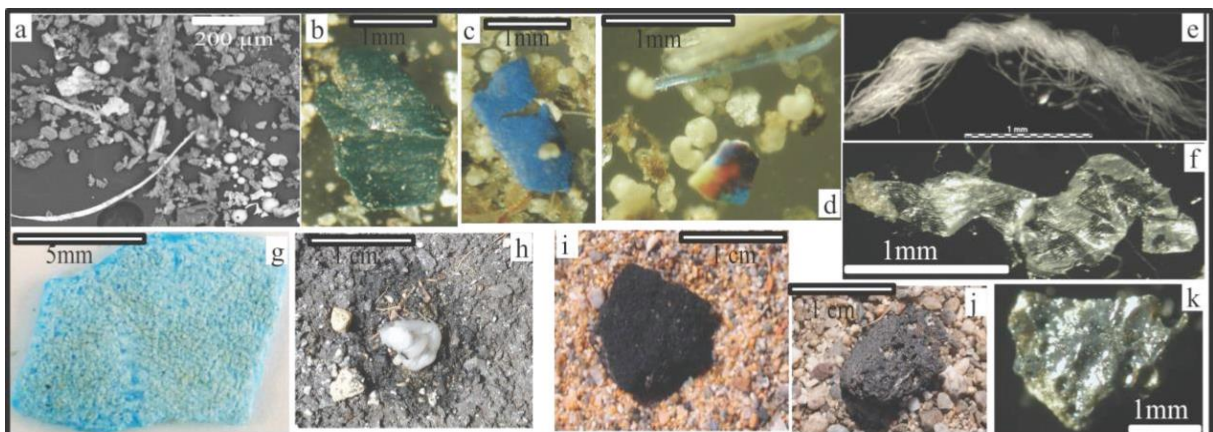


Figure 2.15 : Panel des particules récoltées après des évènements d'entrées météoritiques (Courty et Martinez 2015)

## 2.2 Dynamique atmosphérique et aérosols

La stratosphère est communément admise comme étant un milieu relativement calme et stratifié, où la distribution des espèces gazeuses et particulaires est plutôt homogène. La distribution spatiale et temporelle des aérosols est contrôlée par la dynamique stratosphérique agissant à différentes échelles. Nous présentons ci-après une vision simplifiée de la dynamique stratosphérique et sa conséquence sur la répartition des aérosols.

### 2.2.1 Circulation générale en stratosphère

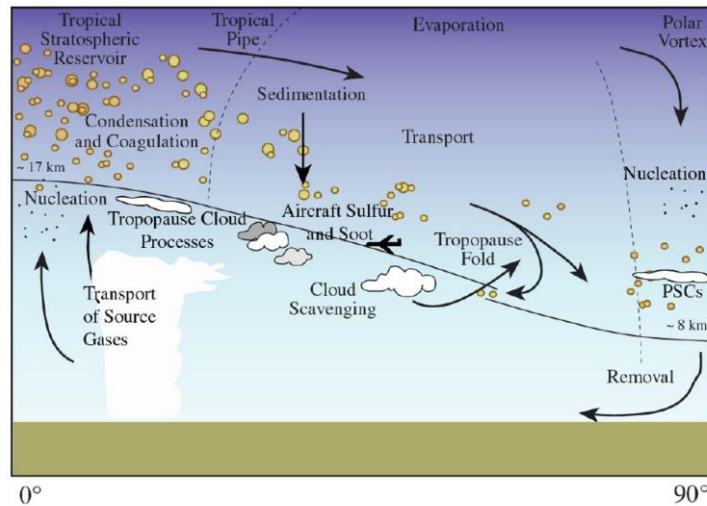


Figure 2.16 : Schématisation de la circulation de Brewer-Dobson et du cycle des particules stratosphériques (SPARC 2006)

La circulation stratosphérique se compose schématiquement d'une introduction d'air troposphérique au niveau des tropiques et d'un retour des masses d'air au niveau des pôles, c'est la circulation méridienne de Brewer-Dobson (flèches noires sur la Figure 2.16 ; Butchart, 2014; SPARC, 2006). Cette circulation lente est la résultante de l'interaction entre le vent moyen et l'activité ondulatoire. Une masse d'air troposphérique injectée à plus de 20 km aux tropiques met entre 5 et 10 ans pour atteindre les pôles (Holton et al., 1995; Plumb, 2002). L'âge de l'air est un des paramètres dynamiques permettant de rendre compte de ce transport résiduel (Diallo et al., 2012; Hall et al., 1999; Waugh et Hall, 2002). L'injection des masses d'air troposphériques à l'équateur conduit à produire le réservoir tropical, qui est une zone d'accumulation des aérosols soufrés vers 30 km au niveau de l'équateur (Vernier, 2010). Ce réservoir est plus ou moins confiné en fonction des vents zonaux et des barrières dynamiques.

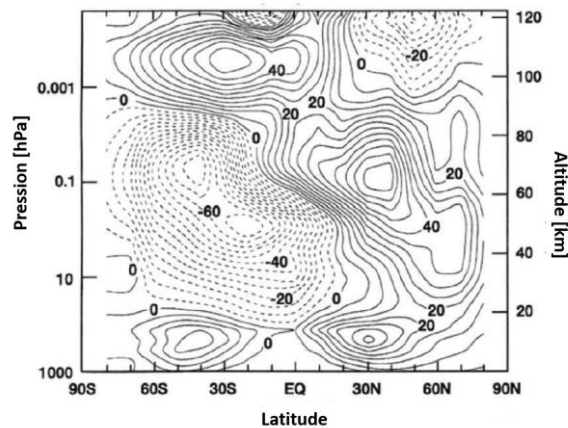


Figure 2.17 : Vitesses de vents zonaux moyens exprimés en  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  (Holton et al., 1995)

## 2 Les aérosols stratosphériques

Le transport zonal (suivant les latitudes) est plus rapide. Les masses d'air peuvent atteindre des vitesses de l'ordre de  $80 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  (près de  $300 \text{ km}\cdot\text{h}^{-1}$ ), ce qui leur permet de faire le tour du globe en 2 à 3 mois suivant la latitude (Figure 2.17) (Holton, 2004). Cette circulation zonale n'est pas constante dans le temps, elle peut être plus ou moins intense et son sens s'inverse avec des périodes différentes suivant les latitudes et l'altitude. L'oscillation quasi biennale (QBO) est certainement l'oscillation la plus connue. Elle se situe au niveau de l'équateur ( $-10^\circ\text{N}$  ;  $10^\circ\text{N}$ ) entre 15 et 35 km d'altitude, sa période est d'environ 28 à 29 mois (Holton, 2004; Randel et al., 2001; Watson, 2013) (Figure 2.18).

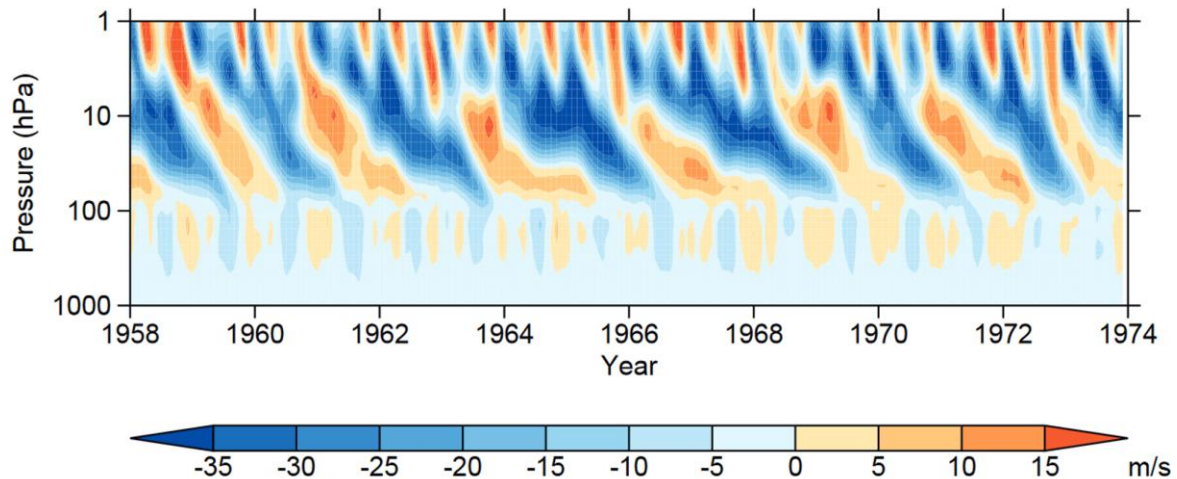


Figure 2.18 : Direction des vents zonaux tropicaux ( $-10^\circ\text{N}$  ;  $10^\circ\text{N}$ ) représentant l'oscillation quasi biennale (QBO) ; par convention le vent provenant de l'ouest est noté positif. (Watson 2013)

La QBO impacte la répartition des aérosols stratosphériques suivant la phase dans laquelle elle se trouve (Plumb et Bell, 1982). En phase d'est (vent zonaux de l'ouest vers l'est) les masses d'air sont confinées à l'équateur et des mouvements plutôt de subsidence (vers le bas) y sont constatés. En phase d'ouest, les aérosols ont tendance à être dispersés vers les pôles (Treppe et Hitchman, 1992).

Cependant, cette alternance quasi-biennale est conjuguée avec une autre oscillation possédant une période annuelle. Dans chaque hémisphère d'hiver se forme un vortex polaire. Ce vortex est une structure dynamique de plusieurs milliers de kilomètres, s'étendant de la basse stratosphère jusqu'en mésosphère. Elle résulte d'une diminution de l'énergie solaire au pôle (Waugh et Polvani, 2010). Le vortex est un tourbillon d'échelle planétaire, qui isole les masses d'air du reste de l'atmosphère et ce pour une période de 4 à 6 mois (Holton et al., 1995; Watson, 2013). Les vortex polaires ont été largement étudiés pour leur influence sur la couche d'ozone (Manney et al., 2015; Waugh et Polvani, 2010). Ces études révèlent que l'ozone est détruit par des processus chimiques hétérogènes reposant sur la présence de particules liquides et solides, les PSC (*Polar stratospheric cloud*) formés à basse température (Rivière et al., 2000). Le vortex a également une influence aux moyennes latitudes car entre le réservoir tropical et le vortex se forme la zone de surf (*Surf zone*, Polvani et al., 1995).

La zone de surf s'établit entre le réservoir tropical et le vortex polaire dans l'hémisphère d'hiver (Figure 2.19). Cette zone est dynamiquement instable et reçoit des masses d'air des tropiques et du vortex polaire sous la forme de filaments également appelés intrusions polaires ou tropicales. Ces intrusions sont l'effet de la déformation des barrières dynamiques sous l'influence de la rotation de la Terre (ondes de Rossby). Afin de repérer ces phénomènes, il est courant d'utiliser un indicateur dynamique permettant de suivre les masses d'air, cet indicateur est la vorticité potentielle (PV) (Holton, 2004). Cet indicateur permet de représenter le réservoir tropical, la zone de surf et le vortex polaire limités par de forts gradients de PV. La Figure 2.20 montre comment la zone blanche (zone de surf) est peu à peu enrichie de filaments polaires et tropicaux. Curtius et al. (2005) montrent que le vortex en moyenne stratosphère est enrichi en particules réfractaires (d'origine météoritique et cométaire) provenant de la mésosphère. Le vortex est un réservoir de particules réfractaires qui est relativement confiné lorsqu'il est établi, et libère potentiellement ces particules lors de sa destruction au printemps.

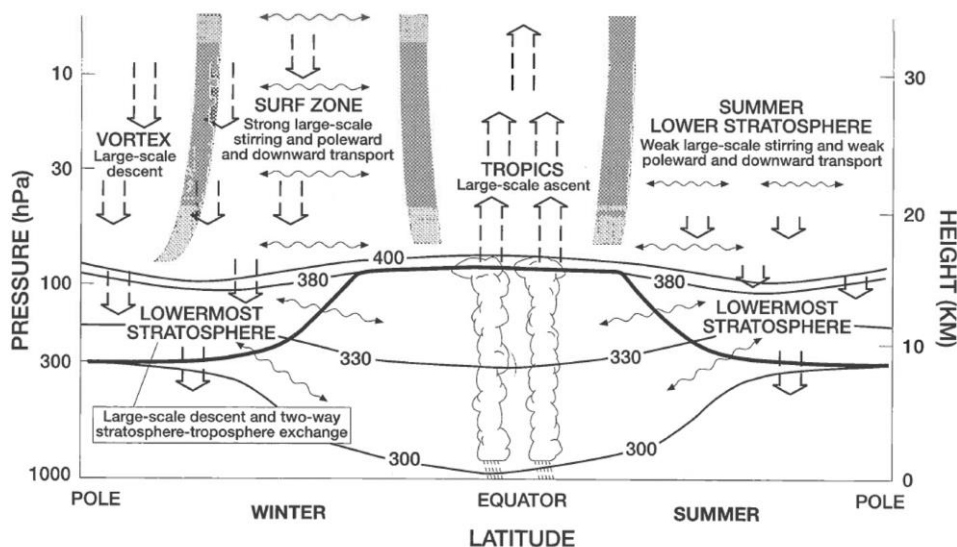


Figure 2.19 : Représentation du transport méridien dans les hémisphères d'hiver et d'été (Holton 2004). Schématisation des positions du réservoir tropical, de la zone de surf, du vortex polaire et de l'hémisphère d'été. Les flèches larges et ouvertes représentent le transport à grande échelle, les flèches ondulées représentent le transport guidé par les ondes de différentes natures. Les barres grises verticales au centre représentent les barrières tropicales, la barre verticale grise à gauche représente la barrière dynamique du vortex polaire

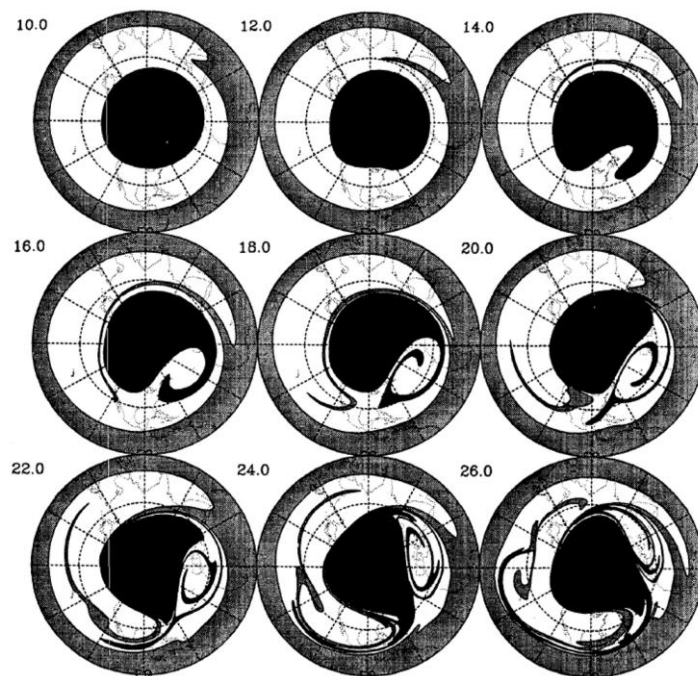


Figure 2.20 : Simulation de la déformation de la zone de surf (zone blanche), influencée par le réservoir tropical (zone grise) et le vortex polaire (zone noire) (Polvani et al., 1995). Les chiffres indiquent le nombre de jours après l'initialisation du modèle

### 2.2.2 Dynamique méso-échelle et petite échelle

En plus de la circulation grande échelle, il existe des phénomènes de plus faibles envergures influençant la dynamique et la répartition des aérosols.

Certains phénomènes sont périodiques. L'anticyclone associé à la mousson asiatique est une structure dans l'UTLS (*Upper Troposphere and Lower Stratosphere*) de grande échelle permettant l'injection d'air troposphérique dans la stratosphère. Cette structure est active environ du mois de mai à septembre et localisée en Asie du sud-est (Barret et al., 2016; Bergman et al., 2013; Vernier et al., 2015a). Les feux de biomasse et les mouvements de pyroconvection associés au dégagement de chaleur produit par les combustions peuvent également introduire des aérosols en stratosphère (Cammass et al., 2009; Fromm et al., 2006; Hudson et al., 2004). Ces phénomènes sont plutôt saisonniers et résultent soit de l'embrasement naturel des forêts lors des saisons sèches soit de pratiques agricoles.

D'autres phénomènes dynamiques ne possèdent pas de périodicité clairement établie mais résultent de phénomènes non-linéaires dont l'influence sur les aérosols est encore peu décrite. Une grande partie de ces phénomènes est due à l'activité ondulatoire de l'atmosphère qui transporte de l'énergie et conduit à déformer les barrières dynamiques comme la tropopause (phénomène d'e-folding, Holton 2004 ; Hofmann et al., 2016). Ils peuvent également introduire un mélange sous forme de turbulences ou tourbillons (*eddies*) lorsque l'onde déferle (de la même manière qu'une vague fait de l'écume sur la plage). Les ondes de gravité participent à moduler la dynamique atmosphérique (Ern, 2004; Fritts et Alexander, 2003; Geller et al., 2013). L'influence des ondes de gravité sur la répartition des particules dans l'atmosphère n'est pas encore bien établie, notamment sur leur capacité à modifier les cinétiques de nucléation (Nilsson et al., 2000).

### 2.2.3 Dynamique propre des particules

Au-delà de la dynamique atmosphérique, les particules possèdent leur propre dynamique (phorèse) comme par exemple la sédimentation des particules, mouvement vertical vers le bas des particules sous l'action de la pesanteur (Renoux et Boulaud, 1998; Seinfeld et Pandis, 2006). Ces auteurs décrivent également d'autres phorèses : la diffusiphorèse est le déplacement de particules sous l'action de leur gradient de concentration, vers les plus faibles concentrations. La thermophorèse est le déplacement des particules vers les zones plus froides. Il existe également la photophorèse, déplacement d'une particule dans le champ d'un rayonnement électromagnétique. Rohatschek (1996) décrit un certain type de photophorèse appelé gravito-photophorèse comme étant le déplacement théorique des particules absorbantes sous l'action du rayonnement solaire. Cet auteur montre que cette phorèse particulière conduit les particules absorbantes à avoir leur propre dynamique et à s'élever jusqu'à certaines couches d'accumulations vers 30 km dans l'atmosphère en plus de subir toutes les autres dynamiques de plus ou moins grandes échelles. L'existence de ces couches d'accumulations est théorique et n'a pas été confirmée par l'observation.

Comprendre comment la dynamique stratosphérique module la répartition des aérosols est complexe puisque les processus microphysiques tels que la nucléation (English et al., 2011; Kirkby et al., 2016; Sander et Friedl, 2011; Sheng et al., 2015; Steele et Hamill, 1981), la coagulation et la condensation (Friberg et al., 2014; Gettelman et al., 2011; Lee et al., 2011; Murphy et al., 2014) qui font évoluer les caractéristiques physiques des aérosols se produisent en même temps que la dynamique les transporte.

## 2.3 Interactions des aérosols avec la physico-chimie de l'atmosphère

### 2.3.1 Implication des aérosols sur le climat

Les particules, à l'instar des gaz à effet de serre, influencent le climat. Cependant, leur rôle est ambivalent. Dans certaines situations les particules agissent en renforçant l'effet de serre et dans d'autres situations elles agissent en diminuant la quantité d'énergie entrant dans l'atmosphère. Les particules possèdent 3 types d'effets sur le rayonnement : l'effet direct, l'effet indirect et l'effet semi direct.

L'effet direct est lié à l'interaction entre des particules et le rayonnement solaire et/ou tellurique (rayonnement terrestre). La quantité d'énergie lumineuse réfléchie par un aérosol par rapport à la quantité

d'énergie lumineuse incidente est définie comme étant l'albédo. Les aérosols atmosphériques ont la capacité de moduler la quantité de rayonnement solaire atteignant la surface planétaire, mais également l'énergie tellurique émise par la planète. Les aérosols diminuent le forçage radiatif en agissant comme des parasols renvoyant l'énergie solaire vers l'espace et limitant ainsi la quantité d'énergie atteignant le sol ce qui tend à diminuer la température globale au sol. Parallèlement, les aérosols augmentent le forçage radiatif en envoyant l'énergie tellurique vers le sol et tendent à augmenter la température globale au sol. Les aérosols possèdent donc un rôle ambivalent sur le climat suivant leur composition et leur distribution verticale dans l'atmosphère.

Les aérosols impactent également le climat de façon indirecte par leur rôle sur la formation des nuages. Deux effets sont distingués, l'effet Twomey et l'effet Albrecht (Kaufman, 2006; Penner et al., 2006; Ramanathan, 2001). Ces deux effets sont la conséquence de l'augmentation du nombre de noyaux de nucléation. Typiquement, plus il y a de particules de petites tailles, plus le nuage a une forte capacité à interagir avec le rayonnement par l'augmentation de son albédo (effet Twomey) et par l'allongement de son temps de vie (effet Albrecht).

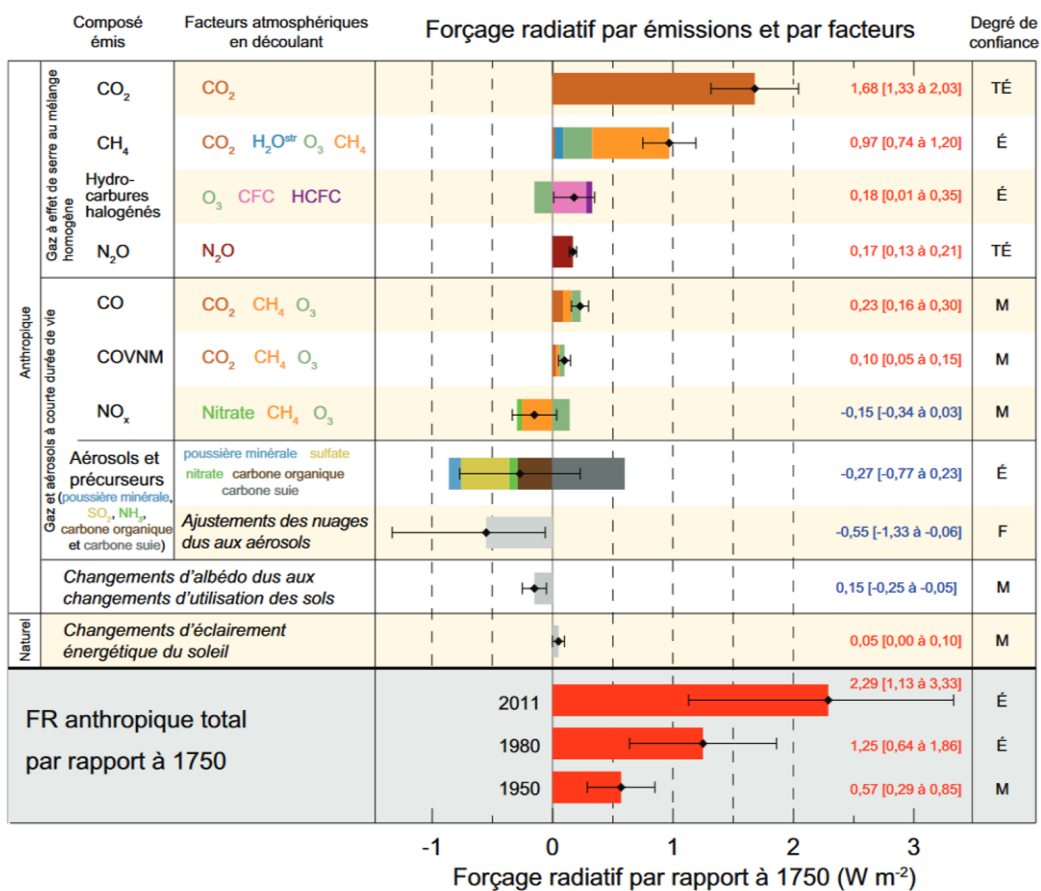


Figure 2.21 : Estimations du forçage radiatif en 2011 par rapport à 1950 exprimé en W.m<sup>2</sup> pour les différents contributeurs gazeux et particulaires. Le degré de confiance associé à chaque résultat est qualifié de TE (très élevé) à F (faible) sur la colonne de droite (GIEC, 2013)

Il existe encore de nombreuses incertitudes sur l'implication des aérosols sur le climat. Le Groupe d'Experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat publie en 2013 (GIEC 2013) le forçage radiatif pour les principaux gaz à effet de serre et aérosols (Figure 2.21). Les modèles climatiques intègrent de plus en plus la contribution des aérosols à mesure que notre connaissance de leur effet grandit. Le GIEC publie le degré de confiance associé à chaque composé. Le degré de confiance sur le CO<sub>2</sub> est noté TE (très élevé). Le degré de confiance associé au forçage radiatif des aérosols hors influence sur les nuages est estimé comme élevé. Celui lié aux interactions avec les nuages est cependant estimé encore faible. Les aérosols considérés par le GIEC sont globalement troposphériques (poussière minérale, sulfate, nitrate, carbone organique,



carbone suie). La distribution spatiale et temporelle des aérosols autres que le sulfate pur dans la basse stratosphère est relativement méconnue pour le moment et n'est pas intégrée dans les rapports de ce groupe. Leurs effets sur le forçage radiatif est attendu comme élevé individuellement (indice de réfraction possédant une particule imaginaire traduisant le caractère absorbant) mais leur concentration étant faible, il est supposé que leur implication sur le climat soit limité bien que cela ne soit pas pour le moment démontré. Concernant la stratosphère, seuls les aérosols sulfatés sont pris en compte dans les rapports du GIEC (GIEC, 2013). Les nuages sont des contributeurs importants au forçage radiatif, cependant leur répartition est complexe et les différents types de nuage selon leur altitude possèdent des effets différemment sur le climat.

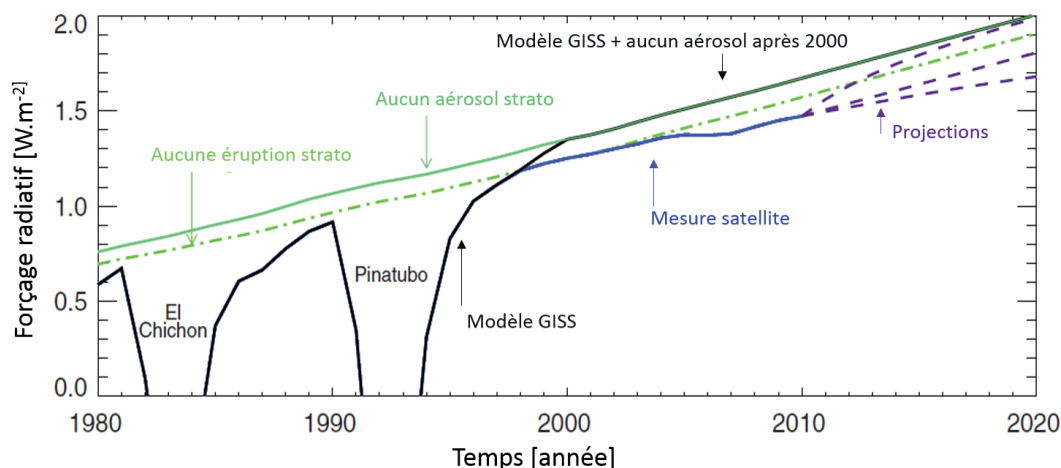


Figure 2.22 : Modélisation de la puissance lumineuse surfacique de 1980 à 2020 pour différents scénarii considérant aucun aérosol stratosphérique (courbe verte turquoise), seulement les aérosols stratosphériques hors influence des éruptions majeures (courbe verte claire) et tous les aérosols stratosphériques (courbe noire). La courbe bleue représente la puissance surfacique transmise au sol déduite de mesure satellite et les courbes violettes en trait discontinu différents scénarios d'évolution (adapté d'après Solomon et al. 2011)

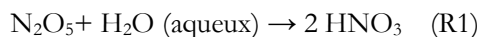
Les dernières éruptions majeures, El Chichon et le Pinatubo respectivement en 1982 et 1991 ont largement perturbé la quantité d'énergie solaire transmise au sol (Figure 2.22) et influençant le forçage radiatif (Solomon et al., 2011). Ces éruptions ont réduit la température globale au sol de plus de  $0,4^{\circ}C$  au plus fort des événements et produit un retard dans le réchauffement global de  $0,07^{\circ}C$  (Solomon et al., 2011). Cependant, si les éruptions majeures ont un impact sur le climat, les éruptions plus modérées mais plus fréquentes peuvent également l'influencer comme le montre la Figure 2.22 à partir des années 2005. Dans cette période, la courbe représentant les observations satellites (courbe bleue) n'est plus confondue avec le scénario « aucune éruption stratosphérique majeure » (courbe verte claire). Solomon et al. (2011) expliquent que l'influence d'éruptions plus modérées aurait contribué à réduire le réchauffement global de  $0,07^{\circ}C$ . L'effet des particules sur le forçage radiatif lié à la pollution anthropique à cette tendance n'est pas démontré.

Notre connaissance des effets radiatifs des aérosols pris indépendamment est relativement robuste, cependant il est également nécessaire de prendre en compte la répartition des concentrations de ces composés dans le temps et l'espace. En stratosphère, les gouttelettes d'acide sulfurique peuvent comporter des inclusions (Bigg, 2012). La formation de ces particules constituées de deux phases, comportant un cœur solide et une enveloppe sont encore mal connues. Bigg (2012) propose que la concentration de particules météoritiques contrôle la concentration de particules soufrées en basse stratosphère en tant que noyau de nucléation. Cette hypothèse comporte des implications climatiques importantes, car le forçage radiatif est actuellement calculé en ne tenant compte que d'indice de réfraction purement diffusant et non absorbant. Nous notons que le GIEC considère en 2013 l'implication des principaux gaz à effet de serre en stratosphère ( $O_3$ ,  $CO_2$ ,  $H_2O$ ,  $CH_4$ ), ainsi que l'épaisseur optique des aérosols volcaniques lors des éruptions importantes. Cependant, une partie importante des aérosols stratosphériques hors éruption volcanique ne sont pas encore pris en compte dans les modèles climatiques. Réduire les niveaux d'incertitudes sur l'implication des aérosols stratosphériques sur le climat est possible en augmentant notre connaissance de ces aérosols et de leur variabilité (GIEC, 2013).

### 2.3.2 Implication des aérosols sur la chimie stratosphérique

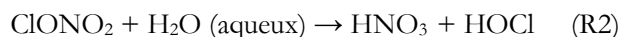
Dans la stratosphère, les réactions chimiques hétérogènes sur les aérosols sulfatés sont au cœur des processus répartissant les composés chimiques azotés et halogénés qui gouvernent le bilan de l'ozone. Deux réactions principales entrent en jeu dans ces mécanismes :

D'abord, l'hydrolyse du pentoxyde d'azote  $N_2O_5$ , réservoir d'oxydes d'azote ( $NO_x = NO + NO_2$ ), permet de transformer de manière indirecte des  $NO_x$  en un réservoir plus stable, l'acide nitrique  $HNO_3$ .

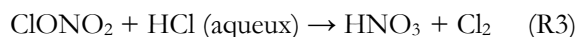


R1 tend donc à diminuer les quantités de  $NO_x$  et à réduire l'efficacité de destruction d'ozone par les cycles catalytiques impliquant ces composés, particulièrement efficaces dans la stratosphère moyenne (au-dessus du niveau d'altitude  $\sim 30$  hPa). R1 étant plutôt insensible à la température, elle joue un rôle à l'échelle globale. Sa prise en compte a permis d'améliorer fortement les comparaisons entre modèles et mesures ((Solomon, 1999) ; et références incluses).

Deux autres réactions hétérogènes sont d'une importance capitale dans les processus de destruction de l'ozone stratosphérique. Il s'agit d'abord de l'hydrolyse de l'un des deux réservoirs de composés chlorés dans la stratosphère, à savoir  $ClONO_2$  (l'autre étant  $HCl$ ). Elle se décrit ainsi :



Il y a aussi la réaction :



Elles produisent des quantités supplémentaires d'acide nitrique sur les aérosols sulfatés. Cependant R2 et R3 sont hautement dépendantes de la température et ne sont efficaces qu'en dessous de  $\sim 215$  K, conditions que l'on rencontre dans la stratosphère polaire. Elles conduisent alors à la diminution de  $NO_x$  et à la formation de composés chlorés actifs (tel  $ClO$ ) sur la destruction d'ozone quand les quantités de  $HOCl$  et  $Cl_2$  accumulées sont photo-dissociées après la nuit polaire. Au-dessus de ce seuil de température, R1 domine très largement R2 et R3 au niveau de la répartition des composés azotés. On note aussi que des travaux montrent que l'hydrolyse du réservoir de brome  $BrONO_2$  (formant  $HNO_3$  et  $HOBr$ ) joue un rôle significatif dans la basse stratosphère.

L'augmentation drastique du contenu en aérosols sulfatés après les éruptions volcaniques a des conséquences différentes selon l'altitude. Au-dessus de  $\sim 30$  hPa où la perte d'ozone est largement dominée par les  $NO_x$ , la présence d'aérosols volcaniques diminue les  $NO_x$  et a donc tendance à augmenter l'ozone. Par contre, dans la basse stratosphère se produit l'effet inverse. Les cycles catalytiques de destruction d'ozone impliquant les espèces actives halogénées (chlorées  $ClO_x$  et bromées  $BrO_x$ ) et hydrogénées ( $HO_x$ ) y dominent. Leur abondance qui dépend des quantités de  $NO_x$  en présence augmente, tout particulièrement pour les  $ClO_x$  dont la conversion en réservoir  $ClONO_2$  (via la réaction en présence d'air :  $ClO + NO_2 \rightarrow ClONO_2$ ) se trouve fortement ralentie du fait de la diminution des  $NO_x$  par la réaction R1.

R1 est limitée en terme d'impact direct sur l'ozone car elle finit par saturer à partir d'une certaine quantité d'aérosols en présence (ou plus précisément de surface de réaction disponible qui est directement liée au nombre de particules et à leur taille). Au final, mis à part les processus liés à la formation des nuages stratosphériques polaires en hiver, seules les réactions R2 et R3 peuvent conduire à des pertes d'ozone importantes par les aérosols volcaniques quand les températures sont basses ((Solomon, 1999) ; et références incluses), d'où la nécessité de bien connaître les propriétés physiques des aérosols volcaniques au cours du temps et en fonction de la latitude (concentration, distributions en taille).

Les interactions entre les particules et les gaz sont complexes et très nombreuses (Figure 2.23). L'enveloppe d'une particule liquide est le siège de différents processus d'adsorption, absorption/désorption, solvation/désolvation, tandis que le milieu interne en solution dans lequel les molécules transigent est également réactif. Ces réactions chimiques aux interfaces gaz/liquide sont difficiles à appréhender en milieu naturel, les différentes réactions et devenir des espèces chimiques issues de ces réactions hétérogènes sont des thèmes de recherche en soi. Cette vision concernant les particules liquides peut être étendue aux particules solides et aux particules contenant des enveloppes liquides autour d'un cœur solide ou bien aux particules hydratées partiellement. Les particules solides possèdent des formes plus complexes et un rapport surface sur volume plus important de par leur géométrie permettant une plus grande porosité, augmentant de fait leur potentiel de réaction (Seinfeld et Pandis, 2006). La diversité des particules ainsi que leur évolution physique complexifient encore la science des réactions chimiques hétérogènes et l'évolution des propriétés optiques des particules.

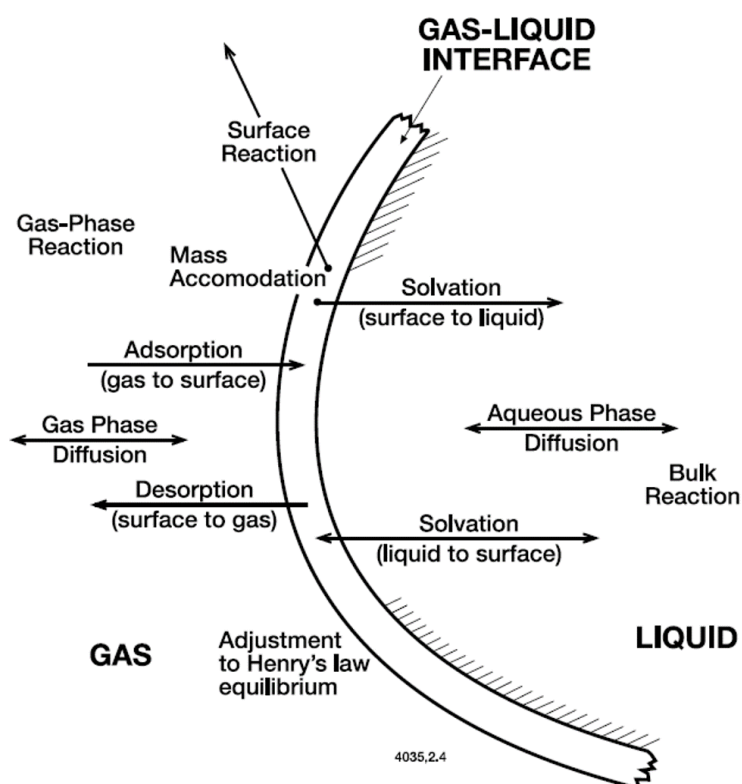


Figure 2.23 : Représentation des réactions hétérogènes à l'interface entre une particule liquide et son gaz porteur (Brasseur et Solomon 2005)

## 2.4 Les méthodes d'observation des aérosols stratosphériques

Les aérosols de la troposphère libre, de la stratosphère et de la mésosphère sont caractérisés à l'aide de différents dispositifs techniques se trouvant au sol, à bord d'avions, de ballons ou de satellites. Deux familles de dispositifs complémentaires sont utilisées pour rendre compte de la composition ainsi que de la distribution temporelle et spatiale des aérosols : les mesures à distances et les mesures in situ. Ces méthodes possèdent leurs avantages et leurs inconvénients, leurs propres représentativité spatiale, temporelle et résolution verticale.

Nous présentons ci-après une liste des principales techniques de mesure des aérosols stratosphériques aux travers des différents instruments actuellement déployés.

### 2.4.1 Les mesures à bord de satellites

Les instruments dédiés à l'observation des aérosols de la haute atmosphère à bord de satellites peuvent être discriminés en trois grandes catégories : mesure au limbe, mesure par occultation, et mesure lidar.

#### a. Mesure au limbe

La première famille regroupe les instruments qui réalisent une mesure de la quantité de lumière diffusée par l'atmosphère dans l'infrarouge (IR), le visible ou l'ultra-violet (UV) par une visée quasi tangente à la surface terrestre aux travers des couches atmosphériques. Ce type de mesure est appelé « mesure au limbe » (Figure 2.24). La difficulté est double pour ces instruments, afin de rendre compte de la quantité de particules selon l'altitude dans l'atmosphère, il faut à la fois retirer la contribution de la diffusion des molécules puis inverser le signal pour obtenir un profil vertical. Des hypothèses sur la distribution verticale des particules stratosphériques sont également nécessaires pour contraindre le traitement des données. Cette technique permet de décrire la basse stratosphère (Bourassa et al., 2012) après avoir retiré la contribution des nuages en haute troposphère (Chen et al., 2016). En moyenne stratosphère l'incertitude croît rapidement avec l'altitude atteignant plusieurs dizaines de pourcents de l'extinction (Bourassa et al., 2007).

Les techniques instrumentales et les méthodes algorithmiques diffèrent selon les instruments. Nous décrivons sommairement les stratégies mises en place pour les instruments OSIRIS sur Odin et OMPS sur SNPP.

- OSIRIS

L'instrument OSIRIS (*Optical Spectrograph and InfraRed Imager System*) embarqué à bord du satellite ODIN orbitant à 550 km d'altitude est actif depuis 2001 (Llewellyn et al., 2004; Murtagh et al., 2002). Cet instrument mesure l'irradiance spectrale atmosphérique depuis le proche UV jusqu'au proche IR (274 nm à 810 nm avec une résolution d'environ 1 nm), l'irradiance étant la puissance lumineuse diffusée par l'atmosphère par unité de surface. Le système scanne l'atmosphère par rotation verticale de l'angle de l'observation depuis un angle tangent à l'atmosphère.

L'algorithme permettant d'extraire les données relatives aux particules stratosphériques mesurées par OSIRIS a été développé par Bourassa et al. (2007) (La version des données OSIRIS utilisée dans cette étude est L2-Aerosol-Limb V5\_07). Pour chaque angle de visée, l'algorithme utilise le rapport de diffusion entre deux longueurs d'ondes (750 et 470 nm) normalisé par le rapport de diffusion mesuré à l'angle tangent à l'atmosphère correspondant à 35 km d'altitude à partir d'où il est supposé ne plus avoir de diffusion produite par les particules. Cet algorithme utilise également les sorties d'un modèle permettant de simuler la diffusion lumineuse moléculaire (modèle SASKATRAN, (A.E. Bourassa et al., 2008). Ce modèle permet de corriger les différents modes de diffusions (diffusion simple, diffusion de la surface terrestre, diffusion multiple. Figure 2.24). Il est nécessaire également de contraindre la distribution en taille des particules ainsi que leur propriété optique, la distribution est fixe et monomodale de rayon moyen 80 nm et de dispersion 1,6 nm et d'indice de réfraction purement diffusant représentatif de gouttelettes d'acide sulfurique ( $1,45 + 0i$ ). Cette hypothèse sur la taille et la forme des particules est déduite des mesures in situ produites par Deshler et al. (2003) lors de vols sous ballons par des techniques optiques. OSIRIS n'utilise pas de profil d'extinction a priori. OSIRIS fournit un profil tous les 500 km environ intégrant environ 200 km dans la direction de déplacement quasi-longitudinal (effet de la trajectoire orbitale quasi-polaire) en supposant l'homogénéité de la distribution des particules le long de celle ligne de visée. Cette méthodologie appliquée pour le traitement des données OSIRIS implique des hypothèses fortes sur la répartition spatiale et temporelle des aérosols. L'inversion verticale implique un lissage des profils verticaux, comme le précisent Bourassa et al. (2012) et l'hypothèse de l'absence de diffusion lumineuse par des particules à partir de 35 km. Enfin, chaque profil est donné pour une résolution de 2 km verticalement et pour une position à  $\pm 20$  km horizontalement, représentative de l'extinction moyenne sur 200 km le long de la ligne de visée. Les incertitudes sur les données OSIRIS combinant les erreurs du détecteur, du pointage, de l'albédo de surface et sur les conditions de pression et de température de l'atmosphère sont annoncées être de 10 % à 15 km, 50 % vers 30 km, et supérieure à 50 % au-delà (Bourassa et al., 2007). La résolution verticale des données est de 1 km, cependant celles-ci sont à considérer comme représentatives de 2 km. La diffusion lumineuse par l'atmosphère étant

## 2 Les aérosols stratosphériques

moins importante dans l'hémisphère d'hiver, la couverture d'OSIRIS est réduite selon les latitudes ; typiquement aucune donnée n'est disponible de novembre à mars au-dessus de la France à partir de 2013.

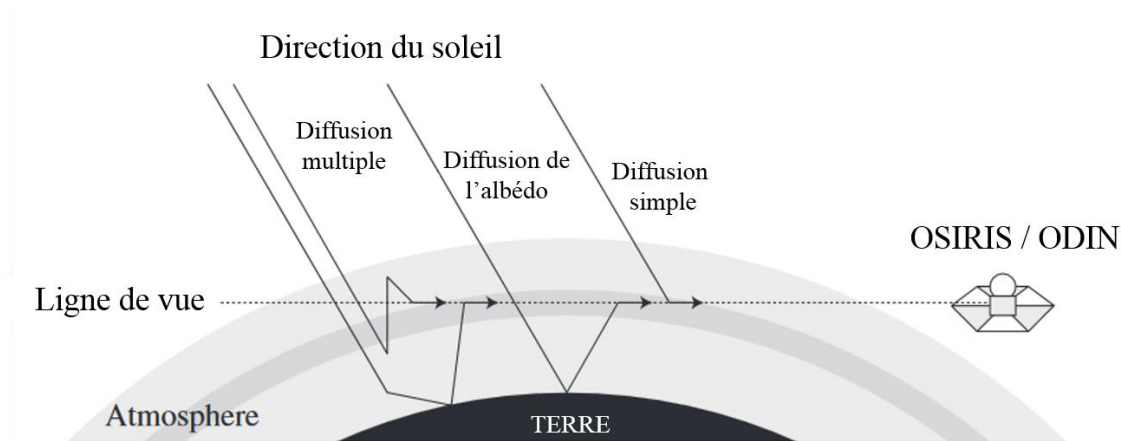


Figure 2.24 : Schématisation de la technique de diffusion lumineuse de l'atmosphère par la mesure au limbe. OSIRIS mesure la contribution de la diffusion simple de l'atmosphère ainsi que la diffusion multiple dans les couches de l'atmosphère et de la diffusion de la surface (Albédo de surface). (Adaptée à partir de Bourassa et al., 2008)

- OMPS

L'instrument OMPS-LP (*Ozone Mapping and Profiler Suite – Limb profiler*) embarqué sur le satellite Suomi NPP, observe l'irradiance terrestre par 3 fentes verticales depuis 2012 (Figure 2.25). Chaque fente fonctionne schématiquement comme la mesure d'OSIRIS à quelques différences près. D'une part le système d'acquisition d'OMPS ne scanne pas comme celui d'OSIRIS mais enregistre simultanément toutes les altitudes ce qui réduit l'incertitude sur la représentativité spatiale de la mesure (Jaross et al., 2014; Seftor et al., 2014; Xu et al., 2014). La bande spectrale mesurée par OMPS s'étend de 290 à 1000 nm avec une résolution entre 1 et 10 nm. Le champ de vue des capteurs et le temps de pose combinés au déplacement du satellite permettent de réaliser une mesure tous les 125 km environ le long de la direction de déplacement du satellite (Chen et al., 2016 ; Figure 2.25) avec une résolution verticale de 1 km de 0 à 80 km d'altitude, chaque fente réalisant la même mesure représentative d'une zone séparée d'environ 250 km au point tangent de l'atmosphère. Dans cette étude nous utilisons les données OMPS de version AER675 V0.5 décrite par DeLand et al. (2016). Dans ces données les nuages sont retirés selon la méthode décrite par Chen et al. (2016).

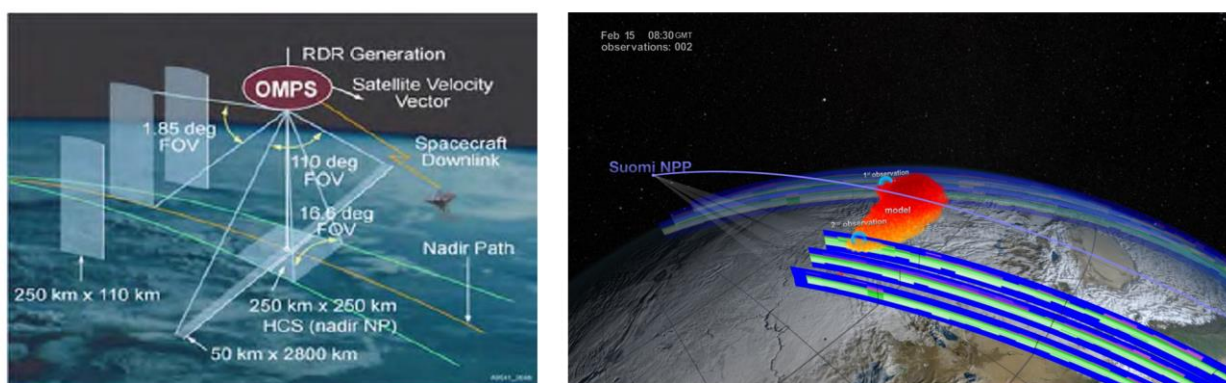


Figure 2.25 : A gauche représentation schématique des différents champs de vision (FOV) des instruments à bord d'OMPS. Nous utilisons dans cette étude l'une des trois fentes dont le volume de mesure est représenté par les 3 rectangles à l'arrière du satellite (Xu et al. 2014). A droite représentation des traces du passage d'OMPS lors de la chute du bolide Chelyabinsk (Gorkavyi et al., 2013) image NASA

L'algorithme permettant d'extraire l'information relative à l'extinction des aérosols utilise l'irradiance à 675 nm. La méthode appliquée consiste à extraire la diffusion des aérosols en supposant la diffusion moléculaire connue. La diffusion moléculaire est contrainte par la mesure de la diffusion représentative de l'altitude 45,5 km où il est supposé que la contribution de la diffusion par les particules est nulle (DeLand et al., 2016). Pour produire les profils verticaux, la méthode utilise une distribution en taille des particules a priori de forme log-normale centrée sur 60 nm et d'écart type 1.73 nm en rayon. Les particules sont supposées être des gouttelettes de sulfate d'indice de réfraction de pure diffusion  $1,448 + 0i$ . Les paramètres de pression et de température utilisés par l'algorithme sont donnés par le modèle d'assimilation GMAO (NASA GSFC *Global Modeling Assimilation Office*) et les données d'irradiance solaire par ATLAS-3 SUSIM. L'algorithme utilise également une forme de profil a priori construite à partir de la moyenne zonale des données de SAGE II (*Stratospheric Aerosol and Gas Measurement*) entre 20°S et 20°N pour la période 1985 à 2005 en excluant les phases influencées par l'éruption du Pinatubo (mai 1991 à août 1996). Ce profil a priori est utilisé comme première estimation, l'algorithme d'inversion fonctionnant par itération (optimisation par relaxation non linéaire (Chahine, 1968; Chu, 1985)). Le choix de cette période est selon nous discutable car celle-ci est perturbée par deux éruptions de volcans tropicaux, le Nevado Del Ruiz et le Kelud, chacun de VEI4 (Indice d'Explosivité Volcanique traduisant la puissance des éruptions volcaniques). Ces éruptions ont respectivement multiplié l'épaisseur optique entre 20 et 30 km d'un facteur 10 et 2 pendant plusieurs mois. De plus, appliquer un profil a priori tropical aux autres latitudes, c'est considérer que la même distribution verticale des particules diffusantes est attendue à toutes les latitudes, ce qui ne se justifie pas dans toutes les situations (SPARC, 2006; Vernier et al., 2009). DeLand et al. (2016) indiquent que l'accord entre les données d'extinction d'OSIRIS et d'OMPS est de  $\pm 20\%$  en utilisant un coefficient d'Ångström pour transformer les données 750 nm OSIRIS à 625 nm. La validation des données aérosol d'OMPS n'est pas encore publiée à ce jour. Les extinctions inférieures à  $3 \cdot 10^{-6} \text{ km}^{-1}$  ne doivent pas être considérées (Jaross et al., 2014).

#### b. Mesures par lidar

Un lidar est schématiquement constitué d'un télescope et d'un laser. Le laser émet des flashes lumineux tandis que le télescope mesure différents paramètres de la lumière laser rétrodiffusée (à 180°) par les différents constituants de l'atmosphère. Cette technique possède certains avantages. Il est possible de connaître l'altitude des différentes couches atmosphériques en mesurant la durée que met le signal lumineux à revenir au détecteur, puisque la lumière voyage à une vitesse constante.

Le lidar spatial CALIOP (*Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal polarization*) à bord du satellite CALIPSO (*Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observations*) a été lancé en 2006 (Winker et al., 2010, 2013). CALIOP émet deux faisceaux lumineux en direction de la Terre à 532 et 1064 nm cadencés à 25 Hz d'énergie 11 mJ. Il mesure le rapport du signal rétrodiffusé de ces deux longueurs d'onde et la dépolarisation du signal à 532 nm (Figure 2.26) (la polarisation étant définie comme l'orientation privilégiée de l'oscillation d'une onde électromagnétique). La résolution spatiale de CALIOP dépend de l'altitude. Du sol à 8 km la résolution est maximale, de l'ordre de 300 m horizontalement et 30 m verticalement. De 8 à 20 km la résolution est de 1 km horizontalement et 60 m verticalement. En stratosphère au-dessus de 20 km, la résolution horizontale est d'environ 5 km et 300 m verticalement. Cependant, selon Jean-Paul Vernier (Langley, US, communication personnelle) les profils individuels de CALIOP ne sont pas exploitables tels quels en stratosphère mais doivent être moyennés sur plusieurs jours, voire plusieurs semaines pour permettre d'obtenir un signal exploitable. Seuls les profils de nuits sont retenus pour l'étude des aérosols stratosphériques car ils présentent un meilleur rapport signal sur bruit. L'algorithme de traitement des données CALIOP que nous utilisons dans cette étude est décrit par Vernier (2010), la résolution spatiale et temporelle des données utilisées dans cette étude est une moyenne zonale sur une bande de latitude 35°N à 50°N mensuelle (données issues du traitement de Jean-Paul Vernier).

Les principales hypothèses de traitement reposent sur le fait qu'il n'y a plus de diffusion produite par des particules entre 36 et 39 km d'altitude et un rapport lidar de 50 constant avec l'altitude. Le rapport lidar exprime, dans les équations de traitement lidar, la dépendance de la diffusion particulaire par rapport à la diffusion moléculaire. Supposer le rapport lidar constant admet l'homogénéité des aérosols suivant l'altitude. Un rapport lidar de 50 est un bon compromis étant donné l'étendue des variations de ce coefficient suivant

## 2 Les aérosols stratosphériques

les différentes natures des aérosols en troposphère et en stratosphère (communication personnelle A. Miffre, ILM Lyon).

CALIOP marque une nouvelle étape dans notre connaissance de la distribution des aérosols stratosphériques, notamment par la mise en évidence de l'ATAL (*Asian Tropopause Aerosol Layer*), une couche d'aérosols composée de particules d'origines anthropiques transportées jusqu'à la basse stratosphère lors des mois de la mousson asiatique (Barret et al., 2016; Vernier et al., 2015b).

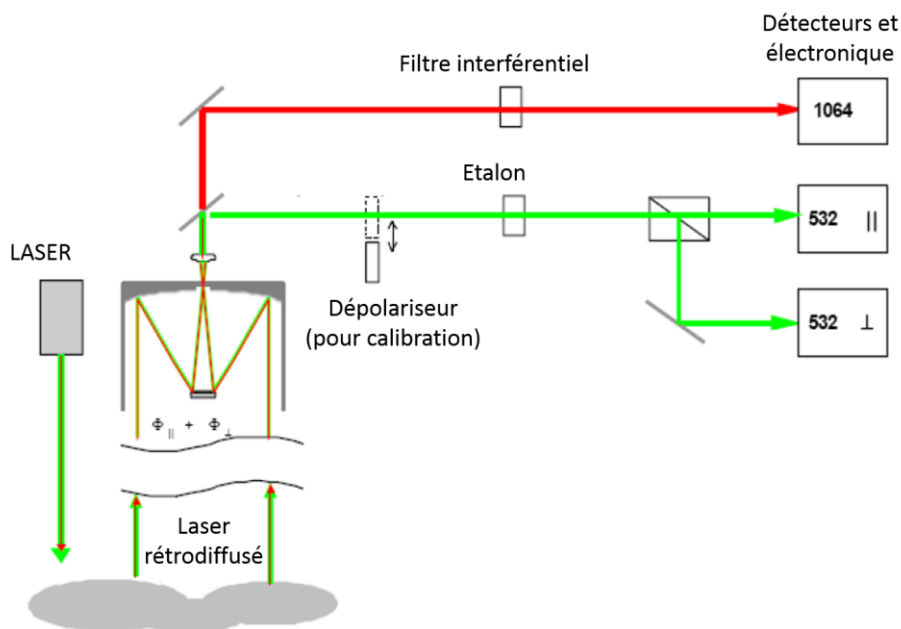


Figure 2.26 : Schématisation du trajet optique des faisceaux lasers de CALIOP (figure adaptée d'après Vernier 2010)

### c. Mesures par occultation

Nous n'utilisons pas de mesure d'occultation dans cette étude puisqu'aucun instrument utilisant cette technique n'est opérationnel présentement. Cependant nous présentons la technique et les instruments associés car l'apport de cette technique est majeur pour la compréhension des aérosols stratosphériques.

Le principe de la mesure par occultation repose sur la mesure du flux lumineux d'une source telle que le soleil, la lune ou une étoile à travers l'atmosphère (Figure 2.27). Lorsque la ligne de visée du détecteur croise une section d'atmosphère, la quantité d'énergie lumineuse provenant de l'astre observé est atténuée. Par comparaison aux spectres obtenus hors atmosphère et moyennant certaines hypothèses, il est possible de décrire la structure verticale des composés gazeux et particulaires diffusant et absorbant. Les principales hypothèses de traitement reposent sur existence de l'homogénéité des couches atmosphériques typiquement de quelques kilomètres d'épaisseur tout le long de la ligne de visée (environ 1000 km), ces grandeurs dépendent de l'altitude du point tangent de mesure. Cette technique possède le bénéfice de réaliser directement une mesure d'extinction qui est une des grandeurs physiques utilisées par la communauté en science stratosphérique pour comparer les différentes techniques entres elles. La calibration hors atmosphère permet de s'affranchir du vieillissement instrumental.

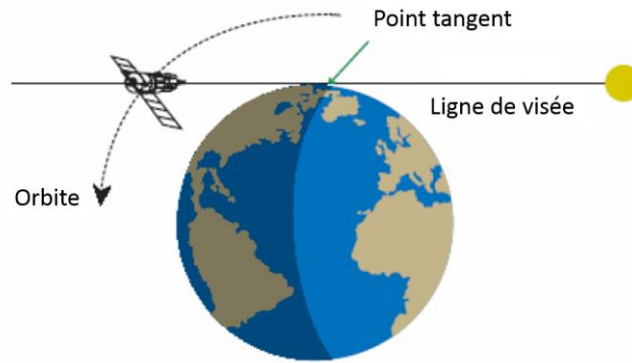


Figure 2.27 : schématisation du principe de la mesure par occultation (adapté d'après SPARC 2006)

- SAM II, SAGE I, SAGE II, HALOE, ACE-MASTRO

Une série d'instruments réalisant des mesures par occultation lors de la période 1978 à 2005 de manière quasi ininterrompue (SAM II, SAGE I, SAGE II, HALOE, ACE-MASTRO) a permis de mesurer les coefficients d'extinction des aérosols stratosphériques dans un large domaine spectral et de caractériser une partie de leur variabilité grande échelle, participant à l'amélioration de notre connaissance des aérosols stratosphériques (Bauman et al., 2003; Bingen et al., 2004a, 2004b; Thomason et al., 1997).

- GOMOS

L'instrument GOMOS (*Global Ozone Monitoring by Occultation of Stars*) à bord d'ENVISAT (*ENVironnement SATellite*) lancé en 2002, réalise des mesures d'occultation stellaire (Bertaux et al., 1991, 2004; Salazar, 2010). GOMOS pointe une étoile lors de son coucher pendant la période de nuit. Cette technique, relativement similaire à l'occultation solaire inclut une difficulté supplémentaire qui repose sur le fait que les étoiles ne possèdent pas toutes les mêmes spectres d'émission selon leur température (couleur) et leur magnitude (puissance).

- SOPHIE

L'instrument SOPHIE (*Solar Occultation For Ice Experiment*) à bord du satellite AIM (*Aeronomy for Ice Mesosphere*) utilise l'occultation solaire afin de rendre compte des nuages mésosphériques. Hervig et al. (2009) montre qu'il est possible de détecter les « smoke particules » avec cet instrument spécialement dédié à la mésosphère, ce qui n'est pas possible avec les instruments dédiés à la stratosphère. Les performances en termes de sensibilité en extinction de SOPHIE sont de l'ordre de quelques  $10^{-9} \text{ km}^{-1}$  selon ce même auteur, là où les seuils de sensibilité des instruments de la suite SAGE sont de l'ordre de quelques  $10^{-6} \text{ km}^{-1}$  (SPARC, 2006).

### 2.4.2 Les instruments de mesure in-situ embarqués en avion stratosphérique

Les avions de recherche tels que les ER2 (U2), le DC-8, WB-57F ou encore le M55-Geophysica sont des avions capables d'atteindre la basse stratosphère avec de nombreux instruments scientifiques à bord. Le M55-Géophysica par exemple, lors des campagnes AMMA (Cairo et al., 2010) en Afrique (*African Monsoon and Multidisciplinary Analyses*), a embarqué 11 instruments scientifiques pour une masse proche de 2 tonnes (<http://www.amma-international.org>).

Il existe de nombreuses techniques de mesure des aérosols stratosphériques utilisées en avion. Aucune comparaison directe en stratosphère avec des mesures par avion n'a été effectuée avec l'instrument LOAC pendant cette étude. Nous nous référons aux mesures par avion dans cette étude afin notamment de montrer que ces techniques révèlent la présence qualitative ou quantitative de particules non sphériques et aux propriétés absorbantes en stratosphère.



## 2 Les aérosols stratosphériques

### a. Les mesures par impaction

Les impacteurs utilisés dans les années 80 consistaient en différentes cibles recouvertes d'huile de silicone très visqueuse (Brownlee, 1985). Le dispositif de collecte est fixé sur l'aile d'un avion et exposé pendant une durée de quelques heures. Lorsqu'une particule impacte la cible, elle est piégée dans l'huile. Ce dispositif ne permet pas de préserver totalement la structure des particules et beaucoup de celles-ci se fragmentent lors de l'impact (Love et al., 1994). L'analyse par microscopie nécessite de séparer les particules de l'huile avec des solvants organiques, ce qui n'est pas sans conséquence sur la composition des particules (Messenger et al., 2015).

Les impacteurs AWI (*AMES Wire Impactors*) sont constitués de deux anneaux de 2,5 cm de diamètre qui tendent un ou plusieurs fils de palladium de largeurs comprises entre 75 et 500  $\mu\text{m}$  recouvert de carbone. Ce fil collecteur est assemblé sur les anneaux en salle blanche (classe ISO 5, moins de 0,1 particules de 0,1  $\mu\text{m}$  de diamètres par  $\text{cm}^{-3}$ ) (Blake et Kato, 1995; Pueschel et al., 1992; Strawa et al., 1999). Ces dispositifs sont fixés à l'aile de l'avion. Ces fils sont exposés pendant 2 à 10 min à l'altitude choisie puis enfermés hermétiquement dans une vapeur de sulfate d'ammonium, qui au contact des particules de sulfate impactées sur le fil les « figent » et les rendent ainsi disponibles pour des analyses en laboratoires (typiquement par microscopie électronique à balayage). La concentration de particules est déterminée grâce à la surface d'impaction que représente le fil, à la distance que parcourt l'avion pendant le temps que le fil est exposé et par comptage sous microscope. Cette technique permet d'estimer la concentration des particules sulfatées et des particules carbonées. La concentration massique des particules carbonées est déterminée par l'application d'une densité moyenne de 2,0  $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$  et du volume des particules que les auteurs estiment être exact à plus ou moins un ordre de grandeur près à cause des irrégularités des formes des particules (Blake et Kato, 1995).

L'instrument MACS (*Multi-sample Aerosol Collection System*) est constitué d'une tête de prélèvement munie d'un orifice critique permettant d'échantillonner à basse pression, et d'une vingtaine de cibles cylindriques (Sheridan et al., 1994). Le MACS permet de réaliser une série de prélèvements à différentes altitudes. Les échantillons sont analysés par microscope électronique à transmission permettant de rendre compte de la présence de particules réfractaires non-volatiles.

Le MINI (*Micro Inertial Impactor*) est composé d'une couronne de 12 tubes comportant chacun deux étages d'impaction (Kandler, 2009). Les deux étages permettent de séparer par inertie les particules de diamètres supérieurs à 400 nm, des particules de diamètres compris entre 10 et 400 nm, à la manière des impacteurs basse pression (Renoux et Boulaud, 1998). Le MINI est placé sur une ligne de prélèvement à l'intérieur de l'avion et l'ouverture successive des 12 tubes permet la collection à différents moments du vol. Les analyses des échantillons sont faites par microscopie en laboratoire.

### b. Les mesures optiques

- SP2

Le principe de l'instrument SP2 (*Single Particle Soot Photometer*) repose sur l'observation de la lumière diffusée puis émise par les particules lorsqu'elles croisent un faisceau laser intense (env. 1  $\text{MW}\cdot\text{cm}^{-2}$ ;  $\lambda=1.067\mu\text{m}$ ) (Stephens et al., 2003) (Figure 2.28). Lorsqu'une particule pénètre dans le faisceau laser, la lumière est diffusée à la même longueur d'onde du laser (diffusion élastique) pendant les premiers instants. Cette diffusion permet de déterminer la taille des particules (de la même façon qu'un compteur optique de particules). Dans un second temps, la particule reçoit assez d'énergie pour être vaporisée, elle émet à ce moment de l'énergie sous une longueur d'onde différente de celle incidente (émission inélastique). La température de vaporisation (déterminée par la longueur d'onde émise par la particule lors de la vaporisation) est propre à la composition de la particule. Les histogrammes de température de vaporisation obtenus lors d'une mesure permettent de déterminer la composition principale d'une particule. Les particules carbonées ont des températures de vaporisation élevées vers 4000°C tandis que les particules constituées de mélange plus complexe possèdent des températures de l'ordre de 3000 °C (Baumgardner, 2004; Schwarz et al., 2006). Cet instrument permet donc de rendre compte de la taille et de la nature principale des particules mais également de préciser si certaines particules sont constituées de différentes phases (liquide et solide).

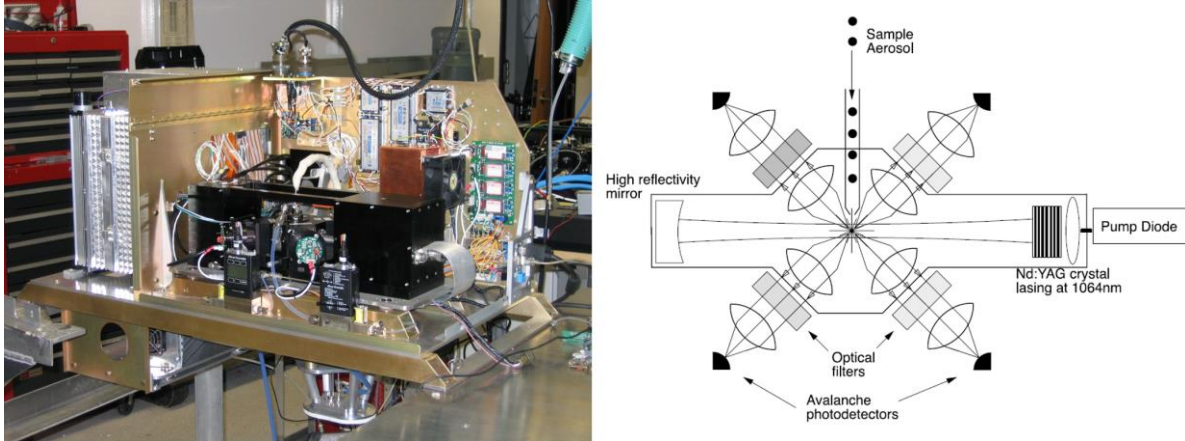


Figure 2.28 : A gauche, photographie du SP2 et de son module d'intégration dans l'avion. A droite, schématisation de la cellule de mesure contenant le laser et les 4 photo-détecteurs (Schwarz et al., 2006)

- PALMS

Le PALMS (*Particle Analysis by Laser Mass Spectrometry*) est un spectromètre de masse permettant de connaître la composition chimique des particules (Murphy et Thomson, 1995; Thomson et al., 2000). Cette technique permet d'obtenir des mesures en temps réel, directement à bord de l'avion. Les particules sont prélevées puis introduites sous vide dans une cellule optique. Un premier laser permet de connaître la taille des particules par mesure de la diffusion lumineuse. Les particules sont ensuite soumises à une impulsion d'un second laser plus puissant permettant de les vaporiser et ioniser les molécules constituant la particule. La séparation des ions selon leur masse est réalisée par temps de vol dans un tube de 67 cm (*Time of Flight* TOF, technique de spectrométrie de masse, Rouessac et al., 2009). La détection des ions est réalisée par une galette de microcanaux (MCP, multiplicateur électrons similaire à un photomultiplicateur). Le PALMS permet l'analyse élémentaire et fonctionnelle des particules.

- NMASS

Les CNC (*Condensation Nucleus Counter*) sont constitués d'un milieu sursaturé par des vapeurs d'eau ou d'alcool qui condensent sur toutes les particules échantillonnées. Cela conduit à faire grossir les particules afin de les rendre détectables par la mesure optique par diffusion lumineuse. Ces instruments ne permettent pas de distinguer les différentes tailles initiales des particules mais donnent la concentration en nombre des particules en dessous de la limite inférieure en taille des compteurs optiques de particules. Le NMASS (*Nucleation-Mode Aerosol Size Spectrometer*) fonctionne sur le principe des CNC (Brock et al., 2000; Stolzenburg et McMurry, 1991). Le dispositif utilise 9 CNC en parallèle pour produire des distributions en tailles de 0,06 à 1  $\mu\text{m}$  de diamètre à bord d'avions.

- COPAS

Le COPAS (*Condensation Particle Counter System*) est schématiquement une combinaison de deux CNC en parallèles spécifiquement dédié à la mesure en avion stratosphérique (Curtius et al., 2005; Wilson et al., 1983). Le premier CNC permet de déterminer le nombre total de particules de diamètre supérieur à 10 nm indépendamment de leur nature tandis que le second dénombre la fraction non-volatile après désorption à 250°C en ligne. La différence entre les deux CNC permet de décrire la proportion volatile d'un aérosol stratosphérique.

### 2.4.3 Les instruments embarqués sous ballons

Les instruments sous ballons peuvent être distingués en trois classes : les instruments de mesure à distance, les instruments de mesure in situ et les instruments réalisant des prélèvements.

## 2 Les aérosols stratosphériques

### a. Les instruments de mesure à distance

Les instruments tels que SALOMON (Spectroscopie d’Absorption Lunaire pour l’Observation des minoritaires Ozone et NO<sub>x</sub>), AMON (Absorption par les Minoritaires Ozone et NO<sub>x</sub>), MicroRADIBAL (Micro Radiomètre Ballon) permettent de mesurer la concentration et/ou les propriétés optiques des particules (Renard et al. 2008a). Ces instruments utilisent la lumière émise par des astres ou la lumière diffusée par l’atmosphère. Les techniques sont comparables aux mesures au limbe effectuées par instruments satellites OSIRIS ou OMPS, ou bien par occultation comparable à SAGEII. Ces techniques appliquées sous ballons permettent d’allonger les temps de pose afin d’améliorer la qualité des mesures par tranche d’altitude. Elles ont notamment permis de révéler l’existence de structures fines dans l’atmosphère (Berthet et al., 2002), structures absentes dans les données satellites. L’instrument MicroRADIBAL est sensible à la nature des particules et grâce à la rotation de la nacelle sur elle-même, mesure la fonction de diffusion angulaire des aérosols (Renard et al., 2008b). Ces mesures montrent notamment la présence de particules absorbantes à 27 km d’altitude.

Tous ces instruments nécessitent d’être embarqués sous des ballons stratosphériques ouverts (BSO) de par leur masse importante. Les BSO sont capables d’élever des charges de quelques dizaines à quelques centaines de kg. Le contrôle des BSO permet d’effectuer des plafonds ou des descentes lentes particulièrement indiquées pour les mesures d’occultation ou au limbe, car cela allonge le temps de pause. En revanche, les campagnes de BSO sont complexes à mettre en place, elles nécessitent un nombre important d’opérateurs et des conditions de vols particulières qui limitent la fréquence des vols. Bien que ces conditions soient assez restrictives, de nouveaux projets de développement de versions évoluées de ce type d’instrument sont en cours (exemple spectromètre ALI *Aerosol Limb Imager*, Elash et al., 2016).

### b. Les instruments de mesure in situ

Nous décrivons deux types d’instruments de mesure in situ, les instruments qui échantillonnent les aérosols avec une pompe pour les acheminer jusqu’à une cellule de détection optique et ceux qui mesurent la rétrodiffusion d’une source lumineuse à la manière d’un lidar.

- Les compteurs de particules

Les instruments STAC (*Stratospheric and Tropospheric Aerosol Counter*), POPS (*Printed Optical Particle Sampler*), wOPC (*Optical Particle Counter – From university of Wyoming*) et le LOAC (*Light Optical Aerosol Counter*) possèdent des pompes volumiques permettant d’introduire les aérosols dans la cellule de détection. Ces instruments utilisent le principe de la diffusion lumineuse afin de réaliser la mesure de la distribution en taille des particules. Les choix techniques et technologiques peuvent néanmoins différer.

Les STAC mesurent la diffusion lumineuse angulaire de 40° à 100° par les particules avec une source laser 780 nm et permettent de compter le nombre de particules selon 13 gammes de taille d’environ 0,35 à 5 µm en diamètre (Renard et al., 2002, 2013).

Les wOPC les plus récents mesurent la diffusion lumineuse par les particules avec une lampe à incandescence blanche à deux angles de 25° à 55° positionnés symétriquement et classent les particules selon 8 à 12 gammes de tailles de 0,3 à 4,0 µm en diamètre (Deshler, 2003; Kovilakam et Deshler, 2015). Ces instruments sont dédiés à la mesure des particules sulfatées stratosphériques. Afin de pouvoir rendre compte de la concentration totale de particules à partir de quelques dizaines de nanomètres, le wOPC est associé à un CNC en vol sous ballon stratosphérique. Cette méthode permet d’extrapoler les distributions en tailles des concentrations de particules obtenues par les wOPC en faisant l’hypothèse de distributions log-normales pour les diamètres inférieurs à 0,3 µm.

Les POPS utilisent une source lumineuses laser à 405 nm et recueillent la lumière diffusée par les particules après réflexion sur un miroir qui intègre la contribution des angles de 38° à 142° (Gao et al., 2016). L’étendue de mesure des diamètres des particules détectées par le POPS est de 0,14 à 3,0 µm en diamètre. Comme les wOPC, les POPS sont dédiés à la mesure des aérosols sulfatés.

Les LOAC mesurent la diffusion lumineuse d'une source laser 650 nm par les particules avec deux photodiodes qui observent respectivement aux angles  $11^\circ$  à  $16^\circ$  et  $55^\circ$  à  $65^\circ$  (Renard et al., 2016a), sur une étendue en gamme de taille de 0,2 à 100  $\mu\text{m}$ .

Ces trois instruments STAC, wOPC et POPS sont calibrés en tailles avec des billes de latex ou des gouttelettes d'huile en suspension (DOP), et la détermination des tailles des particules échantillonnées nécessite de faire l'hypothèse de l'indice de réfraction des particules, souvent l'indice utilisé est celui de l'acide sulfurique ( $n=1.45+0i$ ). Le LOAC ne nécessite pas de faire d'hypothèse sur la nature des particules, nous décrivons le fonctionnement de cet instrument en détail dans cette étude. Pour STAC, wOPC et POPS, très peu d'informations sont disponibles quant à leurs réponses dans le cas de particules non-sphériques ou d'indices de réfractions non purement réels.

- Les COBALD

Les COBALD (*Compact Optical Backscatter and Aerosol Detector*) sont conçus pour étudier la présence des cirrus et des nuages glacés afin de mieux qualifier leur impact sur le climat (Brabec, 2007; Brabec et al., 2012; Cirisan et al., 2014). Les COBALD sont composés de deux diodes électroluminescentes (LED) émettant à deux longueurs d'ondes différentes (455 nm et 870 nm, de 250 mW chacune, Figure 2.29, Brabec, 2007). La lumière rétrodiffusée est mesurée par un photodétecteur. L'analyse du rapport de diffusion 870/455 nm permet d'identifier la présence de cirrus et de déterminer la taille des particules. L'instrument pèse 540 g ce qui permet de le déployer sous ballons météorologiques (Brabec, 2007).

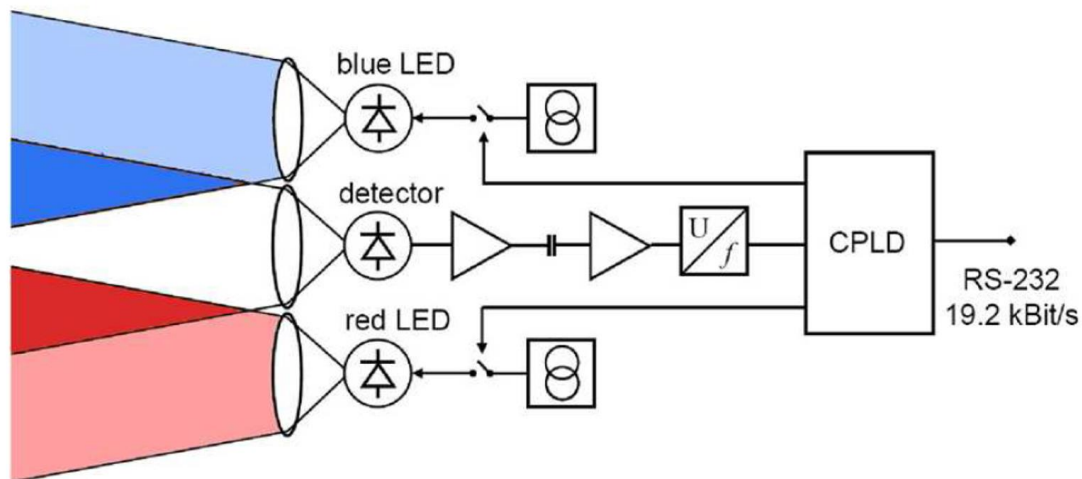


Figure 2.29 : Schématisation du système de système de détection COBALD (Brabec 2007). Les deux LED bleue (455 nm) et rouge (870 nm) produisent un flux lumineux conique (env.  $4^\circ$  de demi-angle) dirigé vers le volume d'atmosphère à échantillonner. Le détecteur mesure la quantité de lumière rétrodiffusée qui est une fonction de la concentration moléculaire et particulaire

### c. Les instruments de prélèvement

Les premiers prélèvements de particules stratosphériques sous ballons ont été réalisés par Junge à la fin des années 1950 qui utilisa un impacteur en cascade (Junge et al., 1961).

L'instrument plus récent DUSTER (*Dust in the Upper Stratosphere Tracking Experiment and Retrieval*) (Figure 2.30 ; De Angelis, 2011; Palumbo et al., 2008) échantillonne les aérosols entre 30 et 40 km d'altitude. L'échantillonnage d'environ 20  $\text{m}^3$  d'air à un débit de 0,5  $\text{L}\cdot\text{s}^{-1}$  permet de collecter plusieurs centaines de particules par impaction inertielle (ce qui représente environ une dizaine d'heure de prélèvement). L'analyse en microscopie se fait directement sur les cibles recueillant les échantillons en vol, afin de réduire au maximum les opérations de manipulation qui sont sources de contaminations.

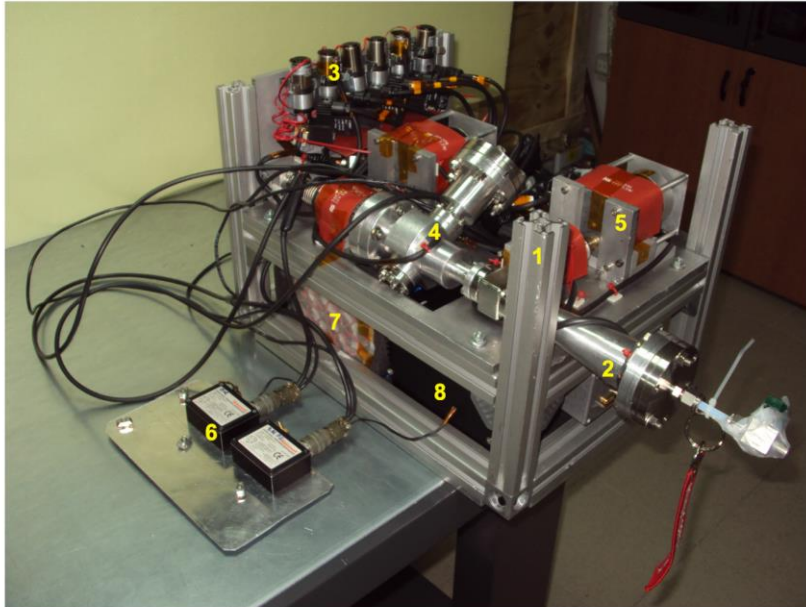


Figure 2.30 : Instrument DUSTER (De Angelis 2011). 1) support aluminium, 2) prélèvement, 3) dispositifs de pompages, 4) chambre de collection, 5) valves, 6) capteurs de pression, 7) batteries, 8) modules électroniques

## 2.4.4 Les instruments au sol

### a. Les lidars

Les lidars sont aussi déployés au sol et mesurent le signal rétrodiffusé relatif à la quantité d'aérosols à la manière du lidar spatial CALIOP. Certains de ces instruments sont organisés en réseau. Le réseau NDACC par exemple (*Network for the Detection of Atmospheric Composition Change* - <http://www.ndsc.ncep.noaa.gov> ; WIGOS Report, 2013) regroupe un certain nombre de ces instruments à travers le monde (Figure 2.31). La mesure lidar possède une grande résolution verticale et temporelle mais est limitée par les hypothèses qu'il est nécessaire de faire pour traiter le signal, ces hypothèses dépendant du type de technologie utilisé. Les systèmes les plus simples nécessitent des hypothèses portant à la fois sur les propriétés optiques des

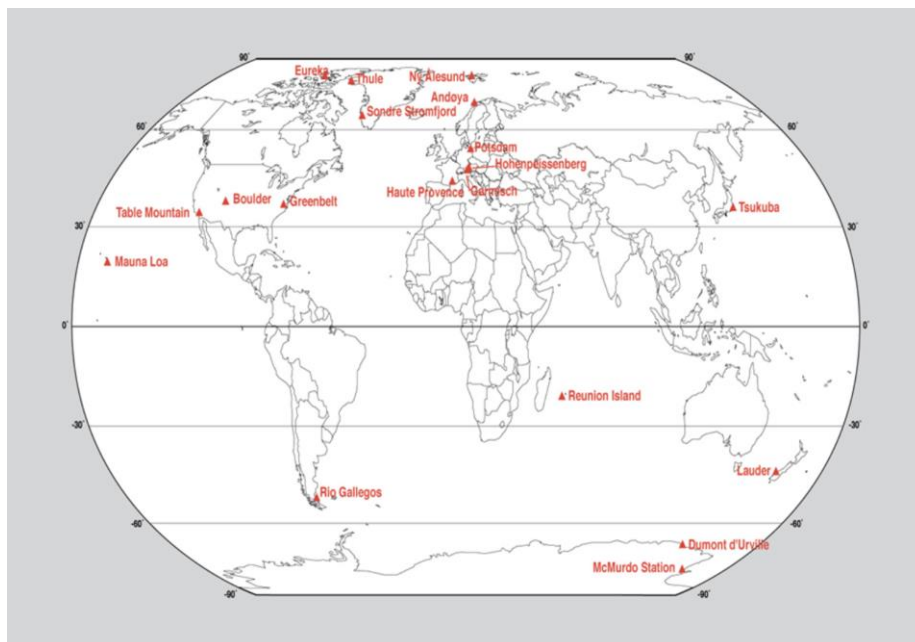


Figure 2.31 : Localisation des lidars sol NDACC  
<http://www.ndsc.ncep.noaa.gov>

particules et leur distribution en taille ainsi qu'une hypothèse sur la contribution de la rétrodiffusion moléculaire. Les systèmes les plus complexes utilisant différentes longueurs d'onde et/ou une information sur la polarisation de la lumière rétrodiffusée réduisent les hypothèses nécessaires.

Dans cette étude nous utilisons des données du lidar de l'Observatoire de Haute-Provence (OHP) (44°N ; 6°E) LiO3S. Cet instrument est dédié à la mesure de l'ozone stratosphérique (355 nm), quantité à partir de laquelle il est extrait l'extinction des particules stratosphériques (Godin-Beekmann et al., 2003; Khaykin et al., 2016). Les données du lidar OHP, après le retraitement de S. Khaykin, LATMOS, sont disponibles à partir de 1994 à la résolution temporelle d'une moyenne journalière (mesure uniquement de nuit pendant 3 à 5 h par temps clair). Les hypothèses de traitement impliquent, comme pour le traitement des données CALIOP, l'utilisation d'un rapport lidar (ici 50) constant dans le temps et selon l'altitude. Ce rapport lidar implique intrinsèquement des hypothèses sur la forme de la distribution en taille des particules et sur leurs propriétés optiques. La méthode implique également une altitude de référence où la rétrodiffusion produite par les particules est nulle. Cette référence est prise entre 30 et 33 km d'altitude (Khaykin et al., 2016). La diffusion moléculaire est calculée à partir des données NCEP (*National Centers for Environment Prediction*) ainsi qu'avec les données de radiosondage. Les lidars sol permettent de rendre compte d'une mesure locale de résolution verticale 150 m. Les incertitudes cumulées liées à la possible présence d'aérosol à l'altitude de référence, au bruit du détecteur ainsi que sur le ratio lidar sont inférieures à 7 % pour les altitudes stratosphériques et pendant le temps d'intégration de quelques heures (Chazette et al., 1995). Dans la suite de cette étude, le lidar LiO3S est nommé lidar OHP.

b. Les photomètres

Le principe de mesure des photomètres est basé sur l'observation de lumière diffusée et absorbée par l'atmosphère (même principe que la mesure au limbe). Ces photomètres observent la quantité de lumière selon différentes longueurs d'onde (densité optique) afin de rendre compte de l'épaisseur optique. Différents types de photomètres existent, ils peuvent être soit manuels, soit robotisés. Le réseau AERONET (*Aerosol Robotic Network*; <http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>) met à disposition des données provenant de plus de 800 photomètres robotisés à travers le monde dont certains ont été mis en service en 1992 (Figure 2.32).



Figure 2.32 : Localisation des photomètres du réseau AERONET passés et présents  
<http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>

Les photomètres mesurent une information intégrée sur la colonne atmosphérique, ce qui limite les études en stratosphère puisque le signal en diffusion ou absorption troposphérique est bien plus important. L'inversion des quantités intégrées permet de déduire l'allure de profils verticaux en faisant des hypothèses sur les distributions en tailles des particules ainsi que sur leurs propriétés optiques (O'Neill et Eck, 2008). Certaines de ces hypothèses peuvent être contraintes par la mesure angulaire de la diffusion lumineuse à différentes longueurs d'ondes qui peuvent rendre compte de la nature moyenne des aérosols.

### 2.4.5 Inter-comparaisons instrumentales

De nombreuses études portent sur la capacité des instruments à reproduire les mêmes informations dans différentes situations. Les différents instruments satellites (SAGE II, SAGE III, HALOE, OSIRIS, CALIOP) convergent vers des mêmes résultats en termes de profils verticaux et de niveaux d'extinction (Bourassa et al., 2012; SPARC, 2006; Vernier, 2010; von Savigny et al., 2015). Les différences en termes d'extinctions sont généralement inférieures à 50 % jusqu'à 30 km (exemple de la comparaison de deux lidars au sol avec SAGE II ; Figure 2.33) lors de situation où la stratosphère est perturbée par l'activité volcanique. Au-delà de 30 km, les différences augmentent. Les différences inter-instrumentales augmentent lors des périodes de fond où l'extinction est faible (SPARC, 2006).

Les études d'inter-comparaison des satellites avec les instruments in situ sous ballons indiquent typiquement des différences de l'ordre de 50 % (SPARC, 2006). La plupart des études prennent comme référence le compteur wOPC de l'université du Wyoming, en partie parce que ce type de compteur effectue des profils verticaux depuis plus de 30 ans (Deshler et al., 2003). Ces instruments in situ constituent les mesures de référence pour toutes les communautés de mesure à distance. Des inter-comparaisons entre ce compteur wOPC et le compteur STAC en basse stratosphère en période de vortex polaire aux hautes latitudes nord en ballons stratosphériques ouverts convergent vers des valeurs similaires (Renard et al., 2002).

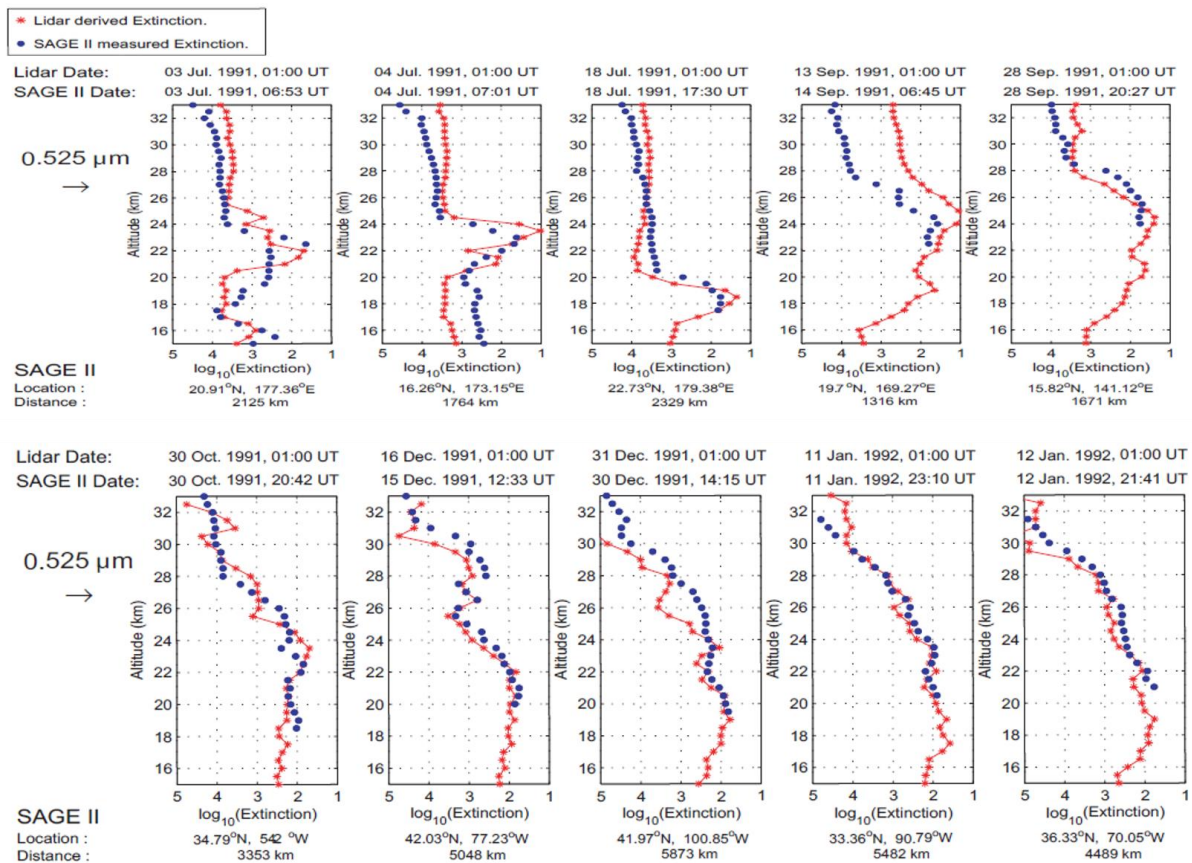


Figure 2.33 : Inter-comparaison du profil vertical d'extinction par les aérosols entre 15 et 33 km d'altitude entre SAGEII et deux lidars au sol, en haut à Mauna Loa à Hawaï USA (19°N ; -155°E) et en bas à Hampton dans l'état de Virginie USA (37°N ; -76°E) lors de l'éruption du Pinatubo (adapté d'après SPARC 2006)

### 2.4.6 Conclusion sur les instruments de mesures des aérosols de l'atmosphère libre

Il existe de nombreuses techniques de mesure qui permettent de caractériser les aérosols de la haute atmosphère. Toutes ces techniques ne sont pas équivalentes.

Les mesures par satellites, qu'il s'agisse des mesures d'occultation ou de mesures au limbe, intègrent un volume atmosphérique de plusieurs dizaines voire centaines de kilomètres cubes. L'analyse des mesures lidar stratosphériques est actuellement faite sur des moyennes de plusieurs jours. A contrario, les mesures in situ effectuées par les OPC sous ballons échantillonnent le long de profils verticaux de quelques mm à quelques cm de section. Les mesures par prélèvement rendent compte de volumes relativement importants (quelques dizaines de m<sup>3</sup>) cependant ce sont des mesures cumulées d'une région très locale de l'atmosphère. Ces différentes techniques donnent des paramètres physiques comparables entre eux mais représentatifs de zone géographiques très différentes. Cette variabilité spatiale est présente à de grandes échelles spatiales (par exemple vortex polaire, mousson asiatique, ondes de Rossby, ventilation du réservoir tropical), mais également à des échelles plus locales (par exemple e-foldings, ondes de gravités, turbulences). Les mesures à distance, qui intègrent le long d'une ligne de visée, ne sont pas sensibles à cette variabilité.

Le traitement des données des instruments de mesure à distance (satellites et instruments sol) font quasiment tous l'hypothèse que les aérosols stratosphériques sont uniquement des particules sphériques assimilables à des gouttelettes d'acide sulfurique d'indice de réfraction purement diffusant. Pourtant, les mesures par prélèvement avion et ballon attestent de la présence des particules non-sphériques ou incluant une phase solide et liquide (diphase), aux propriétés optiques absorbantes. La description des propriétés optiques de ces particules n'est pas complète à ce jour compte tenu de leur grande diversité. A défaut de modèles permettant d'inclure ces particules non-sphériques ou d'indice de réfraction non purement diffusant dans le traitement des mesures à distance, elles ne sont pas considérées. La question de l'influence des particules non-sphériques et/ou diphases et d'indice non purement diffusant sur les mesures à distance reste ouverte à ce jour.

Certaines mesures in situ en ballon ou en avion sont capables de déterminer les différentes natures de particules, certains sont également capables de donner une distribution en taille. Cependant, ces mesures in situ sont de fréquences très faibles comparées aux données satellites, l'étude des tendances par des mesures ballons est complexe compte tenu du faible nombre de données que l'on peut acquérir par ces techniques. La miniaturisation des instruments permet cependant d'augmenter la fréquence d'observation sous ballons.

## 2.5 Conclusion

Depuis les premières mesures par prélèvement de Junge et al. (1961), nous savons que la stratosphère est constituée de différents types d'aérosols, majoritairement de trois groupes distincts :

- Des aérosols sulfatés de fond majoritaires issus de conversion en particules des gaz soufrés. Leur diamètre est compris entre 0.05 et 1  $\mu\text{m}$ , leur concentration est répartie jusqu'à environ 40 km d'altitude. La concentration de ces aérosols est largement renforcée lors d'éruptions volcaniques intenses.
- Des aérosols provenant de la troposphère d'une part, majoritairement composés de particules carbonées issues de la combustion (black carbon, particules organiques) et de la mésosphère d'autre part composées de la re-condensation de la couche d'ablation météoritique. Leur diamètre est inférieur à 0.1  $\mu\text{m}$  et leurs propriétés optiques sont très absorbantes.
- Des aérosols contenant des particules de plus grandes tailles, de nature très inhomogène, provenant de processus de production divers et de concentrations très variables dans le temps ainsi que dans l'espace.

Cependant, il demeure encore de nombreux désaccords au sein de la communauté scientifique internationale sur la répartition de ces trois catégories d'aérosols. Les particules non-sulfatées, dont les propriétés optiques sont très complexes, sont très souvent sous-estimées voire négligées. La stratosphère



## 2 Les aérosols stratosphériques

est un milieu difficilement accessible à la mesure mais dont la caractérisation pourrait permettre de mieux contraindre nos prévisions climatiques.

Afin de pouvoir apporter une caractérisation plus précise des différentes natures d'aérosols stratosphériques, nous proposons d'utiliser le nouveau mini compteur d'aérosol LOAC réalisant des mesures in situ sous ballon. Ce nouveau compteur possède différents avantages, notamment de ne pas faire d'hypothèse sur la nature des particules afin de caractériser leur distribution en taille. Ce compteur est suffisamment léger pour être embarqué sous ballon météorologique ce qui pourrait permettre de réaliser des tendances temporelles (avec environ 2 vols par mois) et de comparer sa mesure à celles d'autres instruments.

La présente étude est organisée en trois parties. La première partie présente les performances de l'instrument dans les conditions stratosphériques de mesure sous ballon météorologique. La seconde partie traite de l'étude des variations verticales et temporelles des données acquises lors de 3 ans de campagnes depuis la France en comparaison avec un jeu de données indépendantes. La troisième partie est dédiée à la caractérisation des sources des aérosols stratosphériques à travers différents cas d'études impliquant le LOAC.

## 3 Le LOAC

Le LOAC fait l'objet de trois publications techniques que j'ai co-signées (Lurton et al., 2014; Renard et al., 2016a et b). Nous présentons dans le chapitre 3.1 un résumé de ces publications décrivant le fonctionnement du LOAC et le résultat d'études d'inter-comparaisons en troposphère. Le chapitre 3.2 présente les travaux effectués pendant cette thèse qui ont pour but de caractériser les performances du LOAC dans le cadre de son utilisation en stratosphère sous ballons météorologiques. La conception, la réalisation et l'interprétation de ces tests et essais m'ont été confiées. J'ai pu établir et mettre en place des protocoles permettant de décrire l'évolution des variables environnementales au sein de l'instrument dans la nacelle au cours d'un vol, de reproduire ces variations en laboratoire afin d'étudier le comportement de certains éléments constitutifs du LOAC sous l'influence de ces variables et de conclure sur les performances globales de l'instrument. Nous décrivons une estimation préliminaire des incertitudes sur les concentrations que j'ai établies à partir de la connaissance du fonctionnement de l'instrument. En conclusion sur les performances, nous décrivons ensuite deux campagnes d'inter-comparaison instrumentale in situ sous ballons : la première entre deux LOAC menée à mon initiative pour laquelle j'ai interprété les données, la seconde entre un LOAC et un wOPC pour laquelle la logistique, le déploiement sur place et l'interprétation des données m'ont été confiés.

### 3.1 Description de l'instrument

Le LOAC (*Light Optical Aerosol Counter*) est un instrument de faible masse (300 g), de faible consommation électrique (3 W) et d'encombrement réduit (20x10x5 cm<sup>3</sup>) ce qui permet son utilisation sous différents types de plateformes (au sol, sous ballon, à bord de drone ; Renard et al. 2016b). Le LOAC réalise une mesure in situ de la distribution en taille des particules de 200 nm à 100 µm en diamètre et donne une estimation de leur nature optique moyenne. Son développement répond à une demande scientifique de lancements réguliers de compteur d'aérosol sous ballon pour un coût relativement bas. Initialement, le LOAC a été développé pour étudier les épisodes de transport de sable saharien au-dessus de la mer Méditerranée dans le cadre du projet ChArME<sub>x</sub> (*Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment* ; <http://charmex.lscs.ipsl.fr/> ; Mallet et al., 2016)

Cet instrument a été développé au LPC2E par Jean-Baptiste Renard en partenariat avec l'entreprise Environnement-SA ([www.environnement-sa.com](http://www.environnement-sa.com)) dans le cadre d'un projet soutenu par le programme de l'ANR Ecotech. Depuis 2013, cet instrument est produit en série et commercialisé par la société Météo-Modem ([www.meteomodem.com](http://www.meteomodem.com)), plus de 130 instruments ont été fabriqués à ce jour.

#### 3.1.1 Principe de la mesure

Le LOAC est composé d'un système de prélèvement, d'une électronique de numérisation, d'une cellule de détection et d'une pompe (Figure 3.1). La cellule de détection est composée d'un laser (25 mW, 650 nm) et de deux photo-détecteurs (de type photodiode). L'aérosol est conduit dans la cellule de détection par un écoulement produit par une pompe. Les particules échantillonnées traversent le flux lumineux du laser, diffusent la lumière incidente, puis sont refoulées par la pompe.

Le principe de mesure du LOAC utilise les propriétés de diffusion lumineuse des particules. Mie (1908) introduit la théorie de la diffusion lumineuse par des particules et Van de Hulst (1957) formalise son expression mathématique. Cette théorie reçoit le nom de théorie de Mie et permet de déterminer la taille d'une particule en mesurant la quantité de lumière qu'elle diffuse connaissant la quantité de lumière incidente. Cette théorie s'applique à des particules sphériques et de nature homogène, elle est peu pertinente pour des grains irréguliers de nature non-homogène.

Considérant que les particules atmosphériques sont majoritairement non-sphériques et de natures très différentes, le LOAC a été pensé pour rendre compte de la taille des particules indépendamment de leur nature. Lurton et al. (2014) montrent qu'il existe des zones d'observation où la lumière diffusée par les particules est peu dépendante de leur nature mais plus fortement de la taille. La géométrie du LOAC est définie en fonction des angles d'observation (Figure 3.1).

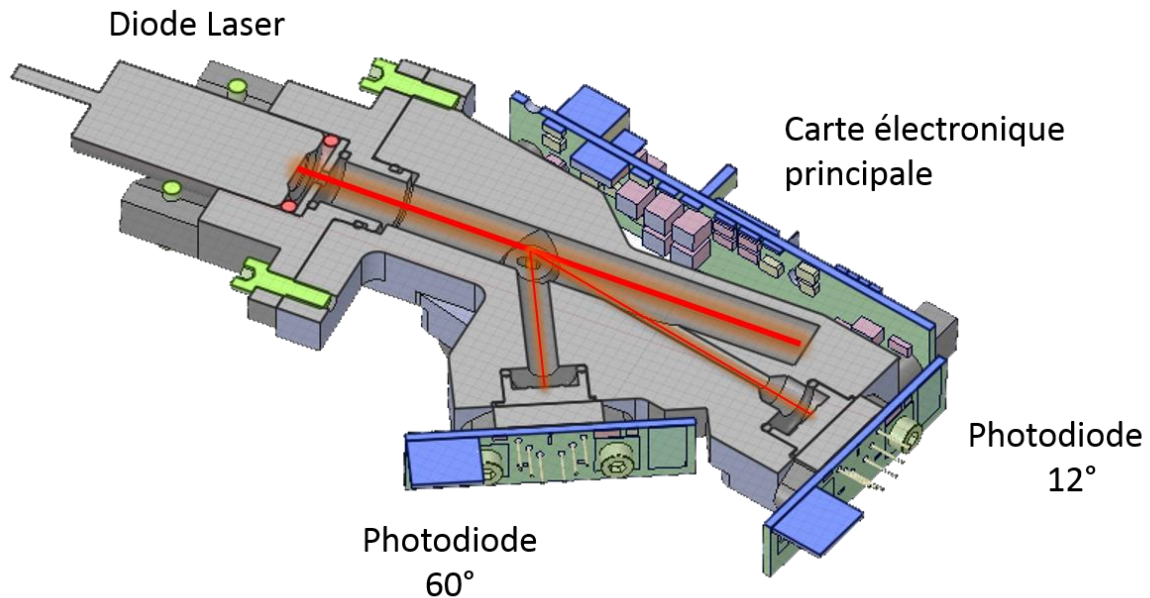


Figure 3.1 : Représentation d'une coupe transversale d'un LOAC faisant apparaître le faisceau lumineux émis par la diode laser et diffusé par une particule vers les deux photodiodes  
Remerciements N. Verdier, CNES

La première carte photodiode à  $12^\circ$  (nommée après dans cette étude photodiode  $12^\circ$ ) mesure la contribution de la diffusion lumineuse angulaire entre  $11^\circ$  et  $16^\circ$  par rapport à la direction de la lumière incidente. A ces angles, la diffusion lumineuse est peu dépendante de la nature des particules (Lurton et al., 2014). Cela signifie que deux particules de natures différentes mais de diamètres équivalents pour le LOAC produiront la même réponse sur la photodiode  $12^\circ$ . La seconde carte photodiode à  $60^\circ$  (nommée après dans cette étude photodiode  $60^\circ$ ) mesure quant à elle la diffusion lumineuse entre  $55^\circ$  et  $65^\circ$ . A ces angles d'observation, la quantité de lumière diffusée par deux particules de diamètres équivalents mais de nature différente dépend à la fois de la nature de la particule et de sa taille. La photodiode  $12^\circ$  réalise donc une mesure de la distribution en taille des particules (granulométrie) indépendamment de leur nature. La photodiode  $60^\circ$  réalise le même type de granulométrie et est combinée à celle réalisée par la photodiode  $12^\circ$  afin de déterminer la nature moyenne de l'aérosol échantillonné, paramètre nommé typologie.

L'établissement de la réponse de la photodiode  $12^\circ$  en fonction de différentes tailles et différentes natures de particules est réalisé en laboratoire (Figure 3.2). Une description complète de la procédure de calibration est donnée par Renard et al. (2016a). Les points rouges représentent les mesures expérimentales obtenues avec des billes sphériques de latex et de verre calibrées en taille. Les points verts sont des résultats expérimentaux de grains non sphériques calibrés en taille (cendres volcaniques, sables, carbures de silicium, cendres industrielles, charbons). Ces résultats expérimentaux sont comparés à la solution du modèle de Mie calculée pour une longueur d'onde 650 nm (courbe noire), transcrite en tension et associée aux angles de diffusion de la photodiode  $12^\circ$  en tenant compte du bruit de l'instrument. Cette courbe issue de la théorie de Mie est une fonction non monotone (présence d'oscillation) qui associe plusieurs solutions en tailles de particules pour une tension donnée. On remarquera que la courbe décrite par les points rouges (points expérimentaux obtenus avec des billes de latex et de verre sphériques) est également une fonction non monotone présentant les oscillations caractéristiques du modèle de Mie. A partir de 5 microns environ la courbe de Mie et les résultats expérimentaux obtenus avec des billes de latex s'écartent des points expérimentaux obtenus avec des grains irréguliers. Cet écart est expliqué par la non-sphéricité des particules (Lurton et al., 2014).

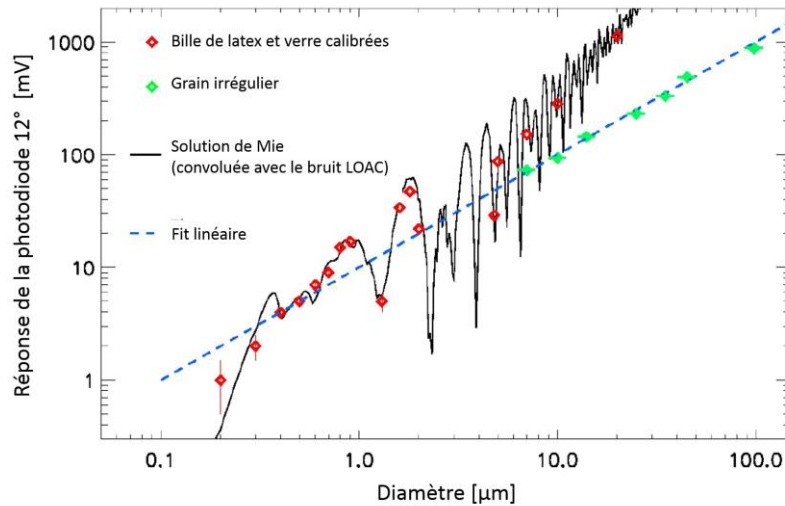


Figure 3.2 : Réponse de la photodiode  $12^\circ$  en fonction de particules de différents diamètres et de différentes natures (points rouges et verts), comparée à la solution prévue par la théorie de Mie calculée pour le champ de vue de la photodiode  $12^\circ$  et convoluée avec le bruit instrumental (courbe noire). La courbe discontinue bleue est un ajustement linéaire utilisée par l'instrument (adapté d'après Renard et al., 2016a)

### 3.1.2 Méthode de détection

Lorsqu'une particule traverse le faisceau laser, la tension amplifiée de la photodiode représentative de l'intensité lumineuse diffusée est numérisée par la carte principale (Figure 3.1) à la fréquence d'échantillonnage de 40 kHz (une numérisation toutes les 25  $\mu$ s). L'évolution temporelle de la tension numérisée est analysée en continu lors de la mesure. La Figure 3.3 représente la tension numérisée de la photodiode  $12^\circ$  lors du passage d'une particule de 5  $\mu$ m dans le faisceau. Le temps de passage d'une particule dans le faisceau laser est approximativement de 700  $\mu$ s.

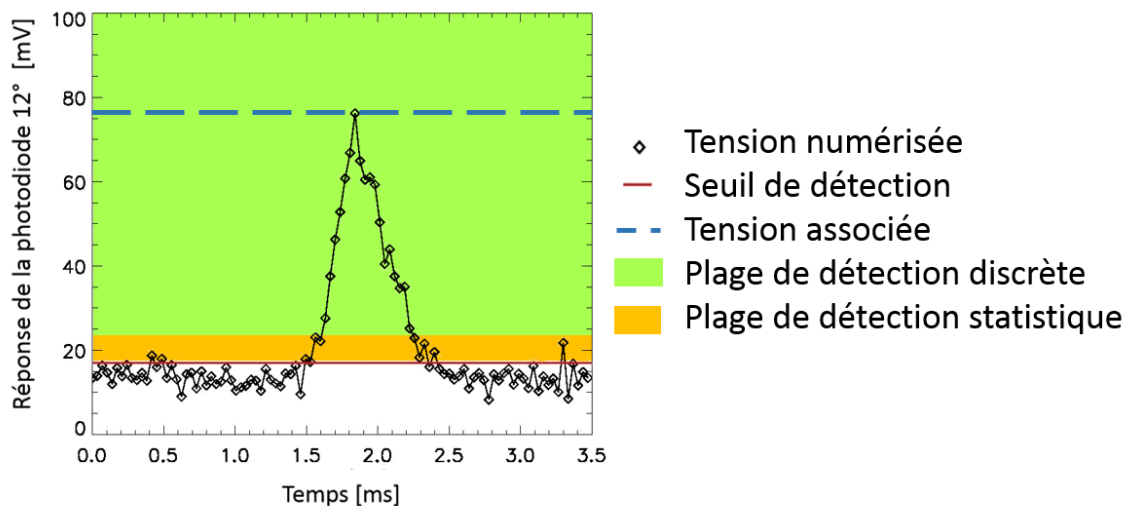


Figure 3.3 : Evolution temporelle de la tension numérisée de la photodiode  $12^\circ$  lors du passage d'une particule de diamètre 5  $\mu$ m d'un aérosol ambiant (adapté d'après Renard et al., 2016a)

Pour des tensions supérieures à 5 mV au-delà du seuil de détection (zone verte Figure 3.3), le système de détection de pics fonctionne directement par l'analyse différentielle de la réponse de la photodiode avec le seuil de détection (courbe rouge Figure 3.3). Le seuil de détection est la borne inférieure en tension de la première gamme de taille. Lorsque la tension de la photodiode franchit le seuil de détection, la procédure

de détection de pic débute. Cette procédure prend fin lorsque la tension de la photodiode devient inférieure au seuil de détection. La tension représentative du diamètre de la particule est attribuée à la tension maximum numérisée lors de la détection d'un pic (courbe discontinue bleue Figure 3.3). Après chaque procédure de détection d'un pic, le système attribut un comptage dans la gamme de tension adéquate par comparaison avec la tension associée à la particule détectée. Cette procédure de détection pour les particules de diamètre supérieur à  $0,7 \mu\text{m}$  est appelée détection discrète (zone verte Figure 3.3).

Un second type de détection est utilisé afin de rendre compte des particules de plus petits diamètres. Cette détection est dite statistique (zone jaune Figure 3.3). Typiquement, la détection statistique intervient lorsque la tension représentative du diamètre de la particule est de l'ordre de grandeur de la dispersion des tensions numérisées provenant de la carte photodiode. Cette dispersion des données numérisées est nommée bruit de détection et est définie comme la variation de la tension numérisée en absence de particule supérieure à  $0,2 \mu\text{m}$  dans le faisceau. Le bruit de détection sur la Figure 3.3 est d'environ l'ordre de 5 mV (10 mV crête à crête). Le bruit de détection est dû au bruit de la photodiode, à sa chaîne d'amplification ainsi qu'aux réflexions du faisceau laser dans la cellule de détection. La tension numérisée est une convolution de son bruit de détection et de la lumière diffusée par les particules. L'intensité lumineuse représentative d'une particule de diamètre inférieur à  $0,7 \mu\text{m}$  est de l'ordre de grandeur du bruit de détection, le rapport signal sur bruit est inférieur à 1. Cela signifie qu'une partie des particules de diamètres inférieurs à  $0,7 \mu\text{m}$  sont détectées avec une efficacité de détection différente de 1 (Renard et al., 2016a).

Le Tableau 3.1 donne pour les 19 gammes de tailles la correspondance en gamme de diamètre. L'étendue de mesure en taille LOAC est de  $0,2 \mu\text{m}$  à  $100 \mu\text{m}$  en diamètre.

N° gamme de taille	Gamme de taille [ $\mu\text{m}$ ]
1	0,2 – 0,3
2	0,3 – 0,4
3	0,4 – 0,5
4	0,5 – 0,6
5	0,6 – 0,7
6	0,7 – 0,9
7	0,9 – 1,1
8	1,1 – 3,0
9	3,0 – 5,0
10	5,0 – 7,5
11	7,5 – 10,0
12	10,0 – 12,5
13	12,5 – 15,0
14	15,0 – 17,5
15	17,5 – 20,0
16	20,0 – 22,0
17	22,0 – 30,0
18	30,0 – 40,0
19	40,0 – 100,0

Tableau 3.1 : Liste des gammes de taille LOAC

### 3.1.3 Procédure d'auto-calibration du seuil de détection

Le LOAC est conçu pour pouvoir fonctionner indépendamment du niveau de bruit électronique des photodiodes. Le niveau de bruit des photodiodes évolue en fonction de la température, ce qui introduit une modification de ce bruit sous la forme d'une composante continue. Cette composante continue électronique conduit à créer un décalage des gammes de tailles. La procédure d'auto-calibration supprime ce décalage et permet d'associer les gammes de tensions aux gammes de tailles, comme définies lors des opérations de calibration.

Cette correction du décalage est réévaluée de façon séquentielle dès la mise en fonctionnement du LOAC après une période de préchauffage. Une séquence est organisée selon les différentes phases suivantes : recherche du bruit, test de validité du bruit, si ce test est satisfait la phase de mesure débute sinon une nouvelle phase de recherche de bruit débute (Figure 3.4). La phase de recherche de bruit est constituée de deux périodes de 10 secondes. Une période de 10 secondes représente un échantillonnage pendant lequel les nombres de coups par gamme de taille sont accumulés. La phase de mesure est constituée de 60 périodes de 10 secondes constituée de la même manière par l'accumulation des coups par gamme de taille.

Pendant la phase de recherche du bruit, le laser est éteint. La recherche du bruit consiste à mesurer le nombre de coups par gamme de taille de la même manière que la mesure des diamètres des particules, mais en l'absence de diffusion lumineuse.

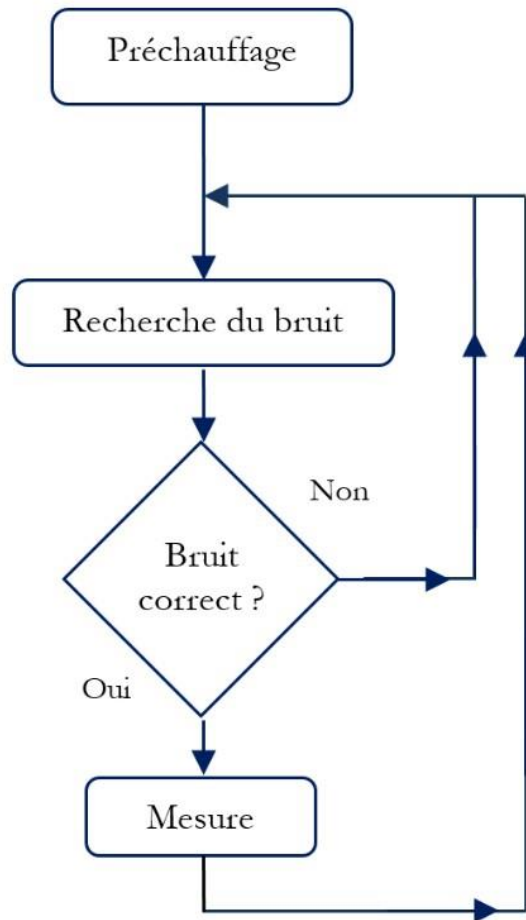


Figure 3.4 : Grafctet des différentes phases de fonctionnement du LOAC

Le test de validité du bruit repose sur l'analyse du nombre de coups total obtenu dans la première gamme de taille lors de la phase de recherche de bruit. Le but de ce test est de s'assurer que le seuil de détection est correctement positionné dans le bruit selon un critère déterminé. Si lors du test de validité le nombre de coups sur la première gamme de taille est trop élevé, le seuil de détection sera augmenté en tension afin de diminuer le nombre de coups. Si au contraire il n'est pas assez grand, le seuil de détection s'abaissera. Le seuil de détection est positionné avec une résolution à 0,5 mV près.

Lorsque le critère de bruit est satisfait, une phase de mesure peut commencer, le laser est alors rallumé. A la fin de la phase de mesure, si la température n'a pas évolué et que le critère de validité du bruit est toujours satisfait, une nouvelle phase de mesure débute.

Le seuil de détection est constant pendant toute une phase de mesure. Si la température évolue pendant une phase de mesure, la composante continue du bruit électronique peut produire un décalage en tension du bruit et donc des comptages ce qui peut conduire à associer une particule de diamètre donné dans une mauvaise gamme de taille. Par exemple, si la température augmente pendant la phase de mesure, les comptages sur les premières gammes de tailles seront plus élevés et contiendront un plus grand nombre de coups associés au bruit. Pour s'affranchir de cet effet, l'évolution temporelle du bruit est estimée en post-traitement.

### 3.1.4 Post-traitement de la mesure du bruit

Une séquence complète se compose donc d'une phase de recherche de bruit, d'un test de validité du bruit, d'une phase de mesure puis d'une seconde phase de recherche du bruit. A ce stade, les données acquises pendant la phase de mesure contiennent le bruit auquel s'ajoutent les pics de diffusion lumineuse produits par les particules et ce sur les 19 gammes de tension. Cette donnée, de résolution temporelle 10 secondes, est appelée donnée brute.

Le post-traitement a pour but de retirer le bruit de la mesure afin d'extraire la donnée sur le nombre de particules et de la convertir en concentration par unité de volume, connaissant le débit volumique de la pompe par ailleurs. La description de l'algorithme de post-traitement n'est pas donnée dans cette étude ; Renard et al. (2016a) précisent que le bruit est obtenu par interpolation linéaire à partir des données brutes acquises lors des phases de recherche du bruit avant et après une phase de mesure. Le post-traitement permet également d'appliquer la fonction de correction déduite de l'efficacité de détection décrite par Renard et al. (2016a).

L'algorithme de post-traitement fournit deux informations à partir des données brutes : la concentration de particules échantillonnées exprimée en nombre de particules par centimètre cube (noté  $\text{cm}^{-3}$ ) moyennée sur 1 minute (Figure 3.6) et la typologie (Figure 3.5).

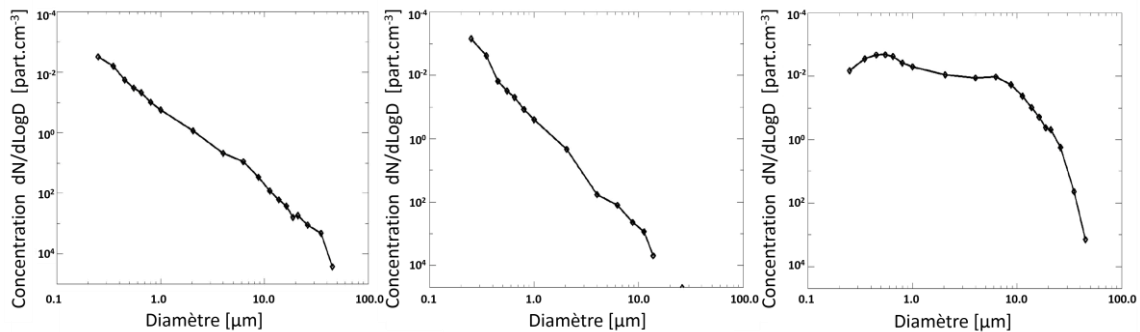


Figure 3.6 : Exemples de distributions en tailles obtenues lors de campagnes de mesures. A gauche, distribution représentative de particules désertiques. Au centre, distribution représentative d'un aérosol urbain. A droite, distribution représentative d'un nuage de gouttelettes liquides (adapté d'après Renard et al., 2016a)

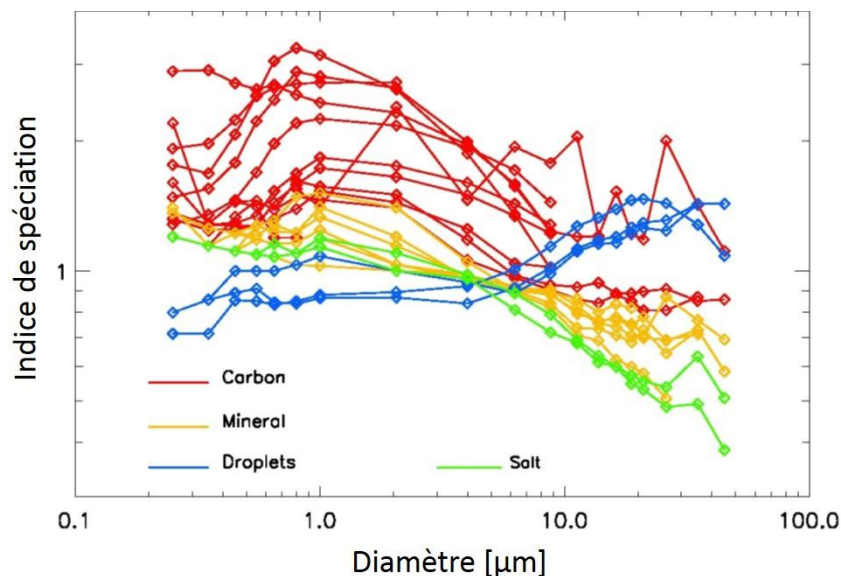


Figure 3.5 : Evolution de l'indice de spéciation en fonction du diamètre des particules pour 4 types d'échantillons produits en laboratoire (adapté d'après Renard et al., 2016a)

Le terme de typologie désigne l'information relative à la nature optique moyenne de l'aérosol échantillonné par le LOAC. Cette mesure de la typologie est basée sur la combinaison des informations mesurées par les deux photodiodes (Figure 3.1). Nous ne décrivons pas la procédure de détermination de la typologie dans cette étude, celle-ci est donnée par Renard et al. (2016a). La détermination de 4 principales classes de typologies a été établie en laboratoire. Le système est capable de faire la distinction entre un aérosol constitué majoritairement de particules carbonées (ou d'indice de réfraction imaginaire important), de particules associées à des minéraux solides, de particules associées à des embruns marins, ou de particules liquides. La Figure 3.5 présente les résultats expérimentaux ayant permis de déterminer les abaques relatifs à la détermination de la typologie. Une cinquième typologie relative à un aérosol constitué de cristaux de glace d'eau n'est pas présente sur la Figure 3.5. La signature de la glace d'eau présente une distribution de l'indice de spéciation fortement oscillante jusqu'aux grandes tailles et ne s'inscrit dans aucune zone de typologie des autres aérosols.

La qualité de la typologie dépend de la concentration en particules. En stratosphère, les concentrations de particules sont généralement trop faibles pour établir une typologie acceptable. Dans cette étude nous n'utilisons pas la typologie en stratosphère.

### 3.1.5 Incertitudes de mesure

Nous présentons dans le Tableau 3.2 la liste des incertitudes déterminées par Renard et al. (2016a). La composition des différentes incertitudes n'est pas réalisée.

Source de l'incertitude	Incertitude relative (%)	
Variation de la puissance laser (mW)		± 5.0
Homogénéité surfacique du faisceau laser (mW)		± 20.0
Stabilité du débit d'une pompe (L.min <sup>-1</sup> )		± 5.0
Bruit des photodiodes (Nb coups.10s <sup>-1</sup> )		± 5.0
Répétabilité inter-instrumentale en concentration (cm <sup>-3</sup> )	<10µm	± 15
	>10µm	± 30
Détection des particules (cm <sup>-3</sup> ) (statistique Poisson)	~10 <sup>-2</sup> part.cm <sup>-3</sup> à 20mV	± 60
	~10 <sup>-1</sup> part.cm <sup>-3</sup> à 20mV	± 20
	~1 part.cm <sup>-3</sup> à 20mV	± 6.0
Procédure d'auto-calibration (µm)	GdT 1 à 5	± 25
	GdT 6 à 7	± 2.5
	GdT 8 à 19	± 5

GdT : gamme de taille

Tableau 3.2 : Liste des incertitudes LOAC (d'après Renard et al., 2016a)

L'incertitude en concentration pour un LOAC est estimée être de ± 20 % compte tenu des incertitudes des différents éléments (laser, pompe, photodiode ; Renard et al. 2016a). Cette incertitude est donnée en concentrations cumulées moyennes sur 10 minutes pour des valeurs supérieures à 1 cm<sup>-3</sup>. Le terme de concentration cumulée désigne dans cette étude la concentration obtenue par la somme des concentrations des 19 gammes de tailles. Pour les concentrations cumulées inférieures à 1 part.cm<sup>-3</sup>, l'incertitude statistique est une distribution de Poisson. L'incertitude sur la concentration cumulée moyenne sur 10 minutes est de ± 20 % et ± 60 % pour les concentrations respectivement inférieures à 10<sup>-1</sup> et 10<sup>-2</sup> part.cm<sup>-3</sup>.

Une incertitude existe également sur la détermination des gammes de tailles lors de la procédure d'auto-calibration (chapitre 3.1.3). Considérant la résolution du seuil de détection de 0,5 mV, une incertitude sur la détermination des gammes de tailles est donnée à ± 0.025 µm pour les cinq premières gammes de tailles, puis respectivement ± 2,5 % et ± 5 % pour les gammes de tailles 6 à 7 et de 8 à 19.

L'efficacité de captage est définie comme la capacité d'un dispositif de prélèvement à produire un échantillon représentatif de l'aérosol à caractériser. L'efficacité de captage est proche de 100% pour toutes



les particules jusqu'à quelques dizaines de microns pour les LOAC au sol munis d'une tête de prélèvement TSP (*Total suspended particles*). Pour les mesures sous ballon météorologique, l'efficacité de captage est calculée en fonction de la géométrie de l'orifice de prélèvement, de la vitesse ascensionnelle moyenne des ballons, du débit moyen des pompes LOAC et pour deux angles de prélèvement par rapport au flux d'air (Figure 3.7). Cette efficacité de captage est définie pour des diamètres aérodynamiques de particules (Renoux et Boulaud, 1998).

Le prélèvement par le LOAC sous ballons météorologiques est en condition de prélèvement subsocinétique (Renoux et Boulaud, 1998; Witschger, 1996) ce qui signifie que le LOAC prélève les particules avec une vitesse de prélèvement au niveau de l'orifice de prélèvement (environ  $1,2 \text{ m.s}^{-1}$ ) inférieure à la vitesse moyenne d'ascension du ballon (environ  $5,0 \text{ m.s}^{-1}$ ). Cette condition de prélèvement subsocinétique conduit à surestimer la concentration des particules (efficacité de captage supérieure à 1). Cet effet de surestimation est croissant avec la taille des particules et accentué lorsque l'angle de prélèvement est parallèle par rapport à l'écoulement de l'air ainsi qu'avec l'altitude du ballon. L'efficacité de captage est comprise entre 1,0 et 1,5 pour les particules inférieures à  $2 \mu\text{m}$ . Pour les particules supérieures à  $2 \mu\text{m}$ , l'efficacité de captage est comprise entre 1,0 et 3,5, et ce dans toutes les conditions d'angle de prélèvement et d'altitude.

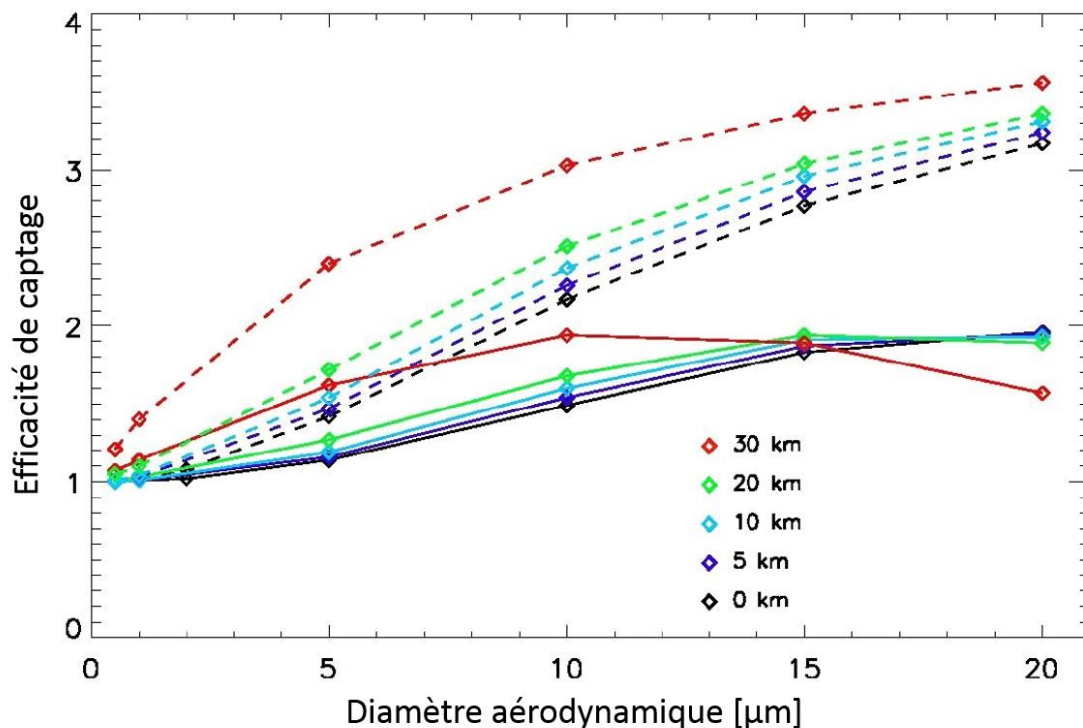


Figure 3.7 : Efficacité de captage en fonction du diamètre aérodynamique des particules pour 2 conditions d'angle de prélèvement (trait discontinu : prélèvement parallèle au flux d'air relatif produit par l'ascension du ballon ; trait continu : prélèvement avec un angle de  $30^\circ$  par rapport au flux d'air). L'efficacité de prélèvement est calculée pour différentes pressions et températures représentatives de 5 altitudes représentées par les couleurs et pour une vitesse ascensionnelle de  $5 \text{ m.s}^{-1}$  (adapté d'après Renard et al., 2016a)

L'efficacité de transmission est définie comme la capacité d'un dispositif de transport à conserver les propriétés d'un aérosol (nombre de particules par exemple) entre deux points, typiquement entre le captage et la détection. Dans notre étude nous considérons que cette efficacité de transmission est égale à l'unité pour le prélèvement au sol à condition que la longueur des tubes transportant l'aérosol soit inférieure à 50 cm. L'efficacité de transmission lors des mesures sous ballons météorologiques est considérée égale à 1, son influence est négligeable devant celle de l'efficacité de captage. L'écoulement du gaz porteur est supposé laminaire dans toutes les sections de l'instrument.

### 3.1.6 Inter-comparaison instrumentale

De nombreuses inter-comparaisons instrumentales ont été menées dans des conditions environnementales très différentes. Les conclusions de ces essais sont décrites par Renard et al. (2016a). Nous présentons dans ce chapitre une partie de ces résultats représentatifs des tests effectués en laboratoire, au sol et en troposphère libre.

#### a. En laboratoire

La capacité du LOAC à déterminer la concentration de particules par gamme de taille est présentée à travers l'inter-comparaison menée à la « Sea Spray Aerosol Chamber » (Salter et al., 2015) de l'université de Stockholm en Suède. Cette chambre de simulation permet produire un aérosol représentatif d'un embrun marin. Les paramètres de concentration, hygroscopicité des particules, rapport gouttelette liquide sur cristaux de sel et température sont maîtrisés. L'intercomparaison a été conduite avec un Fidas et un DMPS. Fidas désigne le compteur optique de particule Fidas 200 de la marque Palas GmbH qui détermine le diamètre des particules par l'analyse de la diffusion d'une source de lumière blanche entre 85° et 95°. Son étendue de mesure est annoncée de 0,1 à quelques dizaines de  $\mu\text{m}$ . Le DMPS (*Differential Mobility Particle Sampler*) est un analyseur de mobilité électrique de la fabrication de l'université de Stockholm couplé avec un compteur de noyau de nucléation (CNC) de la marque TSI 3772 (Salter et al., 2014). Le DMPS permet de sélectionner une gamme de taille de l'aérosol en fonction d'un diamètre selon sa mobilité électrique qui est ensuite dénombré avec le CNC. Les scans successifs du DMPS permettent de contruire la distribution en taille d'étendue 0,01  $\mu\text{m}$  à quelques  $\mu\text{m}$ . Pour deux types d'aérosols produits par la chambre, particules liquides ou cristaux de sels, la correspondance apparente des granulométries entre le LOAC et le DMPS est présentée comme bonne par Renard et al. (2016a). Le Fidas ne mesure pas une distribution des concentration possédant un mode vers 0,1  $\mu\text{m}$  mais environ vers 0,25  $\mu\text{m}$  pour l'aérosol liquide ou de cristaux de sel (Figure 3.8).

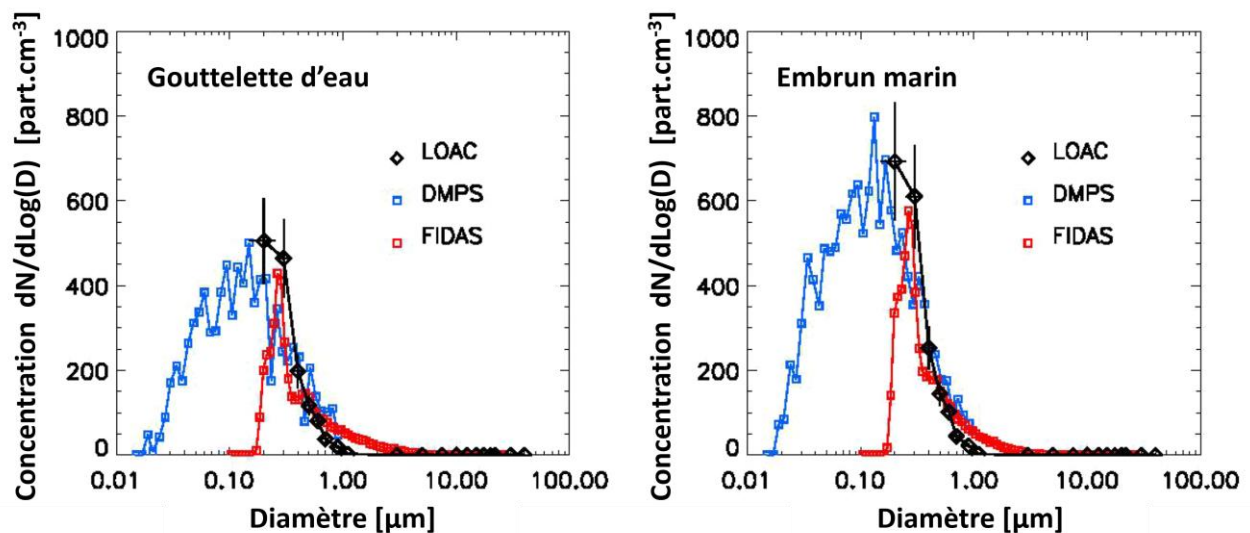


Figure 3.8 : Représentation du résultat d'une inter-comparaison entre un DMPS, un FIDAS et un LOAC (adapté d'après Renard et al., 2016a)

Une comparaison instrumentale en masse a également été établie en laboratoire. Grâce à la typologie, il est possible de calculer la concentration massique à partir de la concentration en nombre mesurée et l'application d'une masse volumique par classe de nature considérant que les particules peuvent être assimilées à des sphères. Cette méthode est comparée avec une microbalance TEOM (*Tapered Element Oscillating Microbalance*) qui détermine la masse collectée sur un filtre oscillant en mesurant les variations de la fréquence d'oscillation de ce filtre. La génération de différentes natures d'aérosols contenant des particules carbonées et minérales en différentes concentrations a permis de produire la comparaison de la Figure 3.9. La régression linéaire indique une corrélation de 0,97, de coefficient directeur 0,98 et d'ordonnée à l'origine 2,2  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  en moyenne sur 24h ce qui indique un bon accord entre les deux techniques.

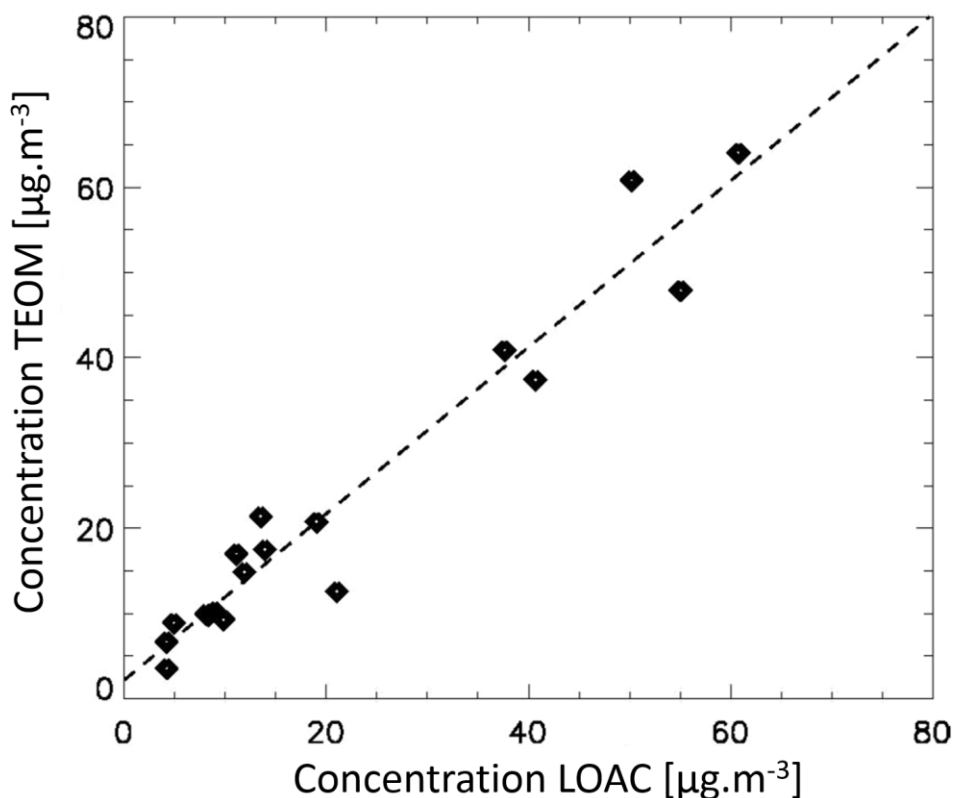


Figure 3.9 : Comparaison expérimentale d'un TEOM et d'un LOAC en chambre de test LPC2E. Chaque point représente une moyenne de 24h (adapté d'après Renard et al., 2016a)

b. En milieu ambiant

L'inter-comparaison d'un LOAC avec un SMPS, un Grimm et un HHPC6 a été effectuée début février 2014 sur le site poly instrumenté du SIRTA 5 (Site Instrumental de Recherche par Télémétrie Atmosphérique) à Gif-sur-Yvette (du CEA/LSCE - Sud de Paris). Le SMPS utilise la mobilité électrique pour classer les particules afin de les dénombrer grâce à un compteur de nucléation (CNC), tandis que les instruments Grimm et HHPC6 sont des compteurs optiques du commerce utilisant la diffusion lumineuse.

La Figure 3.10 représente l'évolution temporelle de la concentration par classe de taille pour les différents instruments. Renard et al. (2016a) indiquent que les instruments mesurent des concentrations similaires pour les différentes gammes de taille avec un meilleur accord pour la gamme de taille 0,5-0,7  $\mu\text{m}$ . Les différences observées entre le LOAC et les autres instruments sont attribuées aux définitions des diamètres considérés ainsi qu'à la dépendance des mesures à la nature des particules. Renard et al. (2016a) précisent que les conditions de prélèvements étaient différentes pour les instruments et que l'efficacité de comptage du LOAC a été affectée par des pertes en transmission produites par une ligne de prélèvement trop longue.

Une inter-comparaison en masse a été menée avec le réseau de surveillance de la qualité de l'air de Paris (Airparif) composé de microbalances TEOM en sélectionnant les 3 stations les plus proches, en termes de conditions de pollution, des deux LOAC utilisés. Les trois stations Airparif Rural sud, Paris centre et Vitry sont respectivement représentatives de situations rurales à urbaines. Le LOAC ParisFog désigne un instrument en station sol sur le site du SIRTA5 qui représente un site péri-urbain à urbain. Le LOAC OAG désigne le LOAC à bord du ballon (Observatoire Atmosphérique de Paris) dans le parc André Citroën à Paris 15<sup>ème</sup> arrondissement, qui représente un site urbain. Ce ballon touristique permet d'effectuer des profils jusqu'à 270 m d'altitude, pour la comparaison avec le réseau Airparif seules les données au sol sont retenues (un cas d'étude en vol est présenté par Renard et al. (2016b).

La grandeur  $PM_{10}$  (*Particulate Matter*) désigne la concentration massique cumulée des particules de diamètres inférieurs à  $10 \mu m$ . L'évolution temporelle des  $PM_{10}$  moyennes sur 24 h est en accord en situations de fond et en situation de pollution (jours 340 à 350) compte tenu de la distance entre les instruments (Figure 3.11).

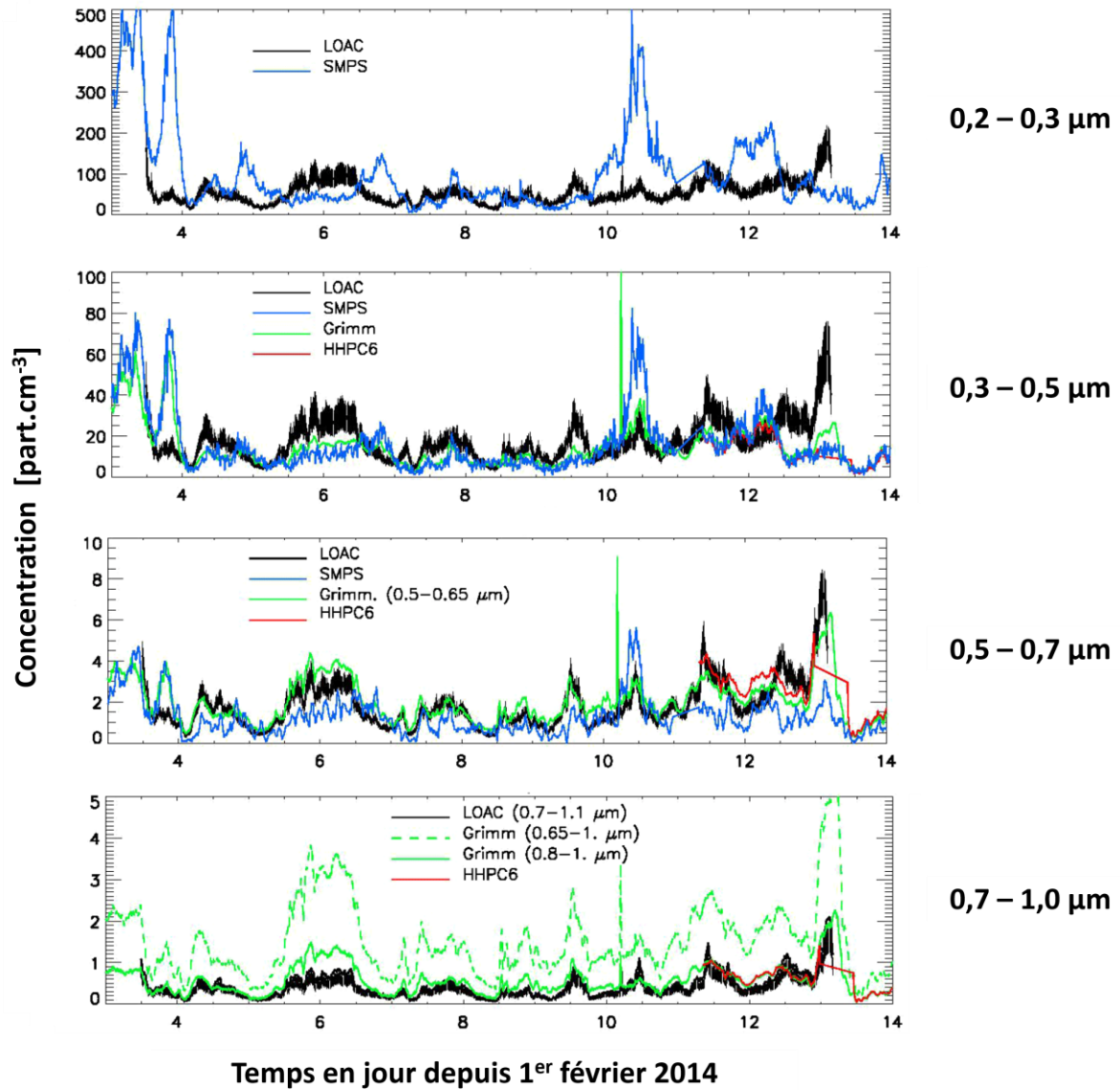


Figure 3.10 : Comparaison en situation d'air extérieur (Sud de Paris) entre 4 instruments pendant la période du 3 au 13 février 2014 (adapté d'après Renard et al., 2016a)

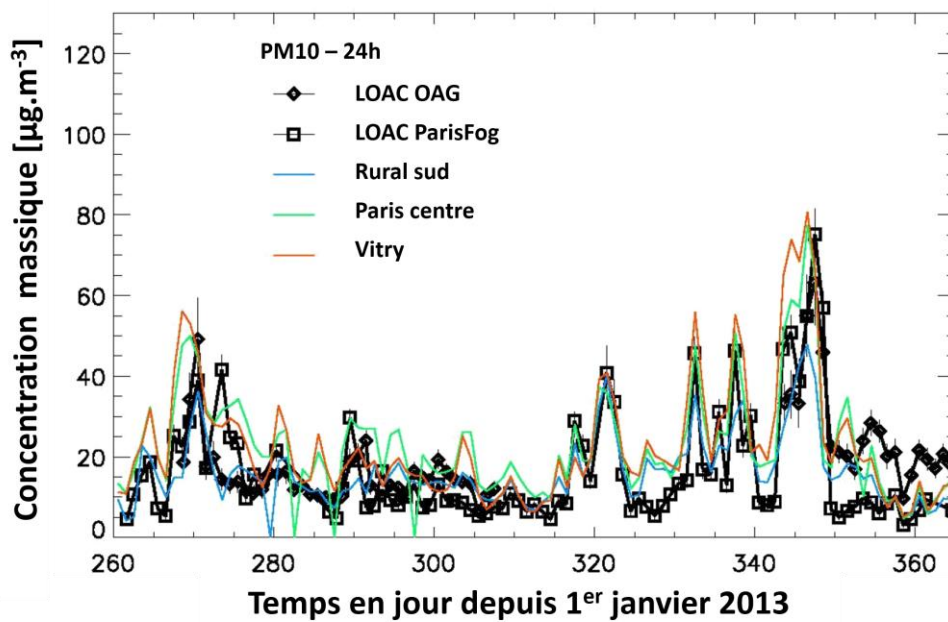


Figure 3.11 : Evolution des PM<sub>10</sub> moyenne sur 24 h de 3 TEOM du réseau Airparif et de 2 LOAC (adapté d'après Renard et al., 2016a)

### c. Conclusion

L'inter-comparaison en laboratoire ainsi qu'en milieu environnemental montre une bonne capacité du LOAC à rendre compte de la distribution en taille des particules ainsi que de la concentration massique calculée grâce à la typologie. Les accords en concentrations par gamme de taille entre LOAC et les d'autres techniques de mesure sont meilleurs pour les gammes de tailles supérieures à 0,5 µm. Le LOAC montre de bonnes performances en milieu troposphérique où la concentration de particules est relativement élevée comparée à la stratosphère.

## 3.2 Evaluation des performances du LOAC sous ballons météorologiques pour l'étude de la stratosphère

Ce chapitre présente mes travaux sur le comportement instrumental du LOAC en stratosphère en conditions de vols sous ballons météorologiques. Une première étape a consisté à étudier le comportement de certains des organes du LOAC estimés être les plus sensibles aux conditions environnementales (laser, pompe, électronique, procédure d'auto-calibration) au travers de tests en laboratoire et en conditions réelles de vols. Ces tests m'ont permis de produire une première estimation de l'incertitude en concentration sur LOAC pour les conditions de vols sous ballons météorologiques liée à la procédure d'auto-calibration. La découverte d'une limite dans la capacité du LOAC à mesurer de faibles concentrations de particules est apparue être un biais limitant l'utilisation du LOAC en stratosphère. Cette limite a fait l'objet d'une attention particulière. Dans une seconde étape, j'ai pu interpréter les résultats d'inter-comparaisons entre deux LOAC d'une part, et entre un LOAC et un wOPC d'autre part en conditions de vols stratosphériques, puis discuter de la pertinence de l'utilisation du LOAC sous ballons météorologiques pour l'étude de la stratosphère.

Le ballon météorologique, également appelé BLD (Ballon Léger Dilatable), désigne une enveloppe dilatable contenant un gaz plus léger que l'air (hydrogène ou hélium). Ce type de ballon permet de produire une ascension à une allure moyenne de 5 m.s<sup>-1</sup> environ, atteignant une trentaine de kilomètres d'altitude en 1h30 à 2 h. L'altitude d'éclatement désigne l'altitude maximale atteinte par le ballon où l'enveloppe éclate sous la pression du gaz (Figure 3.12).

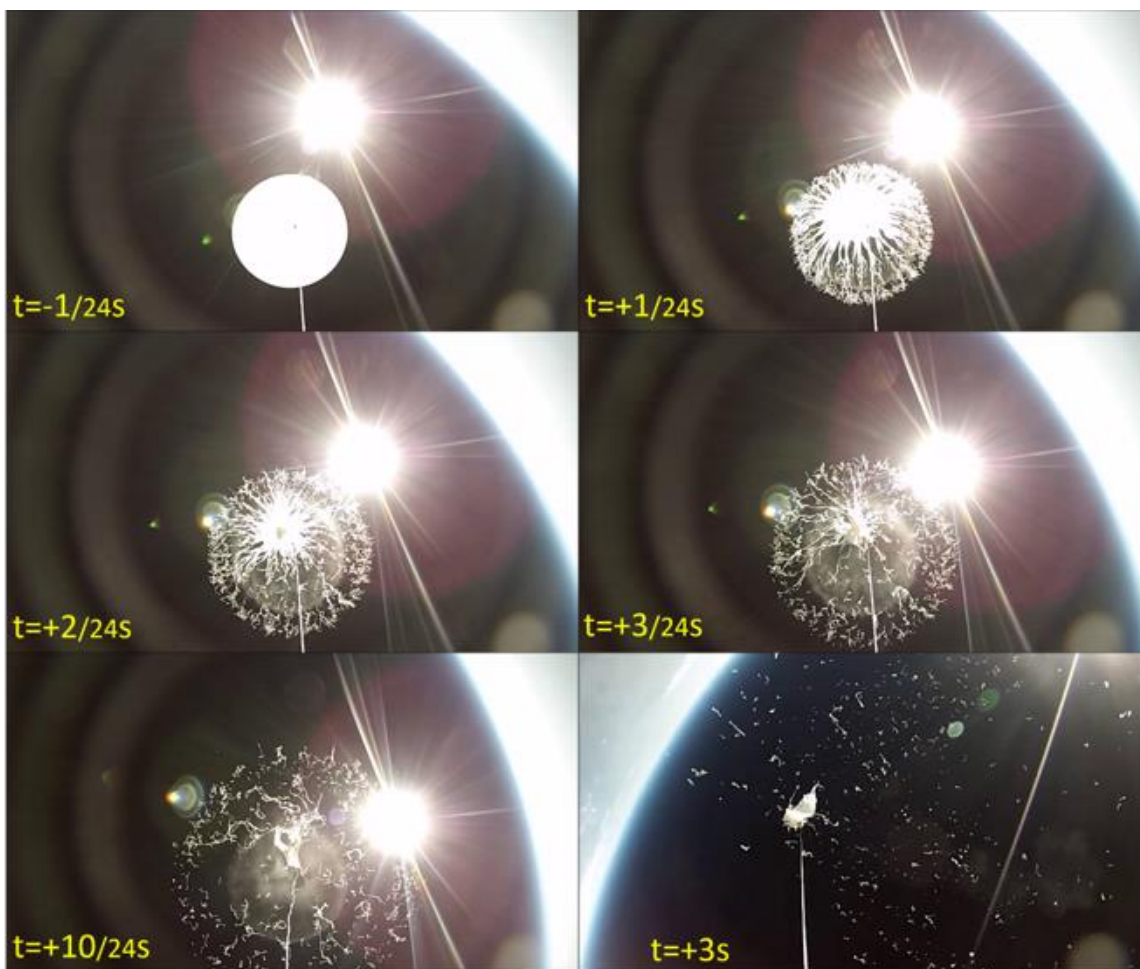


Figure 3.12 : Cinématique d'éclatement d'un ballon météorologique ayant atteint son plafond vers 35 km, la caméra est positionnée sur la nacelle en direction du ballon, le soleil est sur la droite. Le temps est indiqué en seconde par rapport à l'éclatement (Remerciements K. Foster)

Le LOAC dans sa configuration de vol ballon météorologique (Figure 3.13) se compose des éléments suivants :

- un ballon météorologique
- un parachute
- environ 10 mètres de drisse aéronautique
- Une nacelle de vol en polystyrène comprenant un LOAC et sa pompe ainsi qu'une sonde météorologique M10 MétéoModem permettant la mesure de la température, de l'hygrométrie et de la position GPS

Lors de l'ascension du ballon, l'instrument est soumis à des variations de son environnement. La vitesse ascensionnelle, la température, la pression ainsi que la dose de rayonnement cosmique évoluent avec l'altitude. Ces variations des conditions environnementales ont une influence sur la mesure à différents niveaux. La trajectoire générale du ballon ainsi que la zone estimée de chute peuvent être modifiées en choisissant le lieu et la date du lâcher de ballon et ce en se basant sur des outils de simulation de trajectoire. Ces outils simples d'utilisation et faciles d'accès sont à notre disposition pour permettre de prendre une décision sur le lancement de ballon (par exemple : l'outil de prévision de trajectoire de l'université du Wyoming : [http://weather.uwyo.edu/polar/balloon\\_traj.html](http://weather.uwyo.edu/polar/balloon_traj.html) ou les différents outils dédiés à l'instrumentation embarqué sous ballons de haute altitude mis à la disposition par l'université de Cambridge : <http://habhub.org/>).

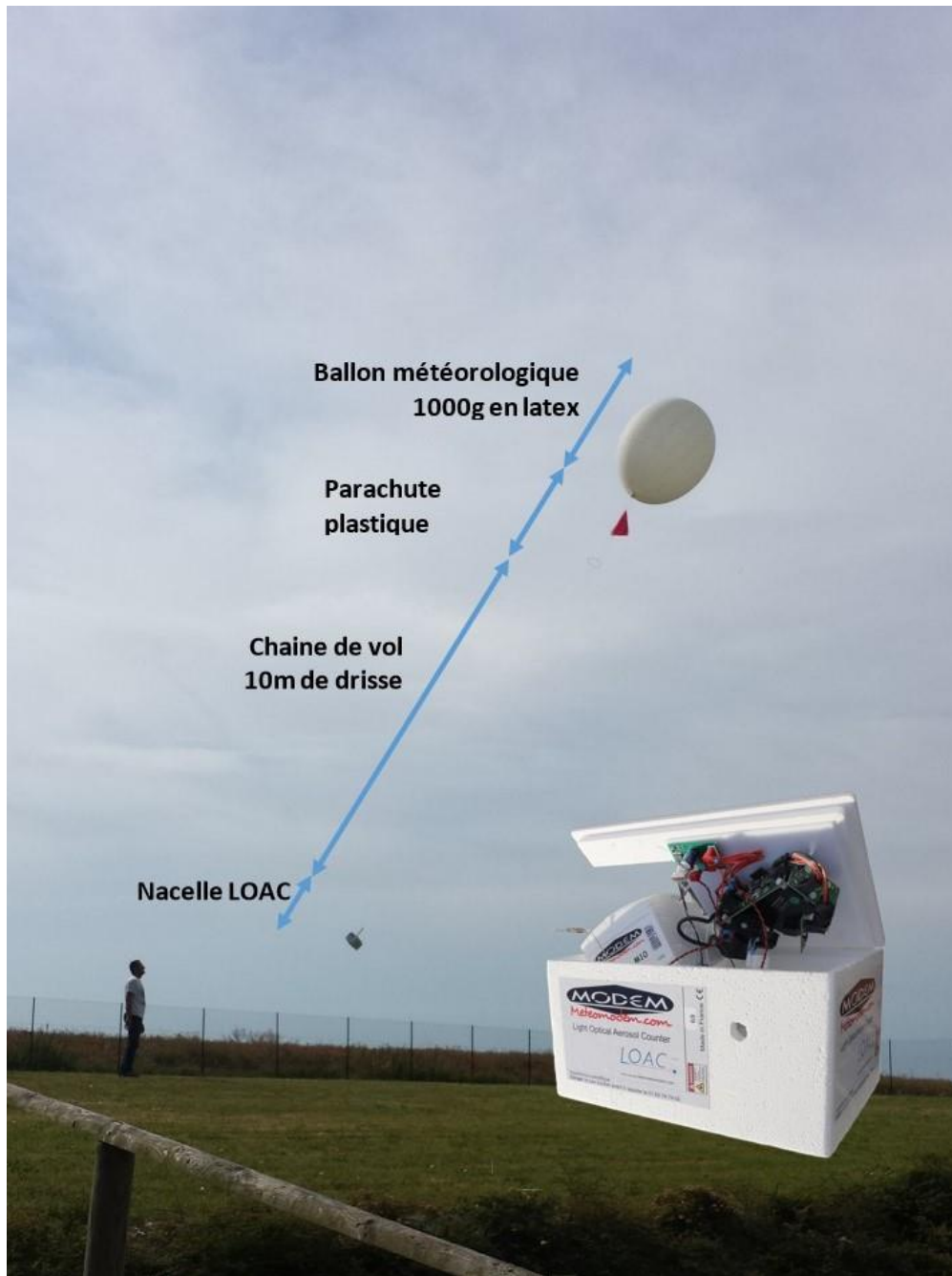


Figure 3.13 : Photographie d'un lâcher de LOAC sous ballon météorologique présentant les différents éléments constitutifs de la chaîne de vol

Après éclatement du ballon, l'instrument redescend sous parachute puis touche le sol avec une vitesse inférieure à  $8 \text{ m.s}^{-1}$  et est retrouvé grâce à sa géolocalisation (Figure 3.14). Suivant l'état de la nacelle et du nombre de vol du LOAC, il sera possible ou non de reconditionner puis de lâcher une nouvelle fois l'instrument.

Les données mesurées par les capteurs sont envoyées par télémétrie et enregistrées au sol. Ces données ne sont pas stockées à bord de la nacelle. Afin de pouvoir transmettre l'information au sol sans perturber la mesure, le fonctionnement du LOAC est adapté pour son utilisation avec une télémétrie. La transmission de l'information LOAC au sol se fait toutes les secondes sur une durée de 0,35 seconde. Pendant cette période de transmission, les données ne sont pas enregistrées. Il n'y a donc que 0,65 seconde de mesures toutes les secondes. Pour une vitesse ascensionnelle moyenne de  $5 \text{ m.s}^{-1}$ , 1,7 m tous les 5 m ne sont pas enregistrés.

### 3.2 Evaluation des performances du LOAC sous ballons météorologiques pour l'étude de la stratosphère



Figure 3.14 : A gauche, photographie quelques instants avant le lâcher d'un LOAC. Au centre, récupération de la nacelle après un vol. A droite, récupération de parachute et du ballon météorologique.

#### 3.2.1 Influence des conditions de vols sur le laser LOAC

Nous considérons que le laser du LOAC n'est influencé que par la température et que les autres variables environnementales n'ont qu'une influence négligeable sur son fonctionnement. La température de l'atmosphère au-dessus de la France évolue en fonction de l'altitude et de la saison (Figure 3.15). En troposphère, le gradient vertical de température est d'environ  $-6$  à  $-8$   $^{\circ}\text{C.km}^{-1}$  avec des variations locales importantes selon les conditions d'humidité et de stabilité de l'atmosphère. En stratosphère toujours au-dessus de la France, le gradient vertical est fortement influencé par la saison. En hiver, la température peut être quasiment constante avec l'altitude entre 20 et 40 km, tandis que pendant la période d'été le gradient moyen est de  $2$   $^{\circ}\text{C.km}^{-1}$ . La Figure 3.15 représente ces variations (dans la zone de  $38^{\circ}$  à  $50^{\circ}$  N et de  $-6^{\circ}$  à  $10^{\circ}$  E) à travers les données météorologiques ré-analysées Era-Interim du centre Européen ECMWF (Dee et al., 2011).

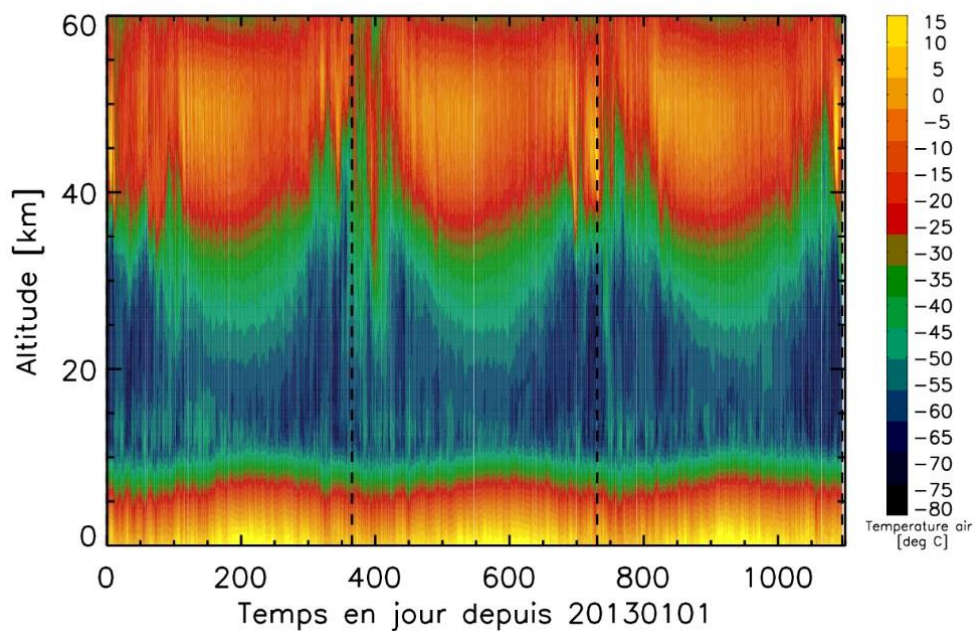


Figure 3.15 : Température moyenne de l'air au-dessus de la France (dans la zone  $38$  à  $50$   $^{\circ}$ N et  $-6$  à  $10$   $^{\circ}$ E) pour la période 2013 à 2015 (données ERA-Interim de l'ECMWF)



La nacelle LOAC n'est pas hermétiquement close, l'air échantillonné par la pompe est refoulé à l'intérieur de celle-ci, cependant la température dans la nacelle n'est pas celle de l'air. Des mesures en différents points à l'intérieure de la nacelle et sur le corps du laser du LOAC lors de vols sous ballons météorologiques montrent des températures quasiment toujours supérieures à la température de l'air (Figure 3.16). Ces mesures de températures ont été effectuées en hiver au-dessus de la France, période pendant laquelle le gradient de température en stratosphère est relativement nul et représente les conditions les plus froides.

La Figure 3.16 représente les résultats des mesures de température lors de deux vols LOAC différents. La température de l'air est représentée en noir tandis que les courbes de couleur représentent les températures de surface dans différents points de la nacelle (parois intérieures, proche des batteries et corps du laser). La température dans la nacelle est toujours supérieure à  $-20^{\circ}\text{C}$  en tous points de la nacelle, ce qui représente des températures supérieures aux limites nominales de fonctionnement des composants électroniques LOAC. Durant la montée, la variation de température sur les parois internes ou sur le corps du laser est de l'ordre de  $-20^{\circ}\text{C}\cdot\text{h}^{-1}$ .

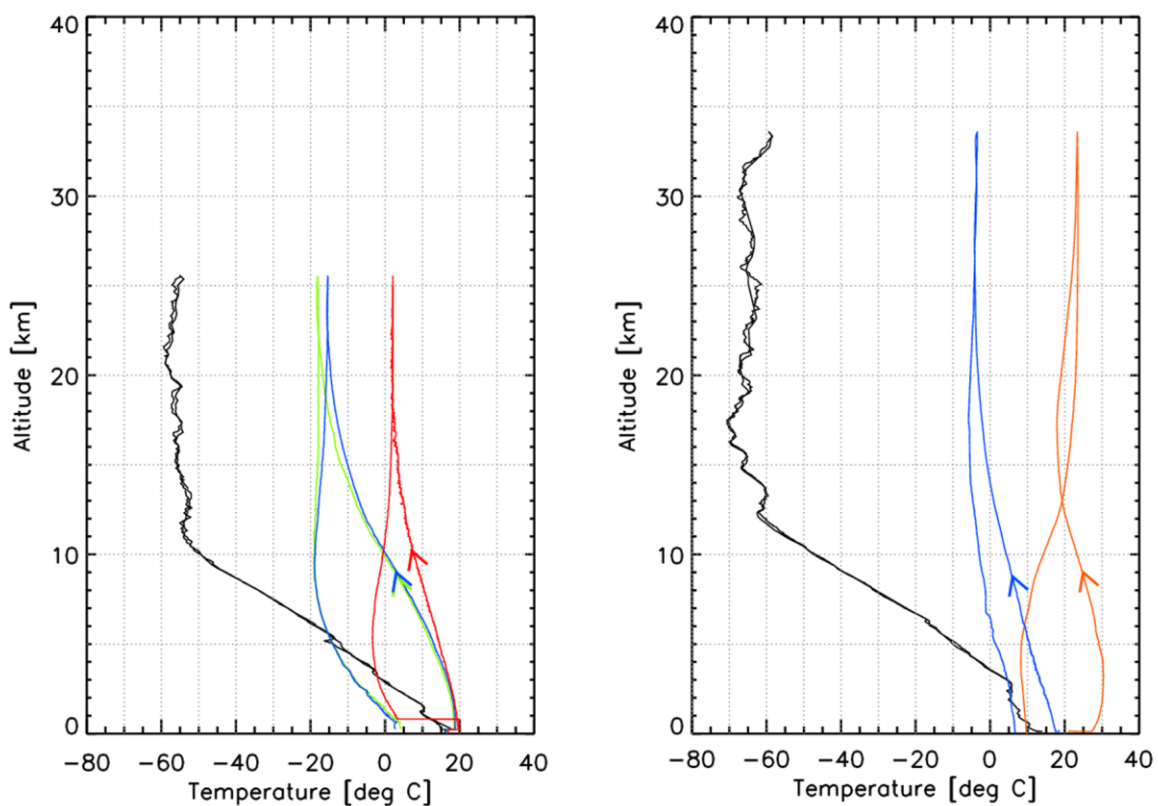


Figure 3.16 : Profil de température de l'air (courbes noires) et à différents points (courbes en couleur) dans la nacelle pour deux vols LOAC, les flèches indiquent le sens de la montée du ballon. Figure de gauche, les courbes verte et bleue représentent respectivement la température du fond et du côté des faces internes de la nacelle, tandis que la courbe rouge représente la température de surface des batteries LOAC. A droite, la courbe bleue représente la température du fond de la face interne de la nacelle, la courbe orange représente la température de surface du laser LOAC

Le laser est un composant qui émet de la chaleur lorsqu'il est en fonctionnement ce qui maintient sa température au-dessus de  $15^{\circ}\text{C}$  en stratosphère (Figure 3.16). Sa dépendance en température est donc étudiée sur une étendue de température couvrant la plage  $15$  à  $30^{\circ}\text{C}$ . Pour connaître la variation de la puissance lumineuse de la diode laser pour différentes températures, le laser est placé dans une enceinte thermique au LPC2E. Le photomètre utilisé est un PM100D de la marque Thorlabs (GmbH) paramétré sur la longueur d'onde du laser LOAC pour mesurer sa puissance totale. La mesure de ce capteur est sensible à la température, il est donc placé de façon à mesurer la puissance du laser mais à l'extérieur de l'enceinte possédant une face vitrée. Dans cette configuration environ  $1/3$  de la puissance lumineuse du laser LOAC

### 3.2 Evaluation des performances du LOAC sous ballons météorologiques pour l'étude de la stratosphère

est transmise. Nous réalisons ainsi une mesure relative de la dépendance de la puissance du laser LOAC à la température.

Afin de l'affranchir des vibrations de l'enceinte réfrigérée lorsqu'elle est en fonctionnement, ce qui introduit du bruit dans la mesure du flux lumineux diffusé à travers la paroi vitrée, la réfrigération est arrêtée après stabilisation à  $-40\text{ }^{\circ}\text{C}$ . La température dans l'enceinte croît lentement de manière passive jusqu'à atteindre la température de la pièce ce qui permet d'effectuer une rampe de température de  $-40\text{ }^{\circ}\text{C}$  à  $28\text{ }^{\circ}\text{C}$  en 30h environ. La Figure 3.17 représente la variation de la puissance du laser atténué en fonction de la température de surface du corps du laser LOAC. La zone grise représente la plage de fonctionnement en température du corps du laser LOAC lors d'un vol météorologique.

Nous constatons qu'il existe en première approximation une dépendance linéaire entre la température dans l'enceinte et la puissance du laser LOAC dans la gamme  $-40$  à  $28\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Cette corrélation est décrite par l'équation donnant :  $P_{LASER} = 0.01 \times T_{enceinte} + 8.67$  avec  $P_{LASER}$  la puissance laser LOAC mesurée à travers la face vitrée de l'enceinte en mW et  $T_{enceinte}$  la température du corps du laser en  $^{\circ}\text{C}$ . La variation de la puissance du laser LOAC dans la gamme  $-40$  à  $30\text{ }^{\circ}\text{C}$  représente en absolu  $0.7\text{ mW}$  et  $8\%$  en relatif.

Cependant, dans les conditions d'un vol sous ballon météorologique, la température du corps du laser évolue entre  $15$  et  $30\text{ }^{\circ}\text{C}$ , cette plage de température est représentée par la zone grise sur la Figure 3.17, ce qui représente une variation du flux au maximum de  $3\%$  selon l'approximation linéaire. Le diamètre de la particule déterminé par la méthode LOAC étant une fonction linéaire de la puissance du laser, la propagation de ces  $3\%$  impacte directement le diamètre mesuré. Cependant, nous estimons que cette fluctuation est non significative devant les autres sources d'incertitudes. Nous considérons que laser LOAC fonctionne de manière nominale pendant les vols sous ballon météorologique.

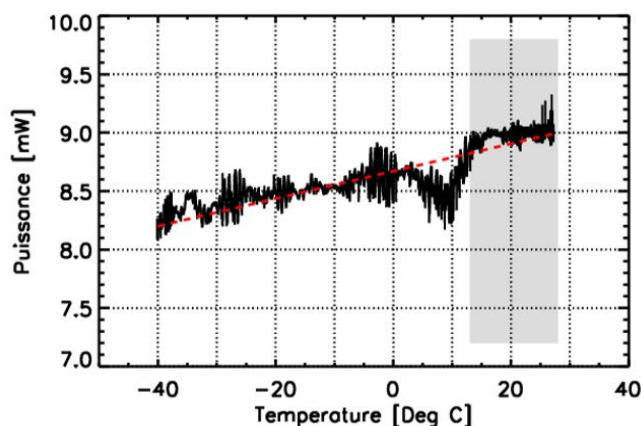


Figure 3.17 : Représentation de la puissance lumineuse en fonction de la température du corps du laser LOAC. La zone grise représente la plage de fonctionnement sous ballon météorologique. La courbe pointillée rouge représente la tendance linéaire de la dépendance la puissance en température

#### 3.2.2 Influence des conditions de vol sur le débit de la pompe

##### a. Dépendance du débit à la température à basse pression

Le prélèvement nécessite que l'aérosol soit acheminé jusqu'à la cellule de détection. Le LOAC utilise une pompe volumétrique placée après la cellule de détection, permettant de produire l'écoulement de l'aérosol. Nous avons besoin de caractériser le débit volumique car nous souhaitons rendre compte de la concentration de particules par unité de volume d'air indépendamment de la pression. Le débit volumique représente le volume qui est prélevé par unité de temps. Le débit volumique est différent du débit massique qui est la quantité de matière en masse qui est prélevé par unité de temps. Lors d'un vol météorologique à débit volumique constant, le débit massique décroît rapidement avec la pression puisque la densité de l'air décroît avec l'altitude.

Mesurer un débit volumique à basse pression et basse température n'est pas une opération simple. De plus, la pompe LOAC utilisée lors des vols météorologiques possède un vide limite très bas (environ 25 hPa à 1000 hPa – données constructeur Thomas « *rotary vane pump* » modèle G01-K-LC), ce qui signifie que cette pompe est sensible à des pertes de charge très faibles. Un débitmètre volumique classique, fonctionnant à pression ambiante et dont le principe de mesure nécessite de s'opposer à l'écoulement, produit une trop grande perte de charge à basse pression (Dupuis et Delmas, 2007). Le débitmètre utilisé pour ces tests a été développé au LPC2E pour les mesures sous ballon. Le principe repose sur la mesure différentielle de pression autour d'un élément annulaire introduisant une perte de charge de 10 Pa (Alvesteffer et Eget, 1998). Le débitmètre ainsi que les raccords représentent 25 Pa de perte de charge lorsqu'ils sont installés dans l'enceinte de test. 25 Pa représentent moins de 5% de la pression absolue atteinte à l'altitude moyenne où éclatent les ballons météorologiques. Ce débitmètre n'a pas d'influence sur le débit volumique de la pompe LOAC. Les tests ont été réalisés dans l'enceinte climatique de la Plateforme Intégration Tests (PIT) de l'Observatoire de Versailles Saint-Quentin (OVSQ LATMOS). Lors de ces tests, un LOAC dans sa configuration de vol météorologique est placé dans l'enceinte permettant de faire varier indépendamment la pression et la température.

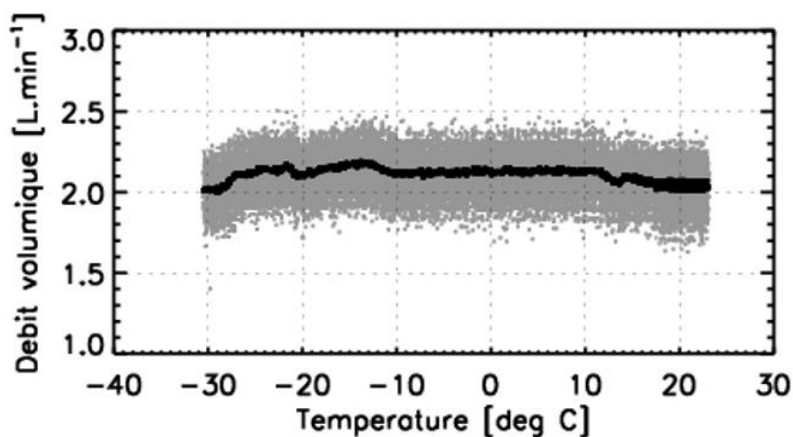


Figure 3.18 : Dépendance du débit volumique de la pompe LOAC à la température de l'air à basse pression. Les points gris sont les mesures de débit à 0,5 Hz et la ligne noire est la moyenne glissante sur une minute

La Figure 3.18 représente la variation du débit volumique de la pompe LOAC en fonction de la température de l'air alors que la pression de l'enceinte est fixée à  $12 \pm 2$  hPa. Cette mesure est obtenue en plaçant l'étuve à basse pression et basse température pendant plusieurs heures. Ensuite la régulation de la température est éteinte et la température de l'enceinte croît lentement de  $-30^{\circ}\text{C}$  à  $20^{\circ}\text{C}$  en 14 h environ tandis que la basse pression est maintenue. Lors de ce test, le débit volumique de la pompe demeure constant à  $2,1 \pm 0,2$  L.min<sup>-1</sup>. La dispersion de 10% du débit volumique est comprise dans la variation nominale de la pompe LOAC.

#### b. Dépendance du débit à la pression à température ambiante

Les tests de variations de pression ont été menés à température ambiante. La variation de la pression dans une enceinte placée à basse température nécessite un matériel très sophistiqué non disponible lors de cette étude. Il a été possible de faire varier la pression d'un seuil de consigne à un autre sans pouvoir toutefois produire de gradient de pression représentatif de l'ascension d'un ballon météorologique.

### 3.2 Evaluation des performances du LOAC sous ballons météorologiques pour l'étude de la stratosphère

La Figure 3.19 représente l'évolution de la pression dans l'enceinte appliquée à la pompe LOAC. Ces résultats ont été obtenus en 3 h de tests, plusieurs consignes de pression à température ambiante ne révèlent pas de corrélation visible entre le débit volumique et la pression dans l'enceinte. Le débit volumique moyen de la pompe est mesuré à  $2.3 \pm 0.2$  L.min<sup>-1</sup> dans la gamme 10 à 1000 hPa. Cette dispersion est conforme à la variation du débit volumique des pompes LOAC. La moyenne du débit est différente de la moyenne du test à basse pression car deux pompes différentes (mais du même modèle) ont été utilisées.

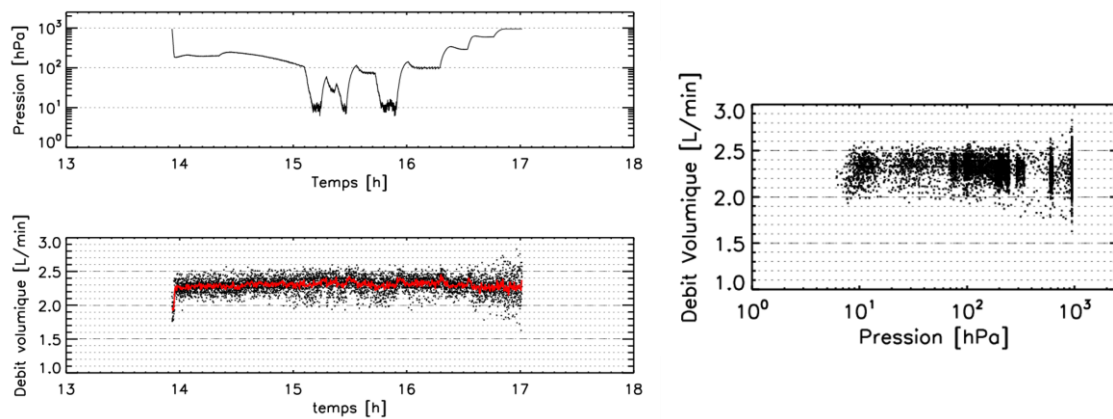


Figure 3.19 : Représentation des résultats des tests portant sur l'influence de la pression sur le débit volumique de la pompe de vol sous ballon météorologique LOAC. À gauche variation de la pression et du débit en fonction du temps, la ligne rouge représente la moyenne glissante sur une minute. À droite débit volumique en fonction de la pression

#### 3.2.3 Influence des conditions de vols sur l'électronique

##### a. Influence des variations de température

Lors des mesures sous ballons météorologiques, des variations de températures trop importantes peuvent produire des mesures inférieures au bruit interpolé lors de l'opération de post-traitement. Cet effet est produit par l'interpolation linéaire des phases de recherche du bruit (comme décrit au chapitre 3.1.4) : si la variation du bruit en fonction de la température est de forme logarithmique, l'interpolation linéaire du bruit soustrait à la mesure conduit à sous-estimer les concentrations. Cet effet est pris en compte lors du post-traitement. Cependant, quand la variation est trop importante les données ne sont pas retenues, cela intervient principalement en haute troposphère où les gradients de température sont importants.

##### b. Influence du rayonnement cosmique

Le post-traitement prend en compte la possibilité que des particules de hautes énergies interagissent avec le système LOAC. Le rayonnement cosmique est défini comme la précipitation dans l'atmosphère de particules de hautes énergies provenant de l'espace (photons, protons, neutrons, mésons et autres particules subatomiques très énergétiques, Dorman, 2013). Ces particules énergétiques proviennent de radio-galaxies, de quasars, d'explosions de supernova, de pulsars, d'étoiles doubles, du soleil et de la magnétosphère de Jupiter et Saturne (Dorman, 2013). Dans la suite de cette étude nous utilisons le terme de rayonnement cosmique pour désigner l'ensemble des particules cosmiques.

Ces particules énergétiques sont appelés cosmiques primaires tant qu'elles n'ont pas interagi avec l'atmosphère terrestre. Une faible proportion de ces particules cosmiques primaires atteint le sol. La grande majorité interagit avec l'atmosphère terrestre. Lors de cette interaction, une particule cosmique primaire produit une multitude de particules secondaires, qui produisent à leur tour d'autres particules secondaires. Une gerbe de particules secondaires est alors formée et se caractérise par un cône. Ces particules cosmiques secondaires sont moins énergétiques mais plus nombreuses et couvrent un plus grand volume. Il est statistiquement beaucoup plus probable d'interagir avec une particule cosmique secondaire qu'avec une primaire lors de l'expérimentation sous ballon.

A titre d'exemple, Zanini et al. (2003) donne la distribution verticale du flux de neutrons dans l'atmosphère (Figure 3.20). La dose de neutrons est nulle au sol, maximale vers 18 km et décroît avec l'altitude au-dessus de 20 km.

Le rayonnement cosmique réagit avec l'électronique embarqué sous ballon. Ces particules produisent une forte augmentation du bruit sur une courte durée. La procédure de post-traitement repère les sursauts de concentration de fortes amplitudes, s'ils sont isolés sur une ou deux mesures consécutives (sur 10 ou 20 secondes) et ces données sont supprimées lors du post-traitement des données. Dans de rares cas, une perturbation due à un rayon cosmique se produit pendant la phase de recherche de bruit. Il faut dans ce cas rejeter toute la séquence de mesure. Cependant, ces situations sont rares et n'influencent qu'un nombre limité de vols.

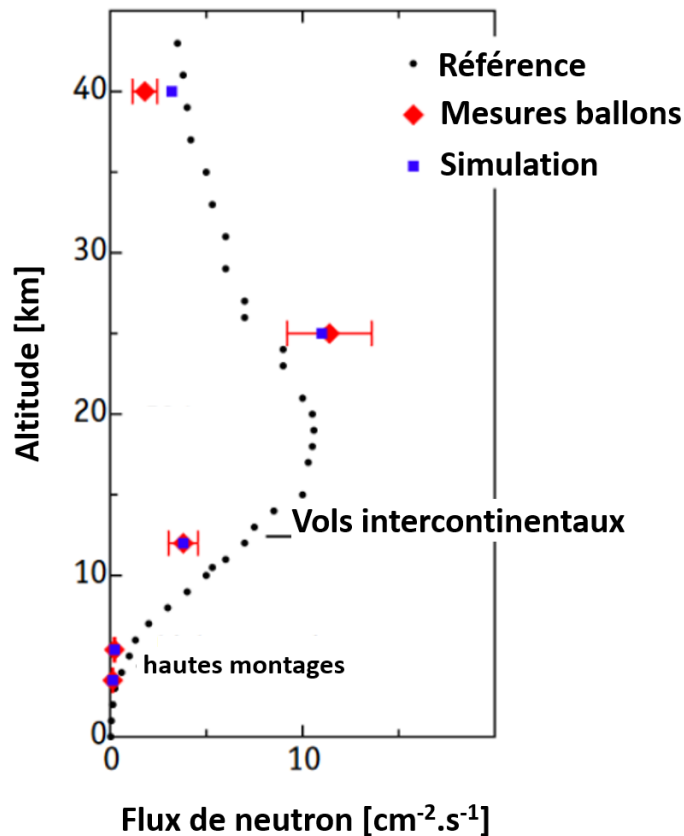


Figure 3.20 : Flux de neutron en fonction de l'altitude selon le résultat de simulation et de mesures sous ballons (adapté d'après Zanini et al., 2003)

### 3.2.4 Influence des conditions de vols sur le seuil de détection

Le seuil de détection est réévalué toutes les 10 minutes en vol lors de la phase de recherche de bruit. Le seuil de détection est dépendant de la température (Figure 3.21). Plus la température est haute et plus la composante continue du bruit des photodiodes et de leur chaîne d'amplification est grande. Cette relation n'est pas linéaire et fixe le fonctionnement du LOAC dans une plage de température de son électronique comprise environ entre  $-10^{\circ}\text{C}$  et  $35^{\circ}\text{C}$ . Au-delà de ces limites, le critère de validité du bruit ne peut pas être satisfait. Cette température est celle de l'électronique de l'instrument qui est différente de la température de l'air. L'instrument dégageant de la chaleur, la température de l'électronique est plus élevée que la température de l'air ambiant ce qui permet un fonctionnement du LOAC à plus basse température extérieure que  $-10^{\circ}\text{C}$ . Lors de l'ascension sous ballons météorologiques le seuil de détection n'atteint jamais la limite inférieure de 10 mV.

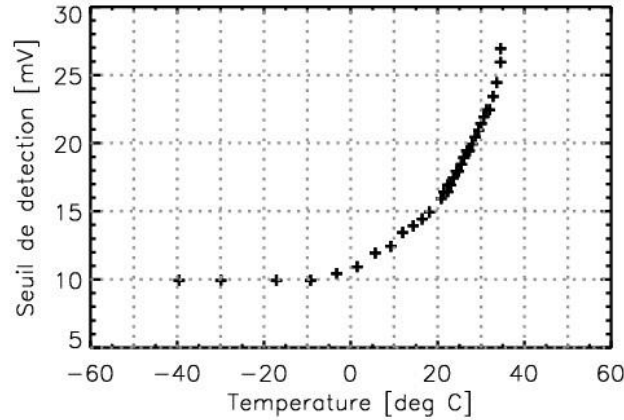


Figure 3.21 : Représentation de la dépendance du seuil de détection avec la température de l'électronique

### 3.2.5 Influence des conditions de vols sur l'incertitude en concentration

a. Incertitude sur les 5 premières gammes de taille (0,2 à 0,7  $\mu\text{m}$ )

Lors de l'ascension du ballon météorologique, la variation de température sur l'électronique conduit le LOAC à modifier son seuil de détection comme décrit au chapitre 3.1. Le seuil de détection est déterminé à 0,5 mV près, ce qui signifie que les gammes de taille sont déterminées à 0.05  $\mu\text{m}$  près, cette valeur représente une demi-gamme de taille pour les 5 premières gammes de tailles.

A partir de cette incertitude d'une demi-gamme de taille, une incertitude en concentration est déterminée en se basant sur la concentration des gammes de tailles adjacentes. Pour chaque gamme de taille  $i$ , un encadrement sous la forme d'un écart à la concentration est donné pour rendre compte d'un décalage d'une demi-gamme de taille vers les plus petites tailles ou les plus grandes. Ces écarts inférieurs et supérieurs pour la gamme de taille  $i$ , respectivement notés  $e_{inf}^i$  et  $e_{sup}^i$  sont calculés en interpolant la concentration de la gamme de taille  $i$  à  $\pm 1/4$  de la concentration adjacente tel que décrit par l'équation (2).

$$e_{inf}^i = \left| \frac{C_{i-1} + C_i}{4} - C_i \right| \quad \text{et} \quad e_{sup}^i = \left| C_i - \frac{C_i + C_{i+1}}{4} \right| \quad , i \in [1; 5] \quad (2)$$

Afin d'estimer la borne inférieure de l'incertitude de la première gamme de taille ( $e_{inf}^1$ ), nous construisons une gamme de taille zéro par interpolation linéaire de la première et la seconde gamme de taille. Cette interpolation linéaire relativement grossière, conduit à surestimer l'incertitude inférieure de la première gamme de taille, compte tenu de la forme a priori log-normale des distributions des concentrations des particules sulfatées centrées sur 0,16  $\mu\text{m}$  en basse stratosphère (SPARC, 2006).

Ce calcul simplifié de l'incertitude en concentration est appliqué à 7056 distributions en tailles LOAC obtenues lors de 95 vols sous ballons météorologiques. Ces distributions en tailles sont représentatives de conditions très diverses en troposphère et en stratosphère. Les incertitudes par gamme de tailles sont normalisées par la concentration, elles ne possèdent par conséquent pas d'unités (incertitude relative) Tableau 3.3.

Pour la suite de cette étude, l'incertitude moyenne sur la borne inférieure et supérieure de la première gamme de taille est considérée comme représentative de toutes les incertitudes en concentration.

L'incertitude en concentration sur la première gamme de taille est retenue comme la concentration sur la concentration cumulée compte tenu de la forme des distributions en tailles ainsi que des gammes de tailles LOAC. Cette source d'incertitude sur la détermination des gammes de tailles est considérée comme étant prépondérante sur le budget des incertitudes sur la concentration, cette hypothèse n'est cependant pas vérifiée.

Gamme de taille [ $\mu\text{m}$ ]	Incertitude relative sur la concentration		
	borne inférieure	borne supérieure	Moyenne
	$\frac{e_{inf}^i}{C_i}$	$\frac{e_{sup}^i}{C_i}$	
0,2 - 0,3	$1.33 \pm 0.06$	$0.23 \pm 0.02$	$0.78 \pm 0.06$
0,3 - 0,4	$1.25 \pm 0.06$	$0.21 \pm 0.01$	$0.73 \pm 0.06$
0,4 - 0,5	$1.09 \pm 0.07$	$0.23 \pm 0.02$	$0.66 \pm 0.07$
0,5 - 0,6	$0.99 \pm 0.08$	$0.22 \pm 0.02$	$0.61 \pm 0.08$
0,6 - 0,7	$0.90 \pm 0.07$	$0.25 \pm 0.03$	$0.58 \pm 0.08$

Tableau 3.3 : Liste des incertitudes relatives calculées à partir de l'incertitude sur la détermination du seuil de détection

b. Incertitude sur les gammes de taille 6 à 19 (0,7 à 50  $\mu\text{m}$ )

La détection des particules possédant une réponse optique correspondant aux gammes de tailles 6 à 19 ne relève pas de la détection statistique au sens décrit par Renard et al. (2016a). Pour ces gammes de tailles, la tension représentative des diamètres des particules mesurées par les photodiodes possède un rapport signal sur bruit assez élevé et chaque détection est donc considéré comme une particule. De plus, la largeur des gammes de tailles étant croissante à partir de la sixième gamme de taille, les incertitudes sur la concentration des gammes de tailles 6 à 19 ne sont que peu influencées par l'auto-calibration des gammes de tailles. Schématiquement, là où l'incertitude sur la détermination de la gamme de taille est de 0,05  $\mu\text{m}$  sur les gammes de taille de 0,1  $\mu\text{m}$  de largeur, cette incertitude chute rapidement lorsque la largeur de la gamme de taille augmente.

Renard et al. (2016a) estiment que l'incertitude sur la concentration est de  $\pm 60\%$ ,  $\pm 20\%$  et  $\pm 6\%$ , respectivement pour des concentrations de 0.01, 0.1 et 1 part.cm<sup>-3</sup>. Nous tiendrons compte de cette estimation pour les gammes de tailles de 6 à 19.

### 3.2.6 Influence de la limite de détection en stratosphère

La limite de détection décrite dans ce chapitre n'est pas à confondre avec l'efficacité instrumentale de détection décrite par Renard et al. (2016a) qui porte sur l'efficacité de détection statistique, ni avec le seuil de détection défini au chapitre 3.1 comme étant la borne inférieure de la première gamme de taille.

Nous définissons la limite de détection comme la valeur à partir de laquelle le résultat de la mesure LOAC peut être considéré comme une détection de particule. Cette notion est introduite après avoir observé par l'expérimentation que pour une concentration nulle, c'est-à-dire pour aucune particule dans la chambre de détection LOAC et après post-traitement des données brutes, l'instrument annonce une concentration non nulle. En dessous de la limite de détection, nous considérons qu'il n'est pas possible d'affirmer que la valeur mesurée est nulle ou non, autant qu'il n'est pas possible d'affirmer que le résultat de la mesure soit du bruit de mesure ou le résultat d'une détection.

La valeur de cette limite de détection est déterminée à partir de la concentration résiduelle, définie comme la concentration qui résulte de la mesure lorsqu'aucune particule n'est présente dans la cellule de détection. La concentration résiduelle est admise comme étant produite par les réflexions du faisceau laser dans la cellule de détection ainsi que de la diffusion des particules inférieures à la centaine de nanomètres. La concentration résiduelle est déterminée par l'expérimentation par l'échantillonnage d'un aérosol traversant un dispositif de filtration haute performance de marque TSI (HEPA capsule de marque TSI modèle 1602051). L'efficacité des filtres a été testée avec un compteur à noyaux de nucléation (CNC de marque TSI modèle 3788) et vérifie que les filtres produisent un aérosol contenant une concentration inférieure à 10<sup>-2</sup> particule de diamètre supérieur à 2,5 nm par cm<sup>-3</sup> cumulée sur 10 minutes.

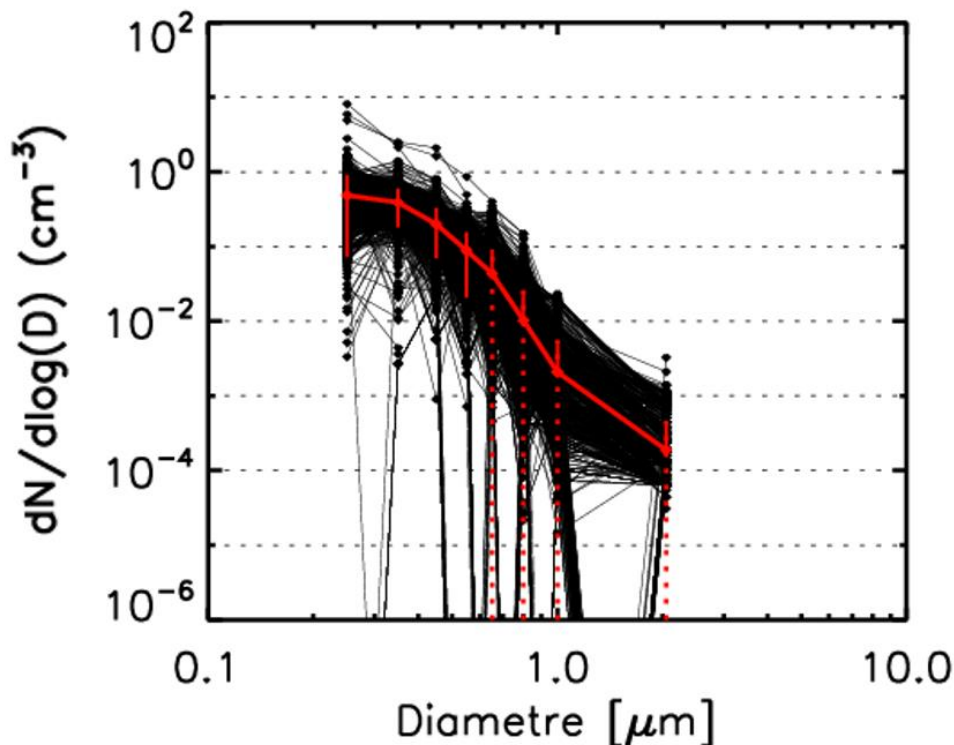


Figure 3.22 : Distribution des concentrations résiduelles moyennes sur 10 minutes par gamme de taille. Les courbes noires représentent les essais effectués sur 16 sessions de mesures pour 13 LOAC différents. La courbe rouge représente la moyenne accompagnée de son incertitude déterminée comme sa dispersion à  $1 \sigma$ , les pointillés rouges indiquent les cas où la dispersion est supérieure à la moyenne

La Figure 3.22 représente la distribution en taille des concentrations résiduelles des 16 sessions de tests portant sur 13 LOAC différents. Les courbes noires représentent la distribution moyenne sur 10 minutes et la courbe rouge la moyenne de ces moyennes. Ces concentrations résiduelles sont obtenues dans des conditions de températures stabilisées lors desquelles le seuil de détection est constant et en absence de parasite électromagnétique.

En absence de particule dans la cellule de détection, le LOAC fournit une concentration résiduelle moyenne sur 10 minutes de  $1,95 \cdot 10^{-1} \pm 1,66 \cdot 10^{-1} \text{ cm}^{-3}$  pour la première gamme de taille, l'incertitude associée étant directement 1 écart type. En moyenne sur 1 minute, cette concentration résiduelle pour la première gamme de taille est de même moyenne avec une dispersion plus importante  $1,95 \cdot 10^{-1} \pm 2,84 \cdot 10^{-1} \text{ cm}^{-3}$ . Les valeurs pour les 10 premières gammes de tailles sont reportées dans le Tableau 3.5. Les concentrations résiduelles moyennes sur 10 et 1 minutes cumulées sur ces 10 gammes de tailles (0,2 à 7,5  $\mu\text{m}$ ) sont respectivement  $3,76 \cdot 10^{-1} \pm 2,30 \cdot 10^{-1} \text{ cm}^{-3}$  et  $3,80 \cdot 10^{-1} \pm 4,01 \cdot 10^{-1} \text{ cm}^{-3}$ .

L'extinction moyenne résiduelle est calculée à la longueur d'onde 532 nm pour des particules sulfatées sphériques d'indice de réfraction purement diffusantes ( $1,45 + 0i$ ). Les extinctions résiduelles moyennes sont respectivement  $4,52 \cdot 10^{-5} \pm 3,59 \cdot 10^{-5} \text{ km}^{-1}$  et  $4,64 \cdot 10^{-5} \pm 1,01 \cdot 10^{-4} \text{ km}^{-1}$  sur 10 minutes et 1 minute.

La limite de détection est construite à partir de la moyenne des concentrations résiduelles à laquelle est ajoutée la valeur de la dispersion  $1 \sigma$  pour tenir compte des variations statistiques de ces concentrations. Les limites de détections exprimées en concentration cumulée ainsi qu'en extinction sont reportées dans le Tableau 3.4. Pour la suite de cette étude, nous utiliserons les limites de détection moyennes sur 10 minutes et 1 minute à  $1 \sigma$ .



Gamme de taille [ $\mu\text{m}$ ]	Concentration résiduelle [ $\text{cm}^{-3}$ ]	
	10 minutes (1 minute)	10 minutes (1 minute)
0,2 – 0,3	$1,95 \cdot 10^{-1}$ ( $1,93 \cdot 10^{-1}$ )	$1,66 \cdot 10^{-1}$ ( $2,84 \cdot 10^{-1}$ )
0,3 – 0,4	$1,11 \cdot 10^{-1}$ ( $1,11 \cdot 10^{-1}$ )	$5,90 \cdot 10^{-2}$ ( $1,16 \cdot 10^{-1}$ )
0,4 – 0,5	$4,44 \cdot 10^{-2}$ ( $4,42 \cdot 10^{-2}$ )	$2,88 \cdot 10^{-2}$ ( $5,12 \cdot 10^{-2}$ )
0,5 – 0,6	$1,60 \cdot 10^{-2}$ ( $1,63 \cdot 10^{-2}$ )	$1,23 \cdot 10^{-2}$ ( $2,21 \cdot 10^{-2}$ )
0,6 – 0,7	$6,70 \cdot 10^{-3}$ ( $6,67 \cdot 10^{-3}$ )	$7,38 \cdot 10^{-3}$ ( $1,12 \cdot 10^{-2}$ )
0,7 – 0,9	$2,57 \cdot 10^{-3}$ ( $2,49 \cdot 10^{-3}$ )	$3,86 \cdot 10^{-3}$ ( $4,65 \cdot 10^{-3}$ )
0,9 – 1,1	$4,18 \cdot 10^{-4}$ ( $4,33 \cdot 10^{-4}$ )	$6,89 \cdot 10^{-4}$ ( $1,07 \cdot 10^{-3}$ )
1,1 – 3,0	$1,74 \cdot 10^{-4}$ ( $1,77 \cdot 10^{-4}$ )	$2,50 \cdot 10^{-4}$ ( $4,39 \cdot 10^{-4}$ )
3,0 – 5,0	$< 1 \cdot 10^{-6}$	$< 1 \cdot 10^{-5}$
5,0 – 7,5	$< 1 \cdot 10^{-6}$	$< 1 \cdot 10^{-5}$

Tableau 3.5 : Liste des concentrations résiduelles et leur dispersion pour les 10 premières gammes de taille LOAC en moyenne sur 1 et 10 minutes

Degré de confiance	Limite de détection en	
	concentration [ $\text{cm}^{-3}$ ]	extinction [ $\text{km}^{-1}$ ]
	10 minutes (1 minute)	10 minutes (1 minute)
$1 \sigma$	$6,1 \cdot 10^{-1}$ ( $7,9 \cdot 10^{-1}$ )	$8,1 \cdot 10^{-5}$ ( $1,4 \cdot 10^{-4}$ )

Tableau 3.4 : Liste des limites de détection en concentration et en extinction pour deux temps d'intégration différents

En stratosphère lors de périodes de fond, les extinctions à 532 nm de l'ordre de quelques  $10^{-4} \text{ km}^{-1}$  sont mesurées par les satellites à des altitudes vers 30 km aux latitudes tropicales et 25 km aux latitudes moyennes,  $10^{-5} \text{ km}^{-1}$  à 30 km aux latitudes moyennes (Kremser et al., 2016; SPARC, 2006). La limite de détection restreint donc la capacité du LOAC à décrire le contenu en aérosol en moyenne stratosphère lors des périodes de fond.

- Remarque sur les résidus de concentration/extinction

Dans cette étude, aucune correction liée aux résidus (concentrations/extinctions résiduelles) n'est appliquée sur les données LOAC.

La correction à définir sur les données n'est pas simple à établir pour plusieurs raisons. D'une part, chaque LOAC possède une limite de détection propre qui dépend de sa moyenne résiduelle et de la dispersion de cette moyenne. D'autre part, l'évolution des résidus lors de vols sous ballons météorologiques n'est pas connue et difficile à obtenir. Un vol test avec un filtre absolu en entrée ne s'est pas révélé concluant et a montré la difficulté technique de la réalisation d'une telle mesure. Dans cette étude nous considérerons que les résidus obtenus en laboratoire pour quelques LOAC peuvent être comparés aux résultats obtenus en vol. Nous gardons cependant à l'esprit qu'un biais important peut être introduit par cette hypothèse. Aussi, nous n'appliquons pas de correction sur les données, ni en retranchant la limite de détection ce qui supposerait qu'il s'agisse d'une composante continue, ce qui n'est pas encore démontré, ni en rejetant les valeurs inférieures à la limite de détection.

### 3.2.7 Influence de la limite de discrimination minimale

La limite de discrimination est définie comme la variation la plus grande de la grandeur mesurée qui ne produit aucune variation détectable de l'indication correspondante (BIPM, 2012). Pour les gammes de tailles supérieures à 2 micromètres, la limite de discrimination en nombre de coups détecté est directement l'évènement du passage d'une particule dans le faisceau. Une particule modifiera directement la concentration, c'est la détection discrète.

La limite de discrimination minimale en concentration pour les particules de diamètres supérieurs à 2  $\mu\text{m}$  est la concentration associée à la détection d'une unique particule pour un temps d'intégration et un débit donné. Cette limite de discrimination minimale est déterminée en utilisant l'algorithme de post-traitement des données LOAC, en injectant comme donnée d'entrée un fichier fictif de données brutes LOAC ne contenant qu'un unique coup par 10 s dans chaque gamme de taille. La limite de discrimination minimale en concentration pour les gammes de tailles supérieures à 2  $\mu\text{m}$  en diamètre est respectivement de l'ordre de  $5.10^{-4}$  et  $5.10^{-5}$   $\text{cm}^{-3}$  sur 1 minute et 10 minutes d'intégration (Figure 3.23, présentée en  $\text{dN}/\text{dLog}(D)$ ).

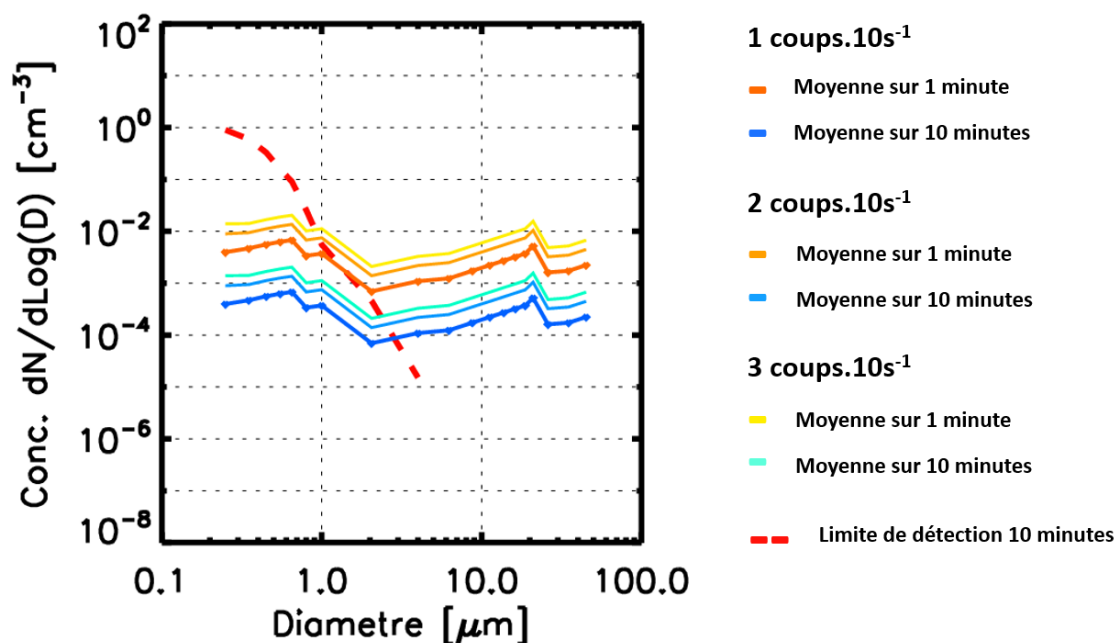


Figure 3.23 : Distribution de la limite de discrimination minimale pour 2 temps d'intégration 1 minute et 10 minutes respectivement en orange et bleu et pour 1 à 3 coups.10s<sup>-1</sup> (dégradé de couleur) pour un débit de 2 L.min<sup>-1</sup>. La courbe discontinue rouge représente la limite de détection moyenne 10 minutes

Pour les gammes de tailles inférieures à 2 micromètres (8<sup>ème</sup> gamme de taille), cette limite de discrimination est plus complexe à définir car la détection n'est pas discrète mais statistique ; elle dépend donc du bruit interpolé pendant la phase de post-traitement. Pour les gammes de taille inférieure à 2 microns, il faut ajouter 1 coups.10s<sup>-1</sup> supérieur au bruit.

Les valeurs de la limite de discrimination minimale sont reportées dans le Tableau 3.6 pour des temps d'intégration de 1 et 10 minutes selon un bruit sélectionné comme représentatif de conditions nominales.

Il n'est pas possible de rendre compte de concentration plus petite que  $5.10^{-5}$   $\text{cm}^{-3}$  pour les gammes de tailles supérieures à 2 microns et sur 10 minutes d'intégration. Cette limite implique que si l'aérosol échantillonné possède une concentration plus petite que cette limite, le LOAC indiquera après post-traitement soit 0 soit  $5.10^{-5}$   $\text{cm}^{-3}$ . Cette limite restreint la capacité du LOAC à rendre compte de faible concentration de particules de diamètre supérieur à 2 micromètres. L'incertitude de Poisson associée aux concentrations de l'ordre de  $5.10^{-4}$   $\text{cm}^{-3}$  (équivalent à la détection d'une particule ou un débit

d'échantillonnage de 2 L.min<sup>-1</sup>) est respectivement de  $\pm 30\%$  sur 10 minutes et  $\pm 100\%$  sur 1 minute. Pour pouvoir rendre compte de concentration plus faible et/ou avec une meilleure précision, il est nécessaire d'échantillonner un plus grand volume d'air par unité de temps.

Pour la suite de cette étude, nous retenons la limite de détection et de discrimination minimale comme étant la limite basse de l'étendue de mesure en concentration du LOAC (Figure 3.24). En dessous de cette limite, les concentrations mesurées doivent être considérées avec prudence.

Gamme de taille [ $\mu\text{m}$ ]	Limite de discrimination minimale en concentration [ $\text{cm}^{-3}$ ]	
	Moyenne sur 1 minute	Moyenne sur 10 minutes
0,2 – 0,3	$1,58.10^{-3}$	$1,58.10^{-4}$
0,3 – 0,4	$1,34.10^{-3}$	$1,34.10^{-4}$
0,4 – 0,5	$1,24.10^{-3}$	$1,24.10^{-4}$
0,5 – 0,6	$1,14.10^{-3}$	$1,14.10^{-4}$
0,6 – 0,7	$1,04.10^{-3}$	$1,04.10^{-4}$
0,7 – 0,9	$8,45.10^{-4}$	$8,45.10^{-5}$
0,9 – 1,1	$7,45.10^{-4}$	$7,45.10^{-5}$
1,1 – 3,0	$6,45.10^{-4}$	$6,45.10^{-5}$
3,0 – 5,0	$5,46.10^{-4}$	$5,46.10^{-5}$
> 5,0	$4,96.10^{-4}$	$4,96.10^{-5}$

Tableau 3.6 : Liste des limites de discrimination minimale pour deux temps d'intégration

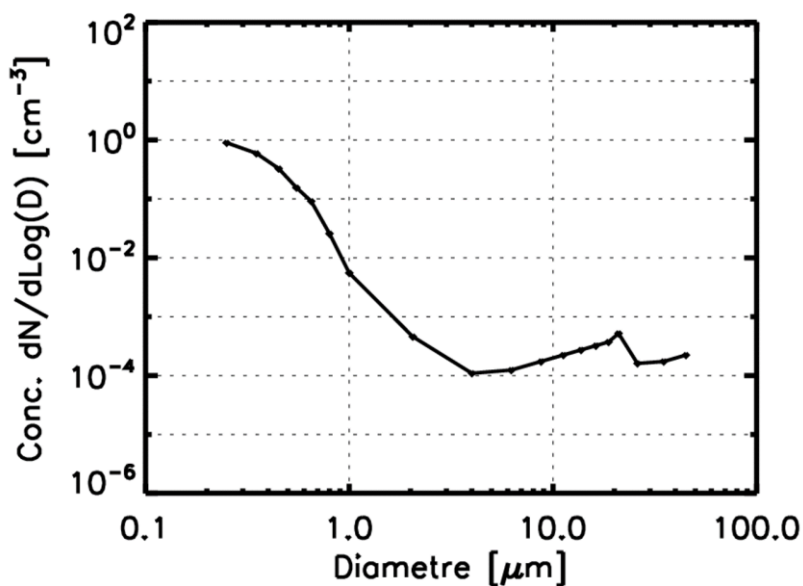


Figure 3.24 : Distribution des limites de détection et de discrimination minimale combinées pour une intégration sur 10 minutes

### 3.2.8 Etude de la répétabilité de la mesure sous ballon météorologique

La comparaison des résultats de deux LOAC équivalents effectuant des mesures simultanées sous deux ballons météorologiques, permet de d'avoir un premier aperçu de la variabilité des mesures dans des conditions réelles de vols. Ce test est évidemment à reproduire.

La comparaison de deux LOAC a eu lieu depuis la base de lancement d'Ury de la société Météo-Modem au sud de la région parisienne (48°20'N 2°36'E) le 22 décembre 2015. Le protocole mis en place se compose de deux ballons lâchés très exactement à 1 minute et 7 secondes d'intervalle. Chaque dispositif se compose de la même chaîne de vol et de la même quantité de gaz dans le ballon assurant la même vitesse ascensionnelle. Une photographie du lâcher de ces deux ballons est présentée Figure 3.25. Pour des raisons techniques, les données d'un des deux instruments n'ont pas été enregistrées sur les 3 premiers kilomètres. Les deux ballons ont éclaté à 5 km de différence en altitude.

La distance horizontale entre les deux ballons aux altitudes équivalentes moyennées sur 1 km ainsi que la comparaison des températures et leur rapport sont présentées sur la Figure 3.26. Les données GPS des deux sondes indiquent que leurs positions n'ont pas divergé de plus de 2 km horizontalement l'un par rapport l'autre pour des altitudes équivalentes. La différence de température mesurée est inférieure à 4%. Compte tenu de ces paramètres dynamiques, nous considérons que les deux ballons ont évolué dans les mêmes masses d'air.



Figure 3.25 : Photographie prise lors du lancement double le 22 décembre 2015 depuis Ury (France)

La Figure 3.27 représente l'évolution verticale de la distribution des concentrations selon les gammes de tailles mesurées par les deux LOAC à la résolution 1 minute. La correspondance entre les couleurs et les gammes de tailles est donnée par la légende à droite. Le profil de gauche sur la Figure 3.27 est noté A en bleu et le profil de droite B en orange.

L'analyse verticale des deux profils permet de distinguer 3 zones en altitude selon les concentrations par gamme de taille (Figure 3.27). Une première zone en troposphère de 0 à 14 km environ. Une seconde zone en basse stratosphère de 14 à 21 km. Puis une troisième au-delà de 21 km.

Dans la première zone en troposphère, les concentrations des 5 premières gammes de tailles sont plutôt élevées et peu bruitées. Les concentrations du vol A sont plutôt constantes avec l'altitude, avec un renforcement vers 8 km d'altitude, tandis que les concentrations du vol B sont plutôt décroissantes avec l'altitude. Les concentrations des petites gammes de tailles du vol A sont plus faibles que celles du vol B. Le LOAC A détecte un évènement isolé à 8 km avec la détection de plusieurs particules réparties sur toutes les gammes de tailles.

Dans la seconde zone en basse stratosphère de 14 à 21 km, les concentrations des deux vols présentent un maximum local des concentrations. A 19 km, les concentrations des premières gammes de tailles du vol A passent rapidement d'un maximum local à des valeurs nulles, tandis que le vol B enregistre une couche de 17 à 20 km de concentration plus importante et de structure plus étalée verticalement.

Au-delà de 21 km, les concentrations sont plus faibles (Figure 3.27). Il est noté que les deux LOAC enregistrent quasiment à la même altitude un comptage sur la dernière gamme de taille vers 22 km (point

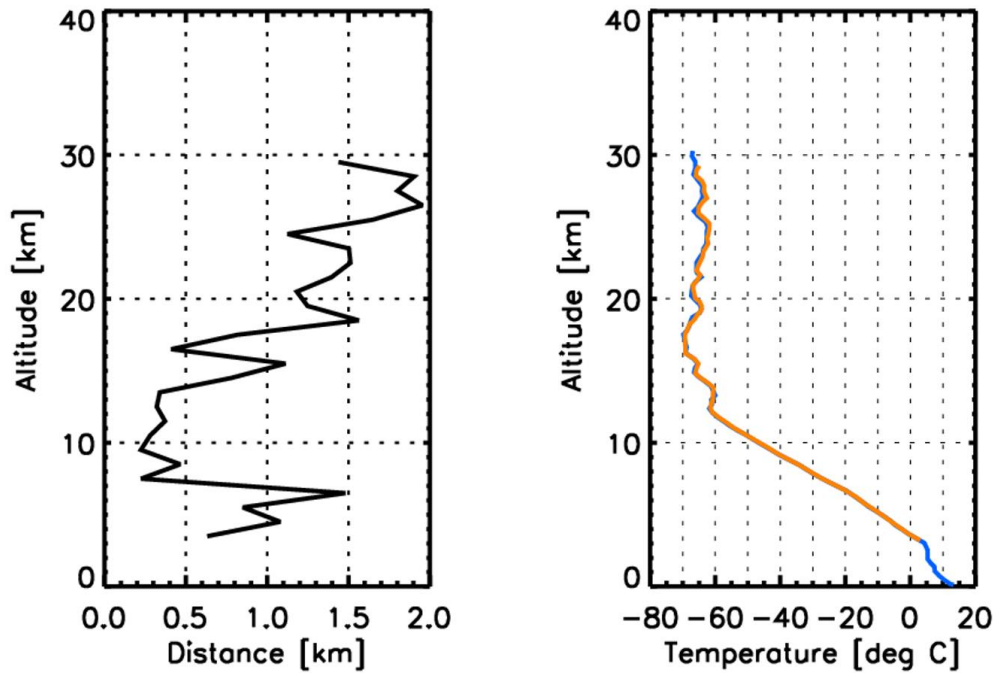


Figure 3.26 : Distance moyenne par kilomètre entre les deux ballons à altitudes équivalentes (figure de gauche), profil vertical de température pour les deux LOAC (figure de droite)

rouge à quelques  $10^{-4} \text{ cm}^{-3}$  représentatif d'une particule de diamètre supérieure à  $40 \mu\text{m}$ ). Dans cette zone, le LOAC A enregistre une concentration plus faible que le LOAC B, notamment pour les particules microniques. A toutes les altitudes, les deux LOAC enregistrent la présence de particules de diamètres supérieurs à  $3 \mu\text{m}$ .

Pour une vitesse ascensionnelle de  $5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , une gamme de 3 km d'altitude représente 10 minutes de mesure. La Figure 3.28 représente les concentrations cumulées sur les 19 gammes de tailles moyennes par bande d'altitude de 3 km pour les deux LOAC accompagnées des dispersions des valeurs. L'allure générale décroissante est détectée par les deux instruments. En troposphère jusqu'à 14 km, les concentrations cumulées sont différentes d'un facteur 1,3 à 3,5. En stratosphère les rapports des concentrations sont compris entre 0,8 et 3,0. Les concentrations cumulées passent en dessous de la limite de détection sur 10 minutes à partir de 23 km environ.

La corrélation des logarithmes des concentrations cumulées moyennes sur 3 km pour les deux vols est bonne ( $R=0.95$ ) (Figure 3.29 figure de gauche). La régression linéaire indique un coefficient directeur de  $1.01 \pm 0.12$  ce qui est très encourageant bien qu'elle soit réalisée sur un nombre restreint de points.

Cette régression indique qu'il existe une ordonnée à l'origine non-nulle, cela implique l'existence possible d'un biais systématique entre les deux instruments. La procédure d'auto-calibration est suspectée pouvoir produire ce type de biais systématique. Un LOAC se recadrant pendant toute la durée du vol en dessous ou au-dessus de la valeur du seuil de détection de l'autre LOAC conduirait à produire un décalage en concentration cumulée. La Figure 3.29 à droite représente la corrélation entre le LOAC A et B en modifiant les données du LOAC B en supposant qu'il se soit recadré  $0,5 \text{ mV}$  en dessous de la valeur attendue et ce pendant toute l'ascension. Dans ce cas de figure, le LOAC B surestime les concentrations. La correction appliquée est relativement simpliste et consiste à soustraire la moitié de la première gamme de taille sur la concentration cumulée. Ce type de correction ne fonctionnerait pas pour le calcul de l'extinction car il faudrait tenir compte que le décalage est en réalité de  $0,5 \text{ mV}$  sur toutes les gammes de taille, en considérant les concentrations cumulées nous simplifions l'interprétation. Cette correction n'impacte pas la qualité de la corrélation.

### 3.2 Evaluation des performances du LOAC sous ballons météorologiques pour l'étude de la stratosphère

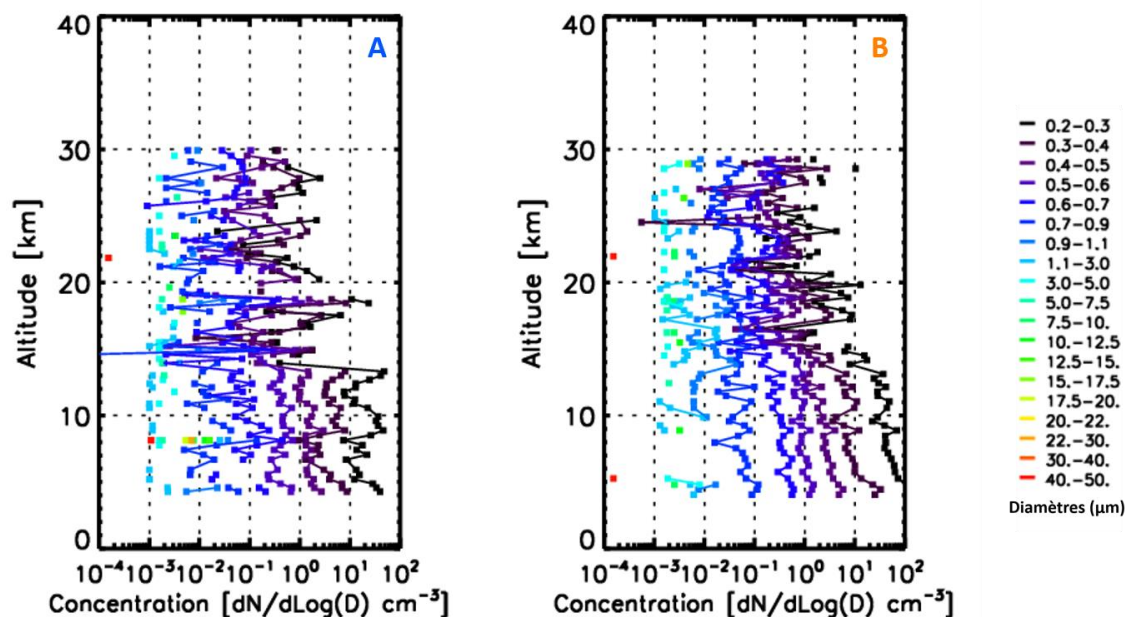


Figure 3.27 : Comparaison des profils de concentration moyenne par gamme de taille à la résolution 1 minute

Cependant, une partie de la régression linéaire est faite sur des valeurs inférieures à la limite de détection (courbe discontinues violettes sur la Figure 3.29). Ce genre de biais méthodologique améliore artificiellement la corrélation en introduisant une égalité entre les jeux de données hors de l'étendue de mesure des instruments (Helsel, 2010). En ne tenant compte que des concentrations supérieures à  $10^0 \text{ cm}^{-3}$ , c'est-à-dire en ne considérant que les concentrations supérieures à la limite de détection, la corrélation entre les deux instruments n'est pas aussi satisfaisante.

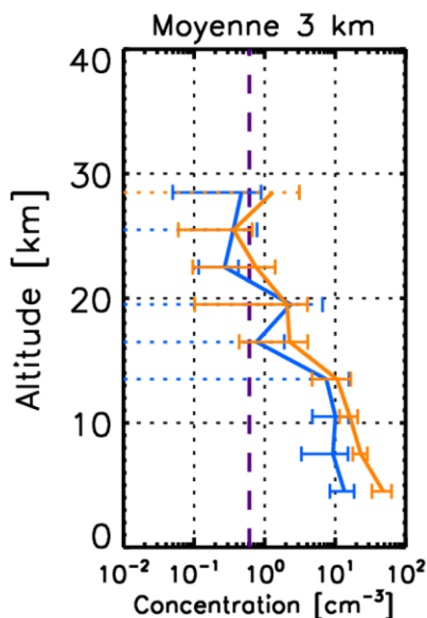


Figure 3.28 : Profils de concentrations cumulées moyennes sur 3 km (représentatif d'une moyenne sur 10 minutes environ) pour les deux LOAC, les incertitudes représentent la dispersion des concentrations sur 1 minute par gamme de 3 km. La ligne pointillée violette représente la limite de détection en concentration sur 10 minutes

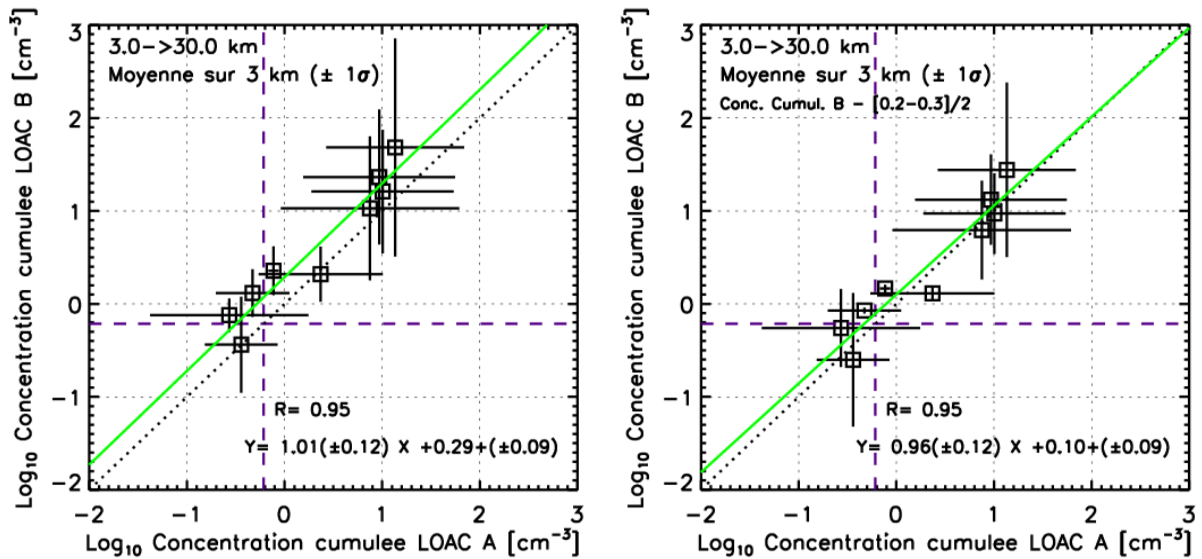


Figure 3.29 : A gauche, concentration cumulée moyenne sur 3 km du LOAC B en fonction de la concentration cumulée du LOAC A, exprimé selon leur logarithme. A droite, même figure en considérant que le LOAC B s'est systématiquement recadré une demi gamme de taille sous la valeur optimale et ce pendant tout le vol. Les lignes vertes représente la régression linéaire, les lignes pointillées noires est la droite d'égalité 1:1 et les lignes pointillées violettes les limites de détection en concentration 10 minutes

Renard et al. (2016a) indiquent que la reproductibilité inter-instrumentale mesurée expérimentalement en laboratoire est de  $\pm 15\%$  pour les particules inférieures à  $10\ \mu\text{m}$  et  $\pm 30\%$  pour les particules plus grandes que  $10\ \mu\text{m}$ , pour une concentration cumulée moyenne sur 10 minutes dans des conditions représentatives de l'air intérieur. Les concentrations comparées de deux LOAC sous deux ballons indiquent des rapports de concentrations moyennes sur 10 minutes significativement plus grands que  $50\%$ . Cela implique que les conditions sous ballon introduisent un biais supplémentaire, lié probablement à la variation de température de l'électronique conduisant les LOAC à se recadrer.

Les protocoles de comparaison en laboratoire et sous ballons sont différents principalement pour deux raisons. En laboratoire, les instruments sont comparés à température constante et échantillonnent le même aérosol. En vol sous ballon, les instruments se recadrent plusieurs fois lors de l'ascension et sont susceptibles de générer des biais différents pour les deux instruments. De plus, il est possible de supposer qu'à plusieurs centaines de mètres de distance horizontale, les deux instruments n'aient pas échantillonné le même aérosol possédant les mêmes concentrations en particules. La comparaison en vol sous deux ballons indépendants se révèle être un exercice compliqué. La multiplication de comparaisons en vol de plusieurs instruments sous le même ballon semble nécessaire afin de conclure. Un vol dans ce type de configuration (2 LOAC sous le même ballon) a été effectué récemment, les résultats sont en cours d'analyse.

### 3.2.9 Inter-comparaison sous ballon avec un compteur différent

Un vol commun sous ballon stratosphérique ouvert (BSO) a eu lieu à Laramie, Wyoming (Etats Unis) le 16 septembre 2014 entre un LOAC et le compteur de particules « Jupiter 3 » de l'équipe de l'Université du Wyoming dirigée par Terry Deshler. Ce vol a permis de produire deux profils verticaux dans la même masse d'air, à bord de la même nacelle (Figure 3.30).

Le compteur Jupiter 3 est un compteur de particule utilisant la diffusion lumineuse d'une lampe à incandescence blanche. Deux photomultiplicateurs mesurent la contribution de la lumière diffusée symétriquement de  $25^\circ$  à  $55^\circ$  (Deshler et al., 2003). Les deux photomultiplicateurs placés symétriquement, permettent de réduire le bruit de la mesure afin d'augmenter la limite de détection. Ce compteur est calibré avec des billes de latex, il est particulièrement adapté pour les particules sphériques. Il fournit la

### 3.2 Evaluation des performances du LOAC sous ballons météorologiques pour l'étude de la stratosphère

concentration par gamme de taille sur une étendue de 0,15 à 8  $\mu\text{m}$  en diamètre. L'étendue de la mesure en concentration est de  $6 \cdot 10^{-4}$  à  $10^1 \text{ cm}^{-3}$  (Kovilakam et Deshler, 2015) avec une incertitude maximum de 85% en dessous d'une concentration  $10^{-2} \text{ cm}^{-3}$  (Deshler et al., 2003).

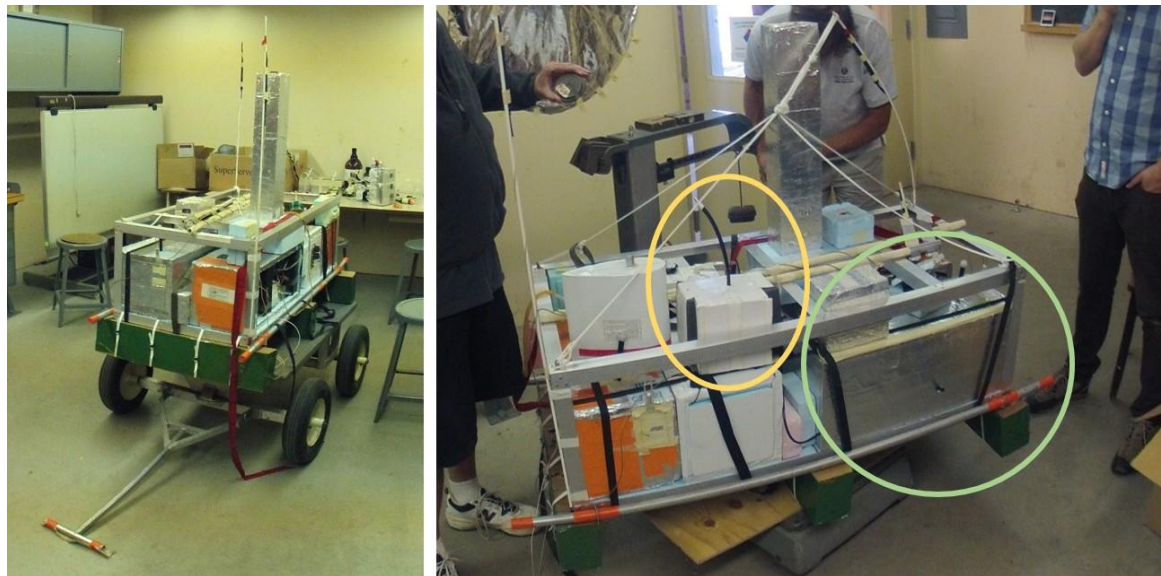


Figure 3.30 : La nacelle de vol BSO utilisée pour produire la mesure d'inter-comparaison entre le LOAC et le Jupiter 3. A gauche, la nacelle sur son support de transport jusqu'à la zone de lancement, cette nacelle mesure approximativement 1,5 x 1 x 0,5 m pour une masse d'environ 60 kg. A droite, la même nacelle avec l'emplacement du LOAC (ellipse jaune) et du Jupiter 3 (ellipse verte)

La configuration du LOAC a été modifiée à partir de sa version ballon météorologique afin de pouvoir voler sur cette nacelle lors de ce vol technique. Dans cette configuration, les données du LOAC ne sont pas transmises au sol par télémétrie mais enregistrées à bord. Le LOAC a été positionné dans une boîte métallique légère afin de se préserver au mieux de l'activité électromagnétique générée par la nacelle.

- Résultats

La Figure 3.31 représente les résultats obtenus par les deux compteurs selon les profils verticaux des concentrations par gammes de tailles. Les deux instruments n'utilisent pas les mêmes gammes de tailles. Le Jupiter en possède 7 de 0,15 à 8,0  $\mu\text{m}$  en diamètre. Les couleurs représentent les gammes de taille, la correspondance est donnée pour chacun des instruments sur le côté. Les concentrations des 6 premières gammes de taille LOAC ont été lissées afin de faire apparaître la structure suivant deux lissages successifs sur 3 points à partir des données 1 minutes (lissage préconisé par J.B. Renard).

La comparaison des concentrations par gamme de taille est encourageante compte tenu des nombreuses différences instrumentales. Les deux instruments détectent des concentrations importantes jusqu'à 5 km environ. Entre 5 à 12 km d'altitude, les concentrations ont plutôt tendance à décroître pour les deux instruments, tandis qu'entre 12 et 18 on observe une couche d'augmentation.

Au-delà de 18 km le Jupiter 3 ne détecte plus de particule de diamètre supérieur à 0,7  $\mu\text{m}$  et les concentrations des gammes de taille inférieure à 0,7  $\mu\text{m}$  décroissent avec l'altitude. Au-delà de 18 km les concentrations des 5 premières gammes de tailles LOAC sont relativement constantes avec l'altitude. Un renforcement des concentrations de particules de diamètres compris entre 0,7 et 1,1  $\mu\text{m}$  est mesuré entre 25 et 30 km sur les données LOAC. Ce profil de concentrations plus élevées que Jupiter 3 est attribué à l'effet des concentrations résiduelles.

Sur tout le profil, le LOAC détecte une concentration de particules supérieures à 3  $\mu\text{m}$  environ qui décroît avec l'altitude jusqu'à une vingtaine de kilomètres. Une concentration de particules supérieures à 5  $\mu\text{m}$  est présente jusqu'à 30 km. Cette population de particules est détectée par le Jupiter 3 à hauteur d'un seul coup



dans la dernière gamme de taille (ce qui produit une concentration minimum autour d'une valeur unique de l'ordre de  $6.10^{-3} \text{ cm}^{-3}$ ).

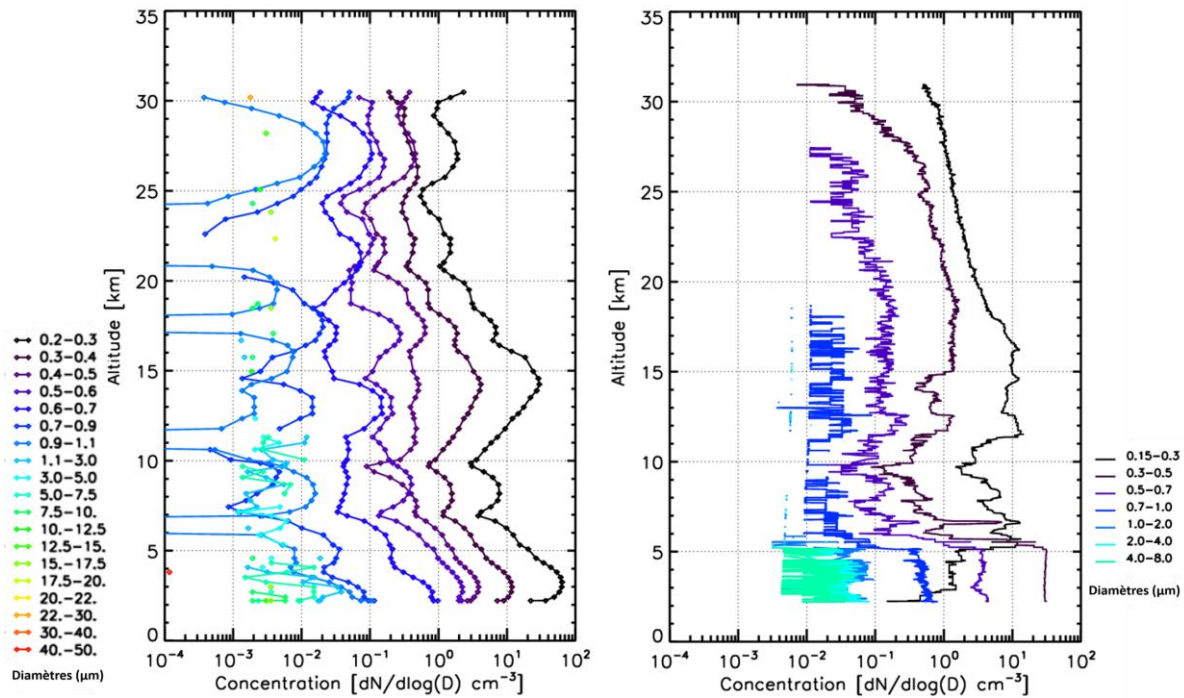


Figure 3.31 : Profils de concentration par gamme de taille en fonction de l'altitude pour le LOAC (à gauche) et le Jupiter 3 (à droite)

La représentation des concentrations cumulées sur toutes les gammes de taille (concentration de particules supérieure à  $0,2 \mu\text{m}$  pour LOAC et supérieure à  $0,15 \mu\text{m}$  pour le Jupiter 3) permet de comparer plus aisément les profils. Sur la Figure 3.32 on distingue que les deux instruments sont relativement en bon accord de 5 à 17 km. Vers 15 km, la différence entre le Jupiter 3 et le LOAC est attribuée à la limite haute de l'étendue de mesure du Jupiter 3, qui ne compte plus de façon optimum au-delà d'une concentration de  $10^1 \text{ cm}^{-3}$  (Deshler et al., 2013). Le Jupiter 3 semble saturer à partir de cette valeur. Cet effet est également visible entre 2 et 5,5 km.

Au-delà de 20 km, le Jupiter décroît plutôt linéairement sur cette représentation logarithmique, tandis que le LOAC oscille autour d'une concentration légèrement inférieure à une particule par  $\text{cm}^3$ . Cette valeur correspond à la limite de détection du LOAC.

La représentation des concentrations cumulées est limitée par le fait que le LOAC et le Jupiter 3 ne possèdent pas la même borne inférieure sur leur première gamme de taille, respectivement  $0,2$  et  $0,15 \mu\text{m}$ . Cela implique que les concentrations cumulées ne sont pas les mêmes quantités. Cependant, celles-là sont en relativement bon accord. Cela peut s'expliquer par l'incertitude relativement élevée sur les premières gammes de taille. En effet, l'efficacité de détection pour les premières gammes de tailles pour les deux instruments est respectivement de 15 % et 20 % pour le LOAC et le Jupiter 3 (Kovilakam et Deshler, 2015; Renard et al., 2016a).

La comparaison des distributions en taille montrent un bon accord (Figure 3.33), bien que la représentation dite Log-Log des données s'inscrivant sur plusieurs ordres de grandeurs comme le sont les concentrations et les gammes de tailles soit généralement favorable. La tranche d'altitude 15 à 20 kilomètres est particulièrement comparable entre les deux instruments jusqu'à  $1 \mu\text{m}$ . La population des particules supérieures à  $8 \mu\text{m}$  observées par LOAC est visible sur les distributions en taille pour les altitudes 20 à 30 km, ces particules sont en dehors de l'étendue de mesure du Jupiter 3. Ces gammes de tailles ne sont pas affectées par la détection statistique cependant l'analyse des données brutes révèle qu'il s'agit majoritairement de la détection d'une seule particule (limite de discrimination minimale chapitre 3.2.7). La

concentration associée à la détection d'une unique particule est assez incertaine compte tenu de la limite de quantification.

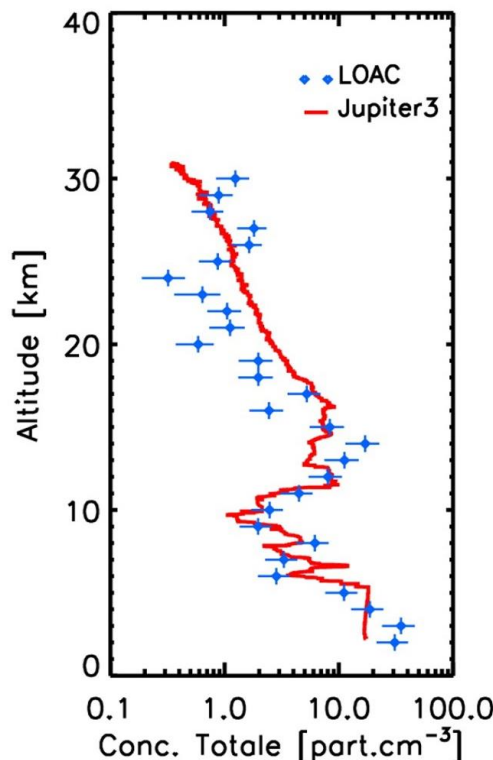


Figure 3.32 : Profils verticaux des concentrations cumulées pour le LOAC et le Jupiter 3 représentant respectivement les concentrations de particules possédant des diamètres supérieures à  $0,2\ \mu\text{m}$  et  $0,15\ \mu\text{m}$ . Les données LOAC sont moyennées par kilomètre

- Discussions

Ces inter-comparaisons instrumentales sont difficiles à mettre en œuvre, cependant elles demeurent essentielles pour parfaire la connaissance de nos instruments. Les résultats décrits précédemment montrent un bon accord si l'on tient compte des nombreuses différences instrumentales. Les deux instruments utilisent le même principe optique de détection des particules, cependant ils présentent des différences qui sont à considérer.

Le LOAC est un instrument dédié à la mesure des grains irréguliers dans des milieux présentant des concentrations de particules relativement élevées supérieures à quelques particules par  $\text{cm}^3$ . Le Jupiter3 est quant à lui dédié à la mesure des aérosols stratosphériques admis par l'équipe américaine comme étant majoritairement des gouttelettes d'acide sulfurique (Deshler et al., 2003, 2006; Deshler, 2008), où le domaine de concentration optimal est décrit comme étant de  $6 \cdot 10^{-4}$  à  $10\ \text{part.cm}^{-3}$  (Kovilakam et Deshler, 2015). Le Jupiter3 est étalonné avec des particules présentant une forte symétrie (particules calibrées de verre ou de latex) et avec un aérosol composé de sulfate d'ammonium (Kovilakam et Deshler, 2015). Les hypothèses sur la nature des aérosols stratosphériques sont différentes pour les deux équipes et ont conduit à développer une instrumentation en conséquence. Comparer ces deux instruments, revient à comparer également deux paradigmes sur la stratosphère.

La cellule de détection du Jupiter 3 possède deux photo-détecteurs. Ces photo-détecteurs sont positionnés à angles égaux de diffusion autour de  $40^\circ \pm 15^\circ$ , symétriquement autour de la direction de propagation du faisceau de la lampe à incandescence (Deshler et al., 2003). Ce choix instrumental permet de réduire le bruit de la mesure, considérant qu'une particule diffuse la même quantité de lumière de façon radiale, il est nécessaire que les signaux sur les deux photo-détecteurs soient identiques pour valider une détection. Il nous

semble possible de supposer qu'au-delà de réduire le bruit de détection, cette technique réduit la capacité du système à rendre compte de la présence de particules produisant de la diffusion lumineuse non homogène selon l'angle radial par rapport à la direction de propagation du faisceau lumineux. Cet effet est supposé ne pas intervenir pour les particules de petites tailles en stratosphère (communication personnelle T. Deshler). Cette hypothèse est motivée par le fait que l'équipe américaine considère qu'il s'agit de gouttelette d'acide sulfurique. Le débat sur la capacité du Jupiter 3 à rendre compte de particules de formes irrégulières et d'indice de réfraction inhomogène est ouvert au-delà du fait que ces particules soient ou non présentes en stratosphère.

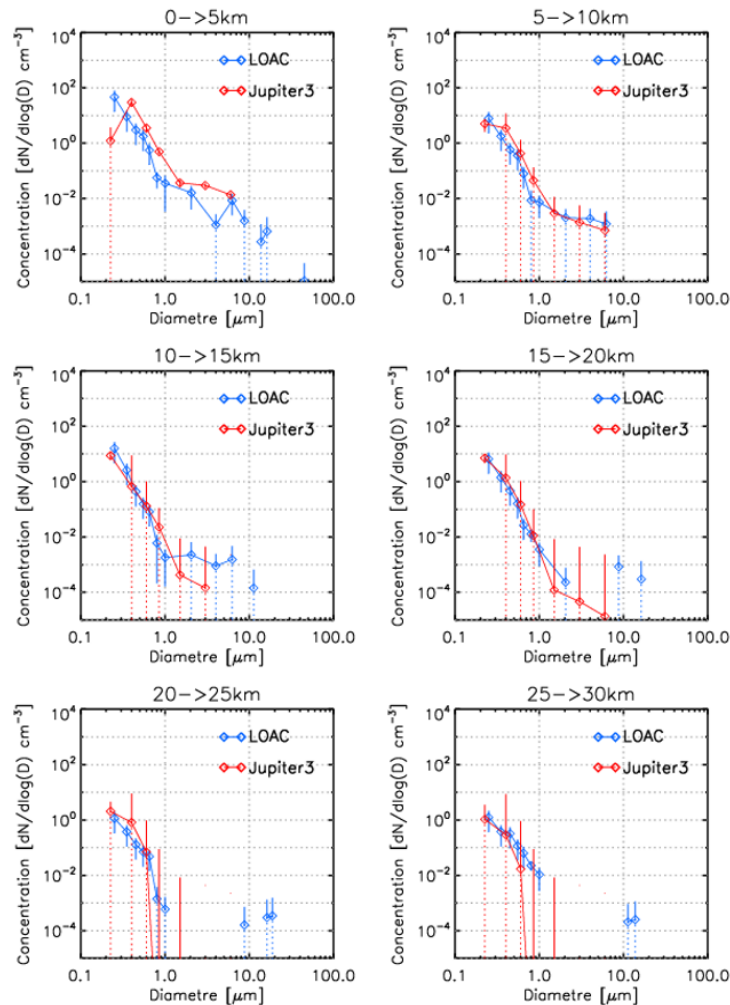


Figure 3.33 : Comparaison des distributions en taille obtenues pour le LOAC et le Jupiter 3 par gammes de 5 kilomètres (intégration sur 17 minutes environ). Les incertitudes associées en concentration sont calculées à partir de la dispersion à  $1\sigma$  des concentrations dans la gamme d'altitude (cette donnée de dispersion est présentée en pointillée lorsque la dispersion est plus grande que la moyenne dans cette gamme d'altitude)

Plusieurs études portant sur des prélèvements in situ montrent qu'il existe dans la stratosphère des concentrations faibles de particules de plusieurs centaines de nanomètres à quelques micromètres de formes très diverses susceptibles de produire une réponse optique non-homogène (Blake et Kato, 1995; Brownlee, 1985; Della Corte et al., 2013; Martin Ebert et al., 2016; Junge et al., 1961; Pueschel et al., 1992; Schwarz et al., 2006; Strawa et al., 1999). Il est difficile d'affirmer dans notre cas si nous avons échantillonné des particules irrégulières que le Jupiter 3 n'aurait pas pris en compte. Une mesure d'inter-comparaison dans des conditions maîtrisées de laboratoire mettant en œuvre l'échantillonnage d'un aérosol contenant des particules de forme irrégulières permettrait de tester la capacité de ces 2 instruments à ce type de mesure.

### 3.2 Evaluation des performances du LOAC sous ballons météorologiques pour l'étude de la stratosphère

Les débits de prélèvement sont différents. Le LOAC échantillonne avec un débit de  $2 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$  à travers un orifice de diamètre 5,5 mm maintenu entre  $0^\circ$  et  $30^\circ$  par rapport à la direction relative du flux de l'air échantillonné. Le Jupiter 3 quant à lui échantillonne avec un débit de  $10 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$  à travers un orifice de 8 mm de diamètre dont l'orientation est maintenu parallèle au flux relatif d'air (Kovilakam et Deshler, 2015). Pour une vitesse ascensionnelle moyenne de  $5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , le prélèvement du LOAC est en condition subisocinétique ( $R \approx 3.5$ ) là où le Jupiter3 est en condition de superisocinétisme ( $R \approx 0.45$ ) (conditions d'isocinétisme voir chapitre 3.1.5). Le LOAC possède une tendance à surestimer les particules de grandes inerties, le Jupiter 3 a tendance à les sous-estimer. Les conditions de prélèvement au sein de la nacelle ne peuvent être exactement identiques pour les deux prélèvements, que ce soit à cause des différences de géométrie ou de débit de prélèvement, mais également à cause de la position respective des prélèvements (Figure 3.30). Les deux instruments n'échantillonnent pas strictement exactement le même aérosol, bien qu'il soit admis qu'il existe une certaine homogénéité de la distribution de la concentration à quelques dizaines de centimètres près.

Une autre source d'incertitude est à considérer. Le LOAC est un instrument possédant une faible compatibilité électromagnétique. Le positionnement du LOAC à bord de la nacelle n'a pas fait l'objet de mesure de compatibilité et nous suspectons que le bruit de la mesure LOAC ait pu être influencé soit par la communication de la nacelle avec le sol ou bien par les autres instruments. Cette hypothèse n'a pas été vérifiée sur site.

- Conclusion sur l'inter-comparaison entre LOAC et le Jupiter 3

Cette inter-comparaison est très encourageante et demande à être renouvelée en tenant compte de l'expérience acquise lors de ce premier essai. Effectuer les prochaines inter-comparaisons en deux phases semble judicieux. Une première phase d'inter-comparaison pourrait être menée en laboratoire dans des conditions maîtrisées de température et de pression avec l'échantillonnage d'un aérosol maîtrisé. Puis une seconde phase d'inter-comparaison à bord de la même nacelle de vol sous ballon, nacelle commune permettant une compatibilité inter-instrument maîtrisée, sera susceptible de discuter à la fois l'effet des différences de prélèvement ainsi que le comportement de ces deux instruments en vol.

#### 3.2.10 Conclusion sur les performances du LOAC en conditions stratosphériques

Les conditions de mesure lors de vols météorologiques en stratosphère correspondent à des concentrations cumulées de particules de diamètres supérieurs à  $0,2 \mu\text{m}$  inférieures à quelques particules par  $\text{cm}^3$ . De plus, des gradients temporels de température de l'ordre de  $\pm 5^\circ\text{C}\cdot\text{h}^{-1}$  surviennent dans la nacelle et sur le corps du laser. En haute troposphère et basse stratosphère, les gradients de température peuvent être plus importants jusqu'à  $-25^\circ\text{C}\cdot\text{h}^{-1}$ . Ces contraintes en termes de température et de concentration influencent les performances du LOAC.

Les limites de détection déterminées à température constante sont de l'ordre de grandeur des valeurs mesurées en moyenne stratosphère en période de fond aux latitudes moyennes en ce qui concerne les particules sulfatées (Kremser et al., 2016). Ce qui limite théoriquement l'altitude des données exploitables en absence de variation de température et pour les 8 premières gammes de tailles. Les gammes de tailles supérieures à  $3 \mu\text{m}$  ne sont pas affectées par la limite de détection.

Les gradients de température de l'électronique plutôt décroissants tendent à produire une sous-estimation des concentrations lors de l'interpolation linéaire du bruit. Cet effet est plus important en haute-troposphère et basse stratosphère où les gradients de température sont les plus importants. Cependant, jusqu'en moyenne stratosphère, les LOAC modifient leur seuil de détection sous l'influence de la température, ce qui peut conduire à introduire un biais lors de mesures à faibles concentrations ; des tests en laboratoire portant sur l'échantillonnage d'un aérosol connu lors de changement de température de l'électronique pourraient quantifier ce biais. Des mesures des concentrations résiduelles en vol sous ballons (avec aucune particule dans la cellule de détection) permettraient de quantifier la variation du seuil de détection en conditions réelles. Un premier essai de ce type d'expérimentation avec un filtre HEPA n'a pas été concluant, le filtre ayant libéré des particules lors de l'ascension sous la pression des contraintes stratosphériques.

### 3 Le LOAC

Les mesures d'inter-comparaison entre LOAC en vol sous deux ballons météorologiques montrent des différences significatives que le protocole mis en place (deux ballons indépendants) ne permet pas d'attribuer seulement aux LOAC ou à la distribution spatiale des aérosols à moins de 2 km. Ces différences de l'ordre d'un facteur 2 à 3 en concentration cumulée sont supérieures à la répétabilité instrumentale établie en laboratoire à température constante pour le même aérosol. Des vols doubles sous le même ballon ont été effectués, les données sont en cours d'analyse. Sous un même ballon, une mesure comparative permettrait de limiter les hypothèses sur la distance entre les deux mesures.

Les mesures d'inter-comparaison avec le compteur de l'équipe de Terry Deshler sont encourageantes. Les distributions en tailles ainsi que les allures verticales des concentrations cumulées ou par gamme de taille sont proches. Une collaboration plus avancée entre les deux équipes serait souhaitable afin de pratiquer des tests en laboratoire sur différents types de particules ainsi qu'en vol pour enrichir le développement des deux instruments.

Les tests en laboratoires montrent que la dépendance du débit et de la puissance du flux laser est négligeable en fonction des conditions de vol. L'inter-comparaison de LOAC en laboratoire est satisfaisante. Les principales limitations d'utilisation du LOAC en stratosphère sont introduites par l'influence des gradients de température. Pour des concentrations inférieures à 1 particule par  $\text{cm}^3$  supérieure à  $0,2 \mu\text{m}$ , la détermination des concentrations cumulées sur 10 minutes d'intégration n'est plus satisfaisante devant le rapport signal sur bruit. La mauvaise compatibilité électromagnétique du LOAC limite également son fonctionnement en stratosphère sous l'influence du rayonnement cosmique.

## 4 Etude de la variabilité des aérosols stratosphériques aux latitudes moyennes par le LOAC

Nous présentons dans ce chapitre les résultats des mesures LOAC obtenues sous 95 ballons météorologiques lors de deux campagnes de mesures. Les campagnes Voltaire-LOAC et ChArMEx couvrent une période d'un peu plus de 3 ans s'étendant de mai 2013 à août 2016 (lors de la rédaction de cette étude). Dans la première partie de ce chapitre nous décrivons les objectifs de ces campagnes puis les résultats obtenus lors de celles-ci. Dans la seconde partie, nous comparons ces résultats avec des mesures indépendantes (satellites, lidar sol et sorties de modèle global).

### 4.1 Les données LOAC

#### 4.1.1 Les campagnes Voltaire-LOAC et ChArMEx

La campagne Voltaire-LOAC (Volatiles, Terre, Atmosphère et Interfaces - Ressources et Environnement) a pour objectif principal de réaliser un suivi de la variabilité des aérosols stratosphériques au-dessus de la France avec une fréquence d'environ 1 vol LOAC tous les 15 jours. Cette campagne a débuté en décembre 2013 et est encore en cours fin 2016. Nous retenons pour cette campagne 80 vols LOAC pour la période allant du 30 mai 2013 au 18 août 2016 (dont 58 vols pour la période 2013 à 2015 pour la comparaison aux données indépendantes chapitre 0). Les vols ballons de la campagne Voltaire-LOAC sont réalisés à partir de 2 sites de lâcher : Ury en Seine et Marne ( $48^{\circ}20'N$  ;  $2^{\circ}27'E$ ) et Aire sur l'Adour dans les Landes ( $43^{\circ}42'N$  ;  $-0^{\circ}15'E$ ) (Figure 4.1).

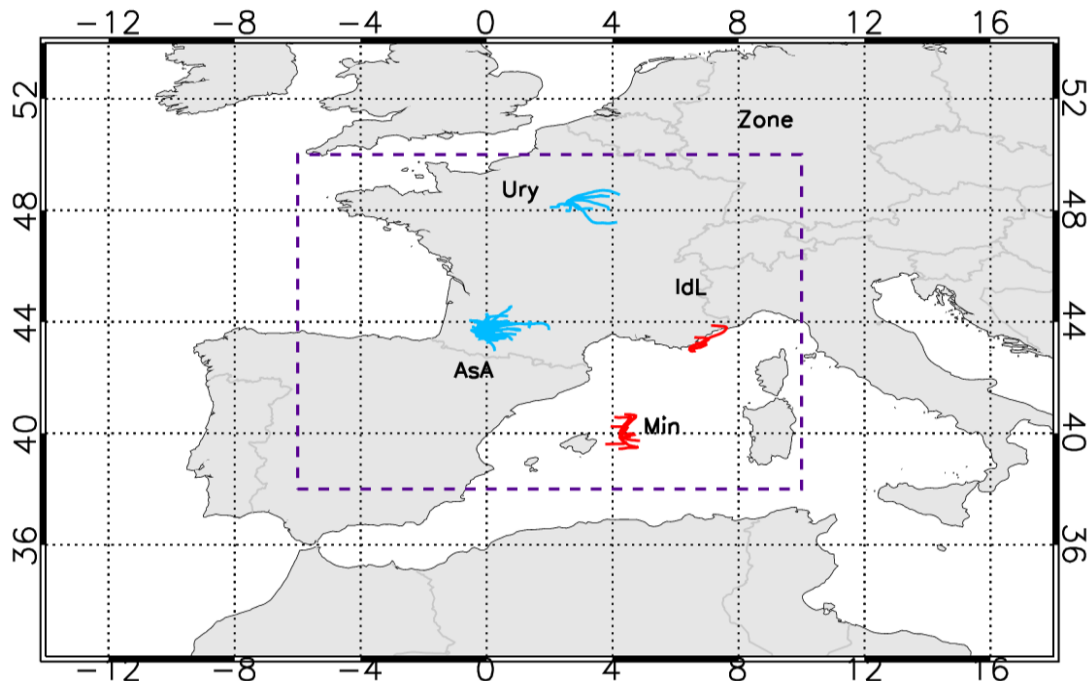


Figure 4.1 : Sites de lancement LOAC pour l'étude de la variabilité des aérosols stratosphériques au-dessus de la France pour la période 2013/2016. 4 sites de lancement sont retenus : pour la campagne ChArMEx : Min pour Minorque en Espagne, IdL pour île du Levant, pour la campagne Voltaire-LOAC AsA pour Aire sur Adour et Ury pour Ury. Les couleurs représentent les trajectoires de montée des ballons météorologiques.

La délimitation géographique de la « zone de comparaison » retenue est représentée par le rectangle violet

La campagne ballons ChArMEX (*Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment*) avait pour but de d'étudier l'état de l'atmosphère et les impacts de celui-ci sur le bassin méditerranéen (Mallet et al., 2016). ChArMEX est la composante atmosphérique d'un projet plus vaste nommé MISTRALS (*Mediterranean Integrated Studies at Regional And Local Scales*) qui a pour objectif de définir le futur de la région méditerranéenne dans le contexte de pressions anthropiques et climatiques fortes et ce pour l'atmosphère, l'aquifère, la lithosphère

et la biosphère. La campagne ballon ChArMEx s'est déroulée en deux phases : ADRIMED (*Aerosol Direct Radiative Impact on the Climat in the Mediterranean Region*) à Minorque en Espagne (39°57'N ; 4°04'E Figure 4.1) de mi-juin à début juillet 2013 et SAFMED (*Secondary Aerosol Formation in the Mediterranean Region*) à l'île du Levant dans le Var (43°01'N ; 6°27'E Figure 4.1) de fin juillet à début août 2013. Nous retenons dans cette étude 15 vols LOAC. 9 vols LOAC pour la campagne ADRIMED et 6 vols pour SAFMED. Pour la suite de cette étude ces campagnes seront désignées par ChArMEx.

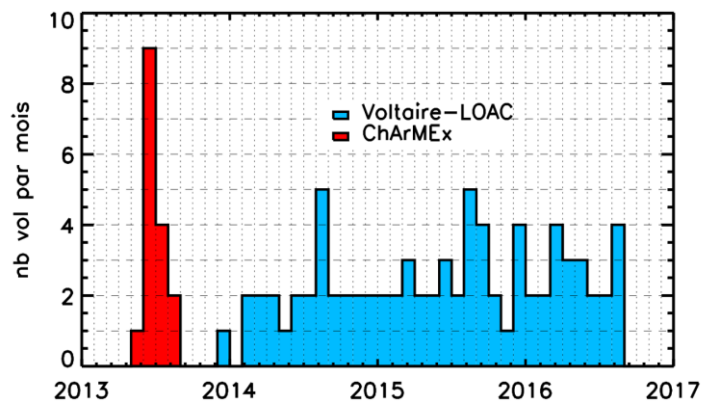


Figure 4.2 : Fréquence des vols LOAC pour les campagnes Voltaire-LOAC et ChArMEx

Lors de ces deux campagnes (Voltaire-LOAC et ChArMEx), la configuration des LOAC lors des vols sous ballons météorologiques est la même, les résultats obtenus sont homogènes du point de vue de la méthode de mesure.

En réunissant ces deux campagnes sur la période de mai 2013 à août 2016, nous obtenons un jeu de données composé de 95 profils verticaux. La liste des dates, heure de lancement, site de lancement et altitude maximum atteinte est donnée en annexe A4.1. Cette base de données représente 9234 distributions en taille LOAC (à la résolution temporelle 1 minute) réparties sur des altitudes du sol à  $30,5 \pm 4,2$  km (au minimum 14,4 km et au maximum 36,4 km) couvrant une période de 1174 jours. La fréquence des vols sur cette période n'est pas régulière (Figure 4.2). Cependant, pour la période mai 2013 à août 2016 nous possédons une fréquence moyenne de deux vols par mois.

#### 4.1.2 Evolution du contenu en aérosol au-dessus de la France pour la période 2013-2016 mesuré par LOAC

La Figure 4.3 représente 9 exemples de profils LOAC selon la distribution des concentrations moyennes par minute selon les 19 gammes de tailles. La correspondance des gammes de tailles est donnée par l'échelle au-dessous de la figure. Ces 9 profils sont choisis car ils représentent des situations contrastées, représentatives des mesures LOAC sous ballons météorologiques.

Certains profils sont représentatifs de la détection de nuages (profils A, C, E, F, H) où la présence de particules supérieures à une dizaine de micromètres est caractéristique de particules condensées (Hammer et al., 2014). Certains profils présentent des concentrations faibles sur toute la colonne échantillonnée (C, F, G, H, I). Certains profils sont plutôt lisses (A, C, F, G, H, I), tandis que d'autres présentent des sursauts de concentrations (B, D, E). Certains profils ne présentent peu de particules microniques en stratosphère (A, F, H), d'autres détectent des particules de plusieurs dizaines de microns au-dessus de 15 km (C, E, F, G, H, I). Les tendances verticales sont contrastées, certains profils présentent des concentrations qui décroissent avec l'altitude (C, D, F, H, I), tandis que d'autres sont plutôt constantes (A, G) ou bien avec des structures (B, E). Certains profils montrent des distributions de concentrations selon les gammes de tailles strictement décroissantes tandis que dans d'autres cas les concentrations sur les premières gammes de tailles sont du même ordre grandeur (sorte d'enchevêtrement F, G).

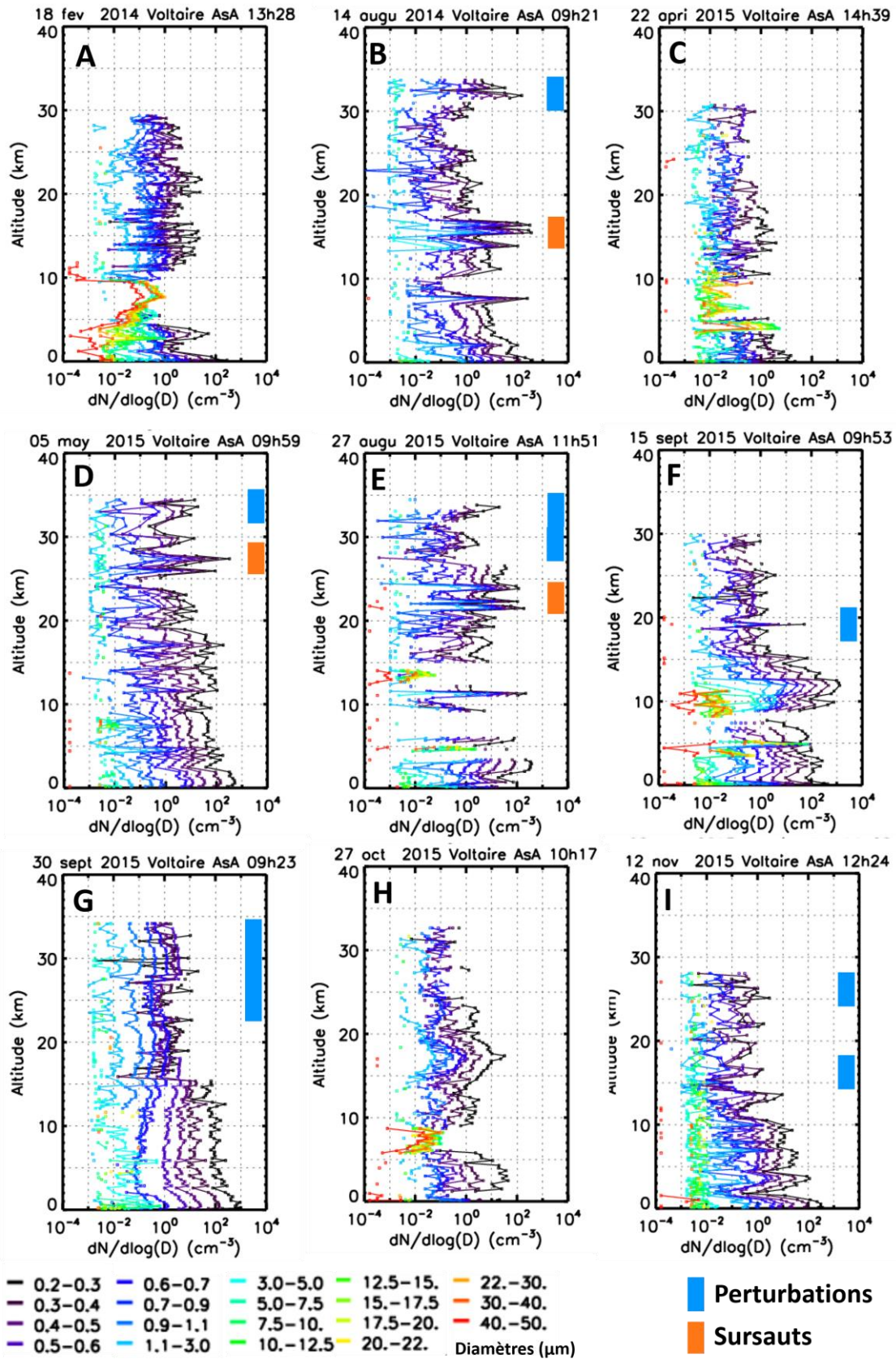


Figure 4.3 : Exemples de profils verticaux de concentrations par gamme de taille mesurés par LOAC lors de la campagne Voltaire-LOAC, chaque couleur représente la concentration selon la gamme de taille. La résolution verticale est d'une minute (environ 300 m). Les perturbations et les sursauts sont repérés par les rectangles bleus et oranges respectivement



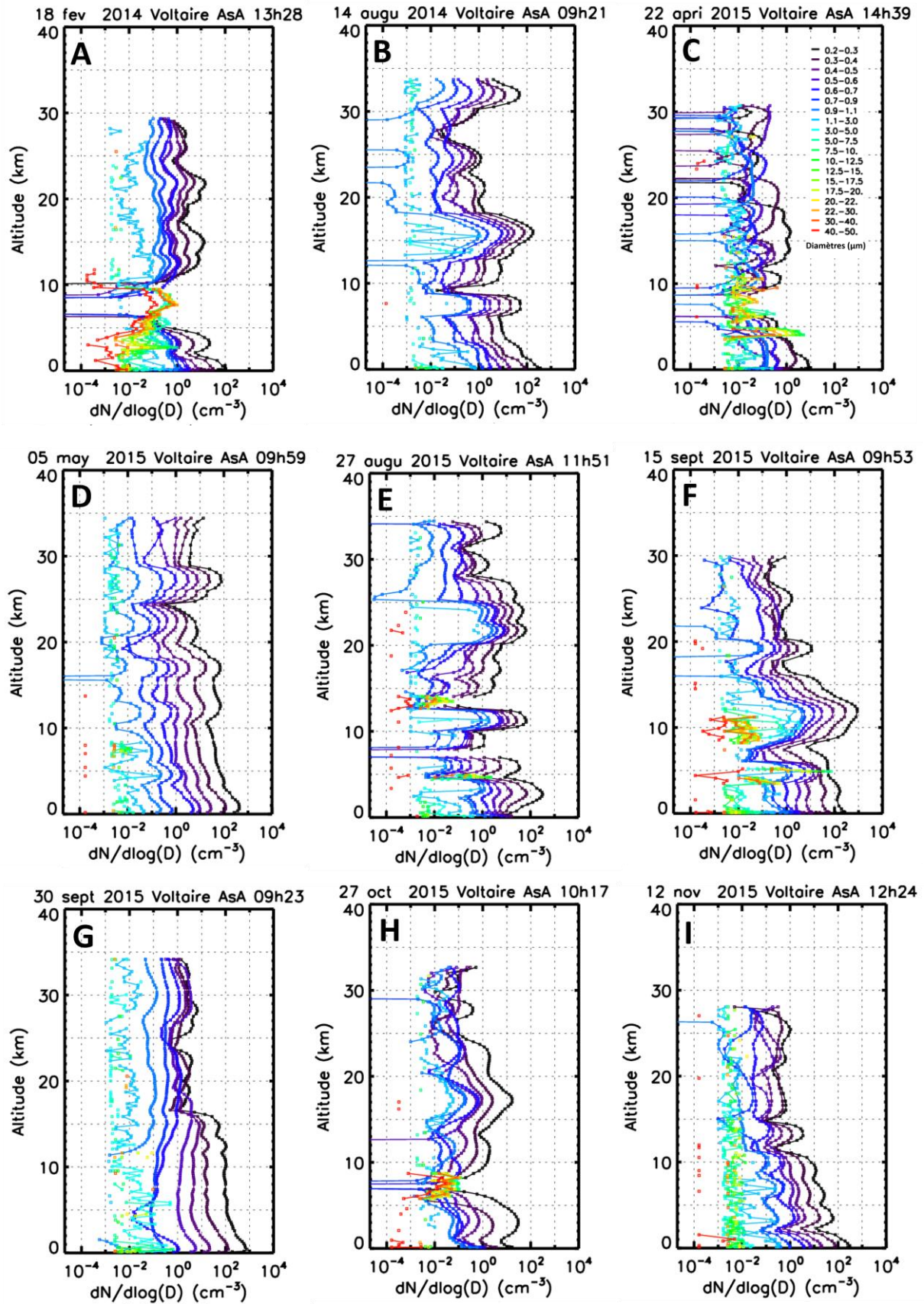


Figure 4.4 : Mêmes profils montrés en exemple que la figure précédente, avec le lissage préconisé par J.-B. Renard (voir texte)

La Figure 4.4 présente les mêmes profils avec le lissage par gamme de taille que préconise J.-B. Renard. Ce lissage est composé de deux moyennes glissantes successives sur 5 points puis sur 3 points et ce sur les 7 premières gammes de tailles. Ce lissage présente le bénéfice de faire apparaître l'enveloppe des concentrations en diminuant les variations du signal LOAC, au détriment d'un étalement des structures. Par exemple, la fine structure localisée à 19 km de concentration plus élevée sur le profil F s'inscrit sur moins de 300 m sur la Figure 4.3, tandis qu'elle est étalée par le lissage sur environ 2 km (Figure 4.4). Ce lissage améliore le profil A dans les gammes d'altitude 11 à 21 km en lissant les concentrations moyennes sur 1 minute qui semblent comme cisailées. Lors de forts gradients de concentration, exemple profil D gamme d'altitude 29 à 34 km, le lissage efface les structures des basses concentrations (minimum vers  $10^{-1} \text{ cm}^{-3}$ ) visibles sur les données à 1 minute et produit une concentration lissée constante de l'ordre de quelques  $10^0 \text{ cm}^{-3}$ .

a. Les 95 profils LOAC de la période mai 2013 à août 2016

Dans cette étude nous discutons les données LOAC selon les concentrations cumulées ainsi que selon les extinctions. Les concentrations cumulées (concentrations totales mesurées par LOAC, représentatives de la concentration de particules de diamètres compris entre 200 nm et 100  $\mu\text{m}$ ) sont dominées par la contribution des premières gammes de tailles compte tenu des distributions des concentrations stratosphériques en nombre centrées entre quelques dizaines de nm et 200 nm en diamètre. Les concentrations cumulées sont indépendantes de la nature des aérosols selon la technique de mesure LOAC.

Les extinctions sont utilisées pour se comparer aux autres instruments de mesure ; cette unité est couramment utilisée par la communauté internationale. L'extinction est une fonction du volume des concentrations ainsi que de la nature optiques des particules. Les extinctions sont dominées par les particules de grandes tailles à condition qu'elles soient présentes en assez grande concentration par rapport aux plus petites. Les distributions des concentrations stratosphériques ne comportant que relativement peu de particules de grand diamètres, ce sont les particules de diamètres supérieurs à 0,6 et inférieurs à quelques micromètres qui influencent majoritairement les extinctions. L'indice de réfraction optique conditionne également les extinctions. Pour cette étude, toutes les extinctions sont calculées avec l'hypothèse qu'il n'y a que des particules sulfatées en stratosphère ( $n_{H_2SO_4} \approx 1,45 + 0i$ ). Nous faisons ce choix afin de pouvoir comparer les données LOAC avec les autres instruments qui utilisent cette hypothèse. Seules les gammes de taille de 0,2 à 10  $\mu\text{m}$  sont retenues pour le calcul de l'extinction (la raison de ce choix est explicitée au chapitre 4.1.2.d).

Les 95 vols de la période mai 2013 à août 2016 sont représentés en concentrations cumulées et en extinctions sur les Figure 4.5 et Figure 4.6. L'altitude et la légende en abscisse sont notées sur le premier profil pour alléger la représentation. La courbe discontinue orange représente respectivement la moyenne des concentrations cumulées résiduelles (Figure 4.5) et la moyenne des extinctions résiduelles (Figure 4.6). Les zones grises représentent les variations à  $1 \sigma$  autour de ces valeurs. Les limites de détection sont symbolisées par la limite supérieure de la zone grise, puisque définie comme la moyenne des résidus +  $1 \sigma$ .

Ces représentations permettent d'avoir une vue globale des 95 vols individuellement. Sur l'ensemble des 95 vols, on remarque qu'une partie des données est de l'ordre des concentrations/extinctions résiduelles. En considérant les extinctions, certains profils stratosphériques ( $\sim 22\%$  des 95 vols) sont confondus avec l'extinction résiduelle avec des valeurs inférieures à la limite de détection (vols n° 9, 11, 16, 18, 21, 23, 25, 27, 28, 29, 30, 32, 37, 42, 50, 72, 81, 86, 90, 93). Certains profils ( $\sim 18\%$ ) sont centrés sur les extinctions résiduelles avec des sursauts plus ou moins larges significativement supérieurs à la limite de détection (vols n° 13, 28, 29, 31, 33, 34, 36, 47, 49, 53, 57, 60, 70, 78, 92, 94). Tandis que d'autres profils ( $\sim 14\%$ ) sont significativement au-dessus de la limite de détection (vols n° 7, 12, 17, 35, 41, 43, 48, 59, 65, 66, 74, 80, 89). Les autres profils non mentionnés ( $\sim 46\%$ ) ne sont significativement ni au-dessus ni en dessous de la limite de détection.

L'analyse en concentration cumulée est plus favorable ; compte tenu de la plus grande dispersion des concentrations cumulées (comparée à celles des extinctions), il existe moins de cas où celle-ci est centrée sur la concentration résiduelle et strictement inférieure à la limite de détection.

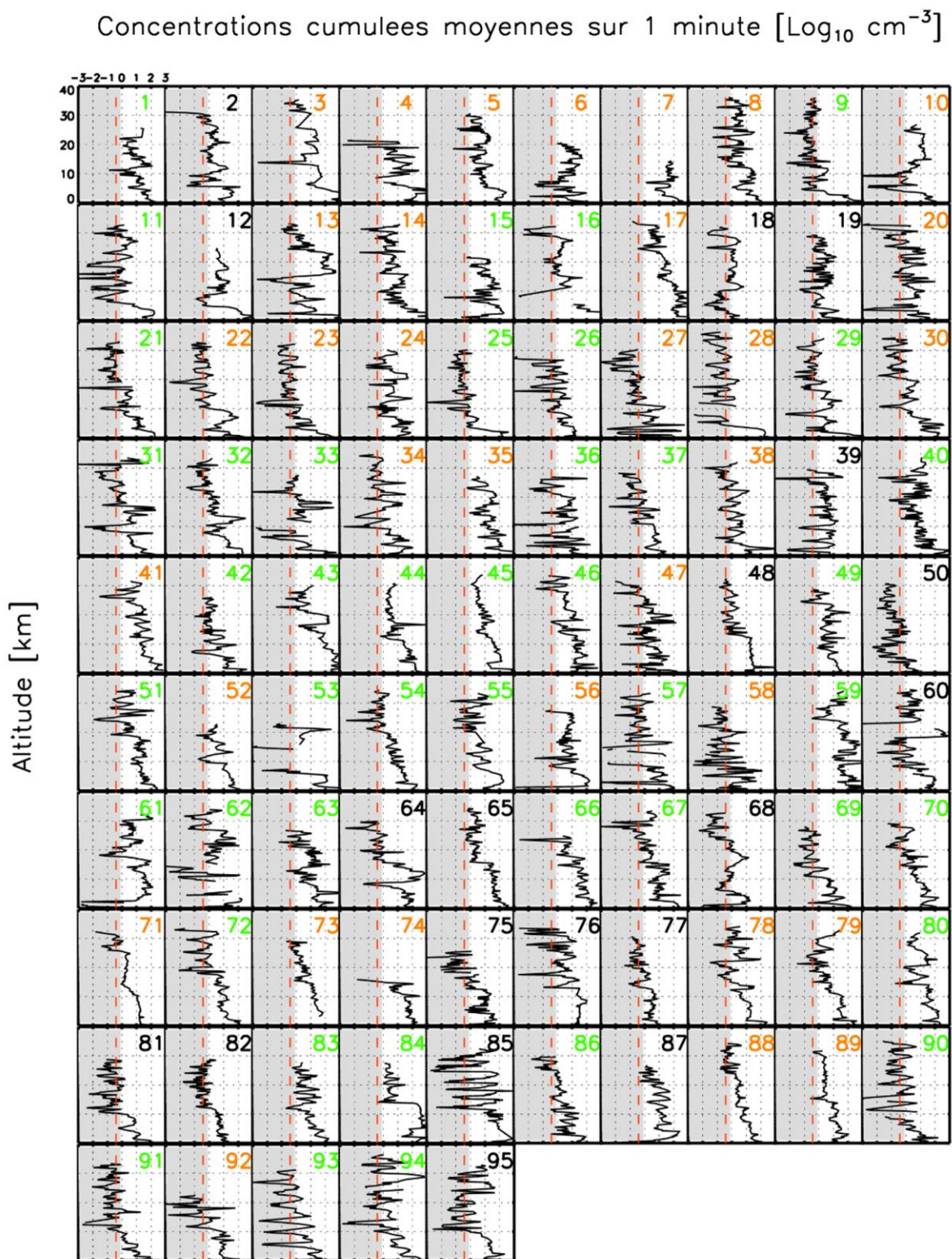


Figure 4.5 : Profils verticaux des 95 vols LOAC moyens par minute exprimés en concentration cumulée. La courbe discontinue orange est représentative de la moyenne de concentration cumulée résiduelle sur 1 minute établie en laboratoire. La zone grise représente la variation à  $1 \sigma$  de la concentration résiduelle. La limite de la zone grise vers  $0,8 \text{ cm}^{-3}$  représente la limite de détection en concentration cumulée sur 1 minute. Chaque numéro est relatif à un vol dans la période mai 2013 à août 2016. Sa couleur noire (prudence), jaune (passable) ou verte (nominal) est fonction du niveau de confiance défini par le niveau de confiance lié au bruit de l'instrument en vol

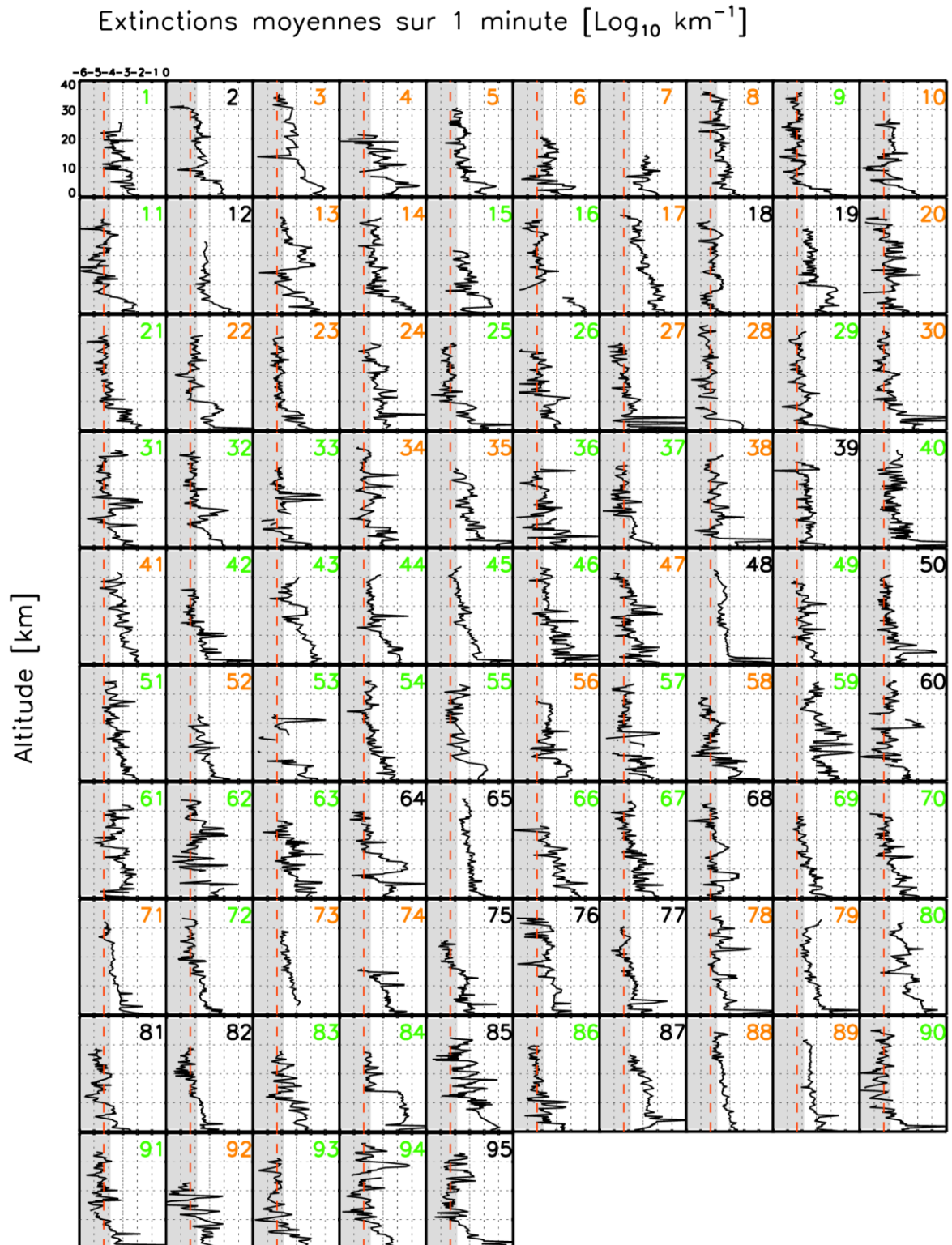


Figure 4.6 : Profils verticaux des 95 vols LOAC moyens par minute exprimés en extinctions calculées à 532 nm pour des particules sphériques d'indice de réfraction représentatif de gouttelettes d'acide sulfurique. Chaque numéro est relatif à un vol dans la période mai 2013 à août 2016. Sa couleur noire, jaune ou verte est fonction du niveau de confiance défini par le niveau de confiance lié au bruit de l'instrument en vol

Nous associons à chaque vol LOAC un indice de confiance déterminé en fonction de critères techniques recueillis pendant le vol ballon. Ces critères portent sur la qualité du bruit des photodiodes ainsi que sur la présence anormale de comptage sur la dernière gamme de taille lors de la mesure du bruit en vol. Cette note sur la confiance ne prend pas en compte le niveau de concentration en fonction limite de détection. Nous associons une note unique pour chaque vol. Cette note de 0 à 2 est organisée de la façon suivante : 0 (couleur noire) est associé à un vol à considérer avec prudence car la gaussienne de bruit est mauvaise et la présence de comptages anormaux est visible dans les données brutes, 1 (couleur jaune) pour un vol dont les conditions de bruit sont passables, 2 (couleur verte) pour un vol dans des conditions sont nominales. Sur le jeu de donnée des 95 vols, 18% reçoivent une note de 0, 36% une note de 1, 46% une note de 2 : 82 % des vols sont déclarés acceptables.

Les vols recevant une note de 0 ne sont pas rejetés mais sont considérés avec prudence. La note pour chaque vol est représentée par la couleur des numéros Figure 4.5 et Figure 4.6. Il n'existe pas de corrélation observable entre le niveau de confiance et l'allure des profils. Certains profils peuvent recevoir un indice de confiance acceptable et être indépendamment sous la limite de détection (exemple vols 72 ou 90). Des vols d'allures similaires en extinction comme par exemple les vols 45 et 65 ont chacun une note différente, de 0 et 2, respectivement pour ces vols.

### b. Les sursauts et les perturbations

Certains profils possèdent des structures de différentes intensités, plus ou moins étendues en altitude. Afin de classer les différents vols en fonction de ces structures, nous définissons trois classes de vols selon la présence de celles-ci. Seules les structures se trouvant au-dessus de 13 km sont retenues dans cette classification afin de ne considérer que les événements stratosphériques en dehors des structures que peuvent produire les nuages, la pollution anthropique ou les panaches de poussières désertiques. Nous classons les profils LOAC selon trois classes :

- Présence de sursauts : un vol avec sursaut se présente sous la forme d'un profil possédant une ou plusieurs augmentations de la concentration sur une large partie des gammes de tailles LOAC (de 200 nm à 1  $\mu$ m au moins, c'est-à-dire de la 1<sup>re</sup> à la 7<sup>e</sup> gamme de taille) accompagné parfois de détection sur les dernières gammes de taille. Le sursaut est une augmentation forte isolée sur 300 à 600 m d'altitude, ce qui représente 1 à 2 points sur les données moyennes sur 1 minute.
- Présence de perturbations : un vol présentant des perturbations est identifié par de rapides augmentations de la concentration de plus faibles amplitudes que les sursauts (structures larges et bruitées) sur plusieurs kilomètres se limitant aux premières gammes de tailles. Un vol est classé dans cette famille s'il ne présente pas en même temps des sursauts.
- Condition nominale : un vol LOAC ne présentant ni sursaut ni perturbation est déclaré nominal.

La détermination de la classe pour les vols est faite à partir des profils de distribution en taille moyennes sur une minute. La Figure 4.3 présente des cas de vols et présentant des sursauts et des perturbations identifiés par des rectangles de couleurs.

Sur les 95 vols LOAC obtenus par radiosondage au-dessus de la France pour la période mai 2013 à août 2016, environ 1/4 des vols présentent des sursauts, 1/4 des perturbations, et l'autre moitié est déclarée nominale (Figure 4.7). La fréquence d'apparition des perturbations est homogène dans le temps mais la distribution temporelle de l'apparition des sursauts montre un renforcement de leur présence mi 2014 et mi 2015 (Figure 4.7). Il est envisagé que ces sursauts apparaissant au mois d'août soient liés aux pluies d'étoiles filantes qui déposeraient cette période de l'année de la matière que LOAC détecte sous la forme de sursaut. Cette hypothèse est hautement spéculative.

En termes d'altitude, les sursauts apparaissaient entre 14 et 30 km. L'évolution temporelle des altitudes auxquelles apparaissent ces sursauts ne semble pas présenter de saisonnalité particulière (Figure 4.8 à gauche). La répartition verticale du nombre de sursauts détectés par bande de 2 km présente un maximum

vers 17 km environ (Figure 4.8 à droite). Au-dessus de 20 km, il apparaît encore des sursauts, mais la fréquence d'apparition décroît avec l'altitude.

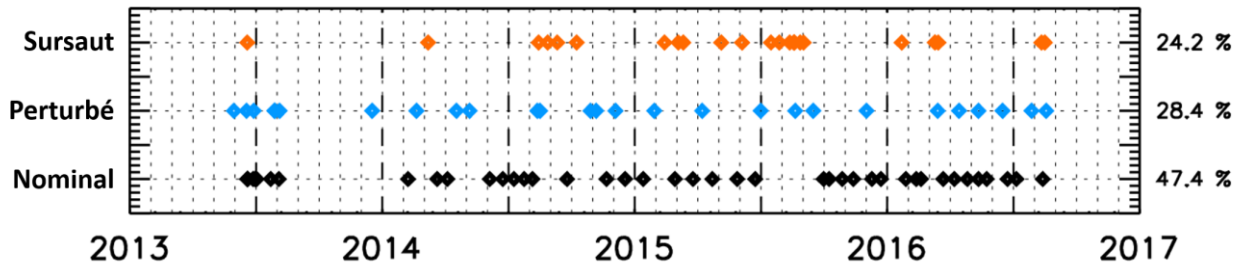


Figure 4.7 : Evolution temporelle des cas de vols LOAC présentant des sursauts, des perturbations ou aucun des deux. Environ  $\frac{1}{4}$  des vols présentent des sursauts

L'algorithme de traitement développé par Renard et al. (2016a) fait un premier traitement des sursauts trop importants et présents au maximum pendant 20 secondes. Il est envisagé que l'algorithme de traitement ne détecte pas certains cas limites de sursauts trop peu intenses et que l'hypothèse selon laquelle l'interaction avec le rayonnement cosmique est nécessairement inférieure à 20 secondes (1 ou 2 échantillons sur les données brutes de résolution temporelle 10s) soit trop stricte. Le rayonnement cosmique provient de particules hautement énergétiques qui interagissent avec l'atmosphère.

Cette hypothèse selon laquelle les sursauts que nous observons résultent de l'interaction avec le rayonnement cosmique est renforcée par le profil vertical de la présence de rayonnement cosmique dont l'allure verticale est donné Figure 3.20 (Dorman, 2013; Zanini et al., 2003). Le profil vertical de rayonnement cosmique trouve un maximum entre 17 et 20 km approximativement, et une lente décroissance au-dessus de 20 km qui semble correspondre à la distribution verticale de l'apparition des sursauts. Cette corrélation apparente de l'allure des profils ainsi que les effets sur l'interaction entre le rayonnement cosmique et le LOAC est convaincante, cependant il est difficile d'affirmer sur la base des allures de ces profils que tous les sursauts sont effectivement dus à la présence de rayonnements cosmiques.

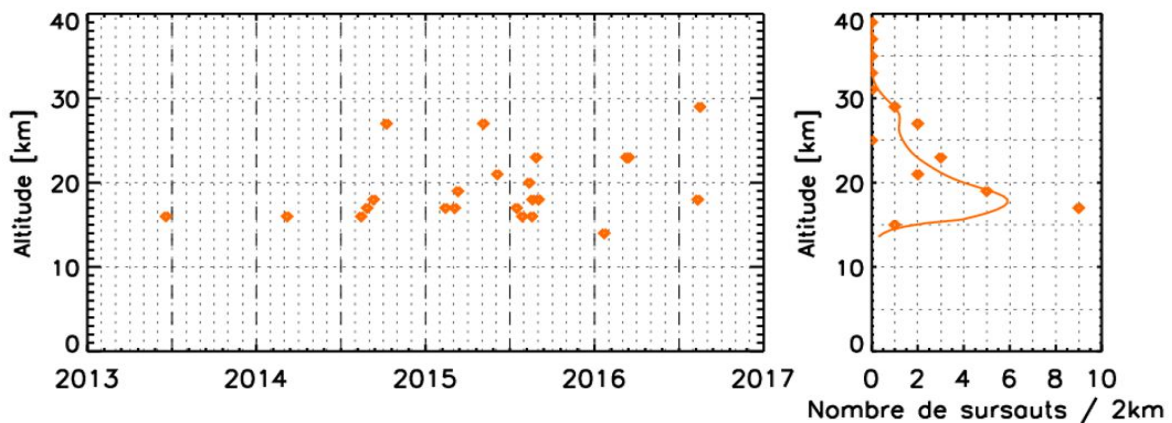


Figure 4.8 : A gauche, évolution temporelle de l'altitude des sursauts. A droite, répartition verticale du nombre de sursaut par 2 km (les points sont les occurrences tandis que la ligne pleine est un lissage)

## c. Variabilité verticale des données LOAC sur la période mai 2013 août 2016

Nous représentons la moyenne et la médiane des 95 vols à la résolution 1 minute (courbes grises ; Figure 4.9), exprimées en extinction par gamme de 3 km d'altitude (courbes bleue et violette ; Figure 4.9). Les extinctions sont calculées à partir des données de concentrations LOAC en conservant seulement des 10 premières gammes de taille (de 0,2 à 10,0  $\mu\text{m}$ ) et considérant qu'il est possible d'assimiler toutes les comptages à des particules sphériques d'acide sulfurique et d'indice de réfraction 1,45 sans partie imaginaire. Selon une vitesse ascensionnelle moyenne des ballons météorologiques de 5  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ , 3 km d'altitude représentent 10 minutes de mesures.

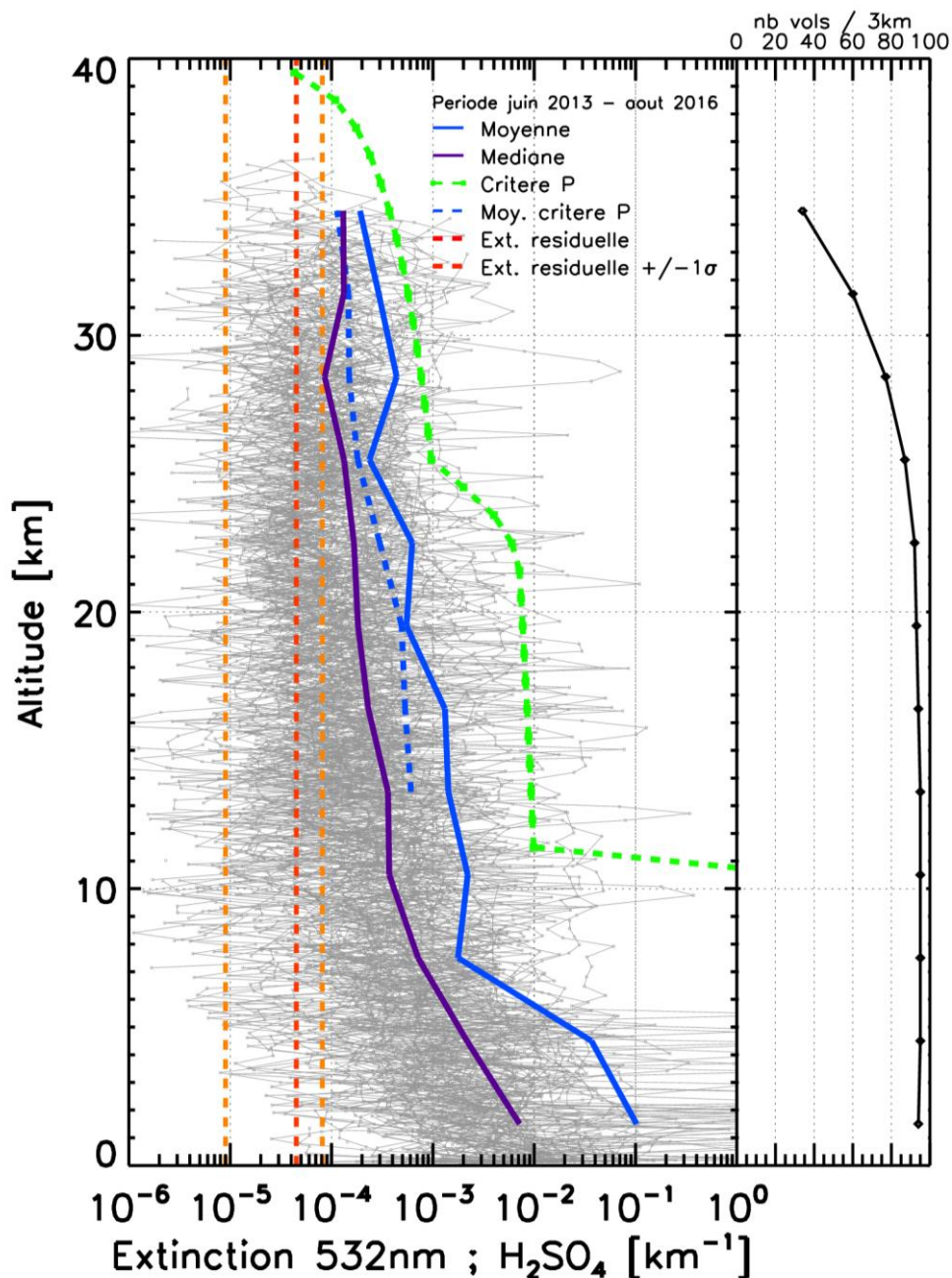


Figure 4.9 : Profils verticaux pour les 95 vols LOAC exprimés en extinction moyenne sur 1 minute (courbes grises). Le critère Pinatubo est représenté en vert pointillé. Les courbes bleues représentent les moyennes de distributions des extinctions moyennes par 3 km (trait plein sans tenir compte du critère Pinatubo, trait pointillé en excluant les valeurs supérieures aux extinctions du Pinatubo). La courbe violette est la médiane des distributions par 3 km. La courbe discontinue rouge indique la moyenne sur 10 minutes des extinctions résiduelles. Les courbes jaunes représentent la dispersion à  $1\sigma$  de la moyenne des extinctions résiduelles sur 10 minutes. Le nombre de vols pris en compte pour produire les moyennes et médianes sur 3 km est représenté par la courbe noire à droite

Les profils individuels LOAC sur 3 ans présentent des extinctions dispersées à la fois sur de petites échelles d'altitude d'un vol à un autre ainsi qu'entre les vols (courbes grises ; Figure 4.9). Tous ces vols sont obtenus depuis la France lors de situations stratosphériques de fond. En supposant que la situation en stratosphère évolue peu dans le temps, nous étudions la variation statistique de ces 95 vols par gammes d'altitudes.

La moyenne (courbe bleue) et la médiane (courbe violette) des extinctions sont différentes selon l'altitude. La médiane est strictement inférieure à la moyenne pour toutes les altitudes, ce qui nous renseigne sur la forme de ces distributions des extinctions selon l'altitude. Il existe une population centrée sur la médiane de plus faible valeur d'extinction et un faible nombre de valeurs élevées. La population de valeurs d'extinction plus importantes est attribuée aux sursauts décrits sur les profils individuels. Les moyennes et médianes sont calculées sur les extinctions et non sur les logarithmes des extinctions. Cela suppose que les distributions des extinctions par gamme d'altitude sont gaussiennes, alors qu'elles sont plutôt log-normales, ce qui a été vérifié en calculant les moyennes géométriques (moyennes sur le logarithme des extinctions). Nous n'utilisons pas les moyennes géométriques pour être cohérent avec le post-traitement des données qui est effectué sur les valeurs de concentrations et non sur les logarithmes (moyenne arithmétique). Cependant, la médiane est très proche des moyennes géométriques. Nous utiliserons par la suite la moyenne arithmétique et la médiane des distributions.

La moyenne et la médiane des extinctions sur 3 km sont comparées à la moyenne des extinctions résiduelles 10 minutes (courbe discontinue rouge Figure 4.9) accompagnée de sa dispersion à  $\pm 1 \sigma$  10 minutes (courbe discontinue orange Figure 4.9). La moyenne et la médiane sur 3 km sont significativement au-dessus de la limite de détection 10 minutes. Cela indique que statistiquement les LOAC détectent des particules jusqu'à 35 km si l'on considère que l'on peut extrapoler les limites de détection obtenues en laboratoire à température constante lors de mesure sous ballons météorologiques.

Dans la gamme d'altitude 36-39 km, seulement 2 vols contribuent à la moyenne 3 km. Les résultats de ces deux vols dans la gamme 36-39 sont injectés dans la gamme 33-36 km puisque les altitudes maximum atteintes pour ces deux vols sont inférieures à 36,4 km.

Lors de la période mai 2013 à août 2016, aucune éruption de la magnitude du Pinatubo ne perturbe la stratosphère aux moyennes latitudes nord. Cependant, certaines des extinctions 1 minute LOAC sont supérieures aux extinctions mesurées lors de l'éruption du Pinatubo aux latitudes moyennes (Thomason et al., 1997; Vernier et al., 2011b). Nous construisons un profil vertical des extinctions Pinatubo à partir de la climatologie SAGE II et la représentons par la courbe verte discontinue sur la Figure 4.9, nous nommons cette courbe critère Pinatubo. Une seconde moyenne des extinctions LOAC est calculée en excluant les valeurs supérieures au critère Pinatubo et représentée par la courbe discontinue bleue sur la Figure 4.9, nous nommons cette courbe moyenne avec critère Pinatubo. Cette moyenne avec critère Pinatubo est admise comme étant corrigée des sursauts de fortes amplitudes.

La tendance verticale des extinctions moyennes (avec et sans le critère Pinatubo) et médiane sont globalement décroissante avec l'altitude. Les moyennes et la médiane sont comprises entre  $2 \cdot 10^{-3}$  et  $2 \cdot 10^{-4}$  à 15 km et entre  $1 \cdot 10^{-4}$  et  $3 \cdot 10^{-4}$  à 30 km.

#### d. Evolutions des distributions des concentrations selon les gammes de tailles et l'altitude

La Figure 4.10 représente les distributions des concentrations selon les gammes de tailles LOAC par gamme de 3 km d'altitude. Les distributions grises sont les distributions moyennes sur 3 km pour chaque vol, la moyenne et la médiane de ces distributions sont représentées respectivement en bleu et en violet. La distribution rouge est la représentation de la limite de détection combinée avec la limite de discrimination minimale. L'altitude de la tropopause n'est pas prise en compte dans cette analyse. Cependant, celle-ci a été calculée pour chaque vol et est toujours strictement inférieure à 15 km. Nous considérons que l'influence de la tropopause peut agir sur les gammes 12 à 15 et 15 à 18 km. Au-delà son influence est négligeable.



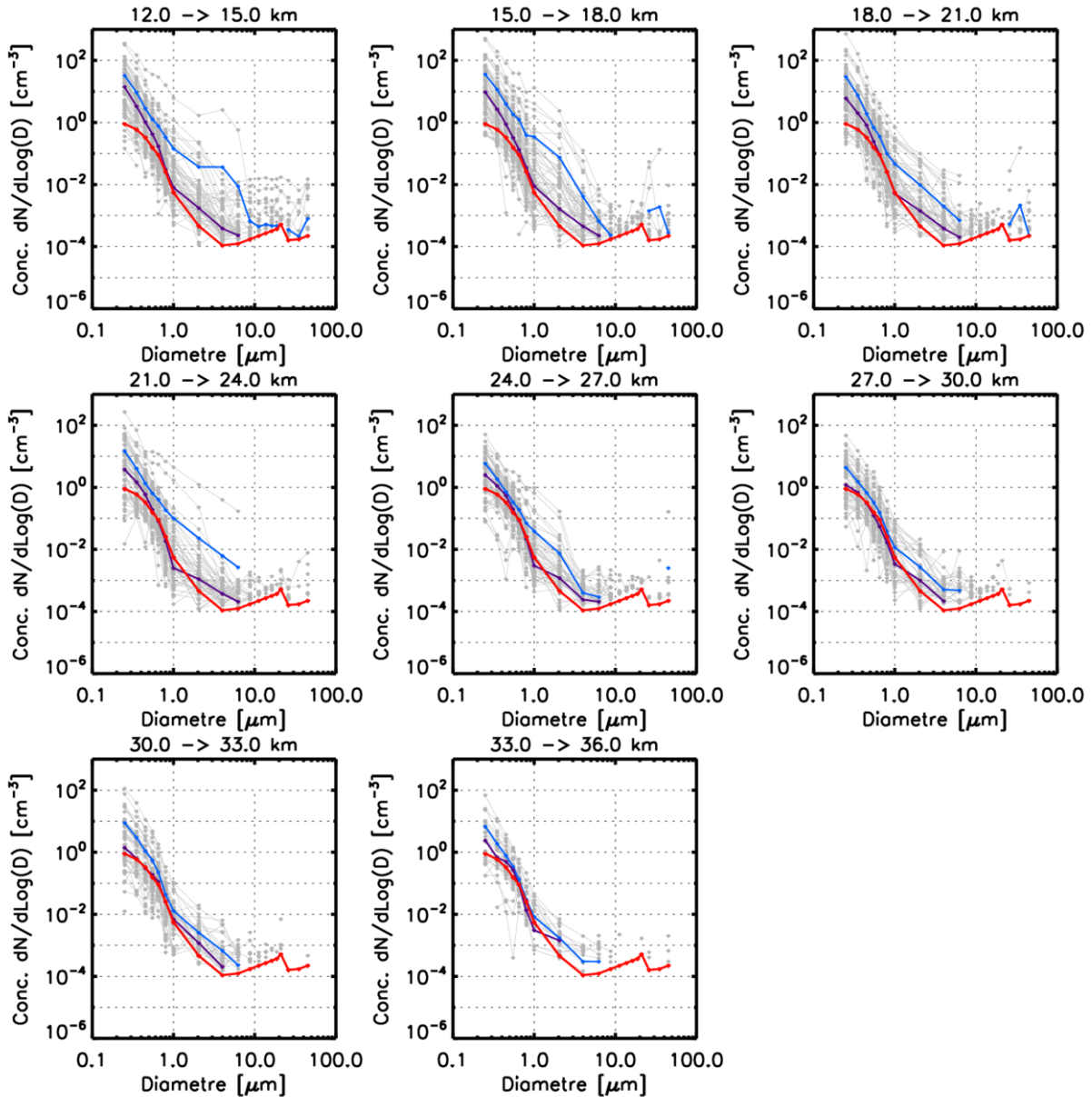


Figure 4.10 : Distributions en tailles des concentrations LOAC par tranche de 3 km pour les vols de la période mai 2013 à août 2016. La moyenne et la médiane des concentrations par gamme de taille sont respectivement représentées par les courbes bleue et violette. La distribution rouge représente la limite 10 minutes combinée de détection  $1\sigma$  et de discrimination minimale.

Les distributions des concentrations par gamme de taille et par gamme de 3 km évoluent avec l'altitude. En haute troposphère et basse stratosphère jusqu'à 21 km, les concentrations sont plus élevées et présentent des distributions assez larges. Au-dessus de 21 km, la moyenne et la médiane des distributions tendent vers la limite de détection et indiquent que les concentrations des particules microniques diminuent avec l'altitude. La distribution des concentrations au sein d'une même gamme de taille n'est pas gaussienne sur l'ensemble des vols ; la moyenne et la médiane ne sont pas confondues. La moyenne est tirée par des événements de fortes amplitudes (ici les perturbations ne sont pas retirées). La médiane est moins sensible aux événements de forte amplitude car ces événements sont de faible occurrence.

La différence entre les moyennes des concentrations mesurées (courbe bleue Figure 4.10) et la limite de détection (courbe rouge Figure 4.10) pour les 3 premières gammes de tailles est significative (supérieure à un facteur 2) quasiment à toutes les altitudes jusqu'à 30 km. A partir de 30 km, les concentrations des particules de diamètres supérieurs à  $0,5\ \mu\text{m}$  sont de l'ordre de la limite de détection (moyenne des

concentrations résiduelles + 1  $\sigma$ ). Les moyennes des concentrations de particules de diamètres compris entre 2 et 8 microns sont supérieures à la limite de discrimination minimale à toutes les altitudes. On vérifie que la limite de discrimination minimale (concentration associée à une particule échantillonnée en 10 minutes) est effectivement la limite en dessous de laquelle aucune moyenne 10 minutes ne peut être détectée ; aucune courbe grise n'est inférieure à la courbe rouge à partir de 4  $\mu\text{m}$ . Cependant il apparaît des moyennes 10 minutes inférieures à la limite de discrimination à 2  $\mu\text{m}$ , ce qui implique que la détection statistique influence les comptages jusqu'à la huitième gamme de taille en vol (de gamme de taille 1,1 à 3  $\mu\text{m}$ ).

La médiane des concentrations par gamme de taille est confondue avec la limite de détection à partir de 27 km d'altitude, cela signifie que la moitié des distributions à partir de 27 km est inférieure à la moyenne des concentrations résiduelles plus 1  $\sigma$ , ce qui ne permet pas de les considérer statistiquement comme des détections de particules. Entre 21 et 27 km, la médiane des concentrations des particules de diamètres compris entre 0,5 et 1  $\mu\text{m}$  est de l'ordre de la limite de détection. Pour les concentrations de 2 à 8  $\mu\text{m}$ , la médiane est supérieure à la limite de détection/discrimination d'un facteur 2 au mieux.

La détection de larges particules supérieure à 10  $\mu\text{m}$  est significative pour les données sur 10 minutes si l'on considère les vols pris indépendamment. Cependant, certaines des moyennes et des médianes sur 3 ans (courbes bleues fines Figure 4.10) sont inférieures à la limite de discrimination. Il est difficile d'interpréter une moyenne constituée de valeurs détectées et de non-détectées. Pour cette raison nous ne retenons dans cette étude que les concentrations des gammes de tailles inférieures à 10  $\mu\text{m}$  pour calculer les extinctions.

#### e. Variabilité temporelle des extinctions LOAC

Les moyennes des extinctions mesurées dans une gamme de 3 km d'altitude sont représentées Figure 4.11. Les courbes discontinues verte, rouge et orange sont respectivement le critère Pinatubo, la moyenne 10 minutes des concentrations résiduelles et cette moyenne  $\pm 1 \sigma$ . Une faible proportion des données LOAC est supérieure au critère Pinatubo en moyenne sur 3 km, environ 2% des extinctions moyennes sur 3 km pour les altitudes 15 à 30 km. Les pourcentages des moyennes par gamme de 3 km supérieures à la moyenne des concentrations résiduelles et à la limite de détection sont supérieurs à 50 % pour toutes les altitudes. La proportion des données potentiellement trop bruitées pour être interprétées augmente avec l'altitude (Tableau 4.1).

Gamme d'altitude [km]	Nb moyennes disponibles	Pourcentage de moyennes au-dessus de la moyenne résiduelle [%]	Pourcentage de moyennes au-dessus du seuil de détection [%] (moyenne résiduelle + 1 $\sigma$ )
15 – 18	94	91	78
18 – 21	93	95	75
21 – 24	92	83	64
24 – 27	87	85	70
27 – 30	77	82	54
15 – 30	443	87	69

Tableau 4.1 : Nombre de proportion des vols où la moyenne sur 10 minutes par gammes de 3 km d'altitude (10 minutes) est supérieur à la moyenne des concentrations résiduelles et au seuil de détection

Comme l'indique le Tableau 4.1, la gamme d'altitude 15 à 18 km représentative de la basse stratosphère au-dessus de la France, des pics d'extinctions sont présents pendant les mois d'août 2013, 2014 et 2015 ainsi qu'en février 2015 et mai 2016. Pour la gamme de d'altitude 18 à 21 km, les périodes de pics d'extinction de plus forte intensité sont relativement les mêmes que 3 km en dessous ce qui témoignent d'une relative homogénéité selon l'altitude en basse stratosphère. L'amplitude des pics est d'un peu plus de 2 ordres de grandeur ( $10^{-4}$  à quelques  $10^{-2} \text{ km}^{-1}$ ) entre 15 et 18 km et diminue entre 18 et 21 km (de l'ordre de quelques  $10^{-4}$  à quelques  $10^{-3} \text{ km}^{-1}$ ). Au-delà de 21 km, la périodicité d'apparition des pics en basse stratosphère n'est plus visible mise à part vers septembre 2014 entre 24 et 27 km.

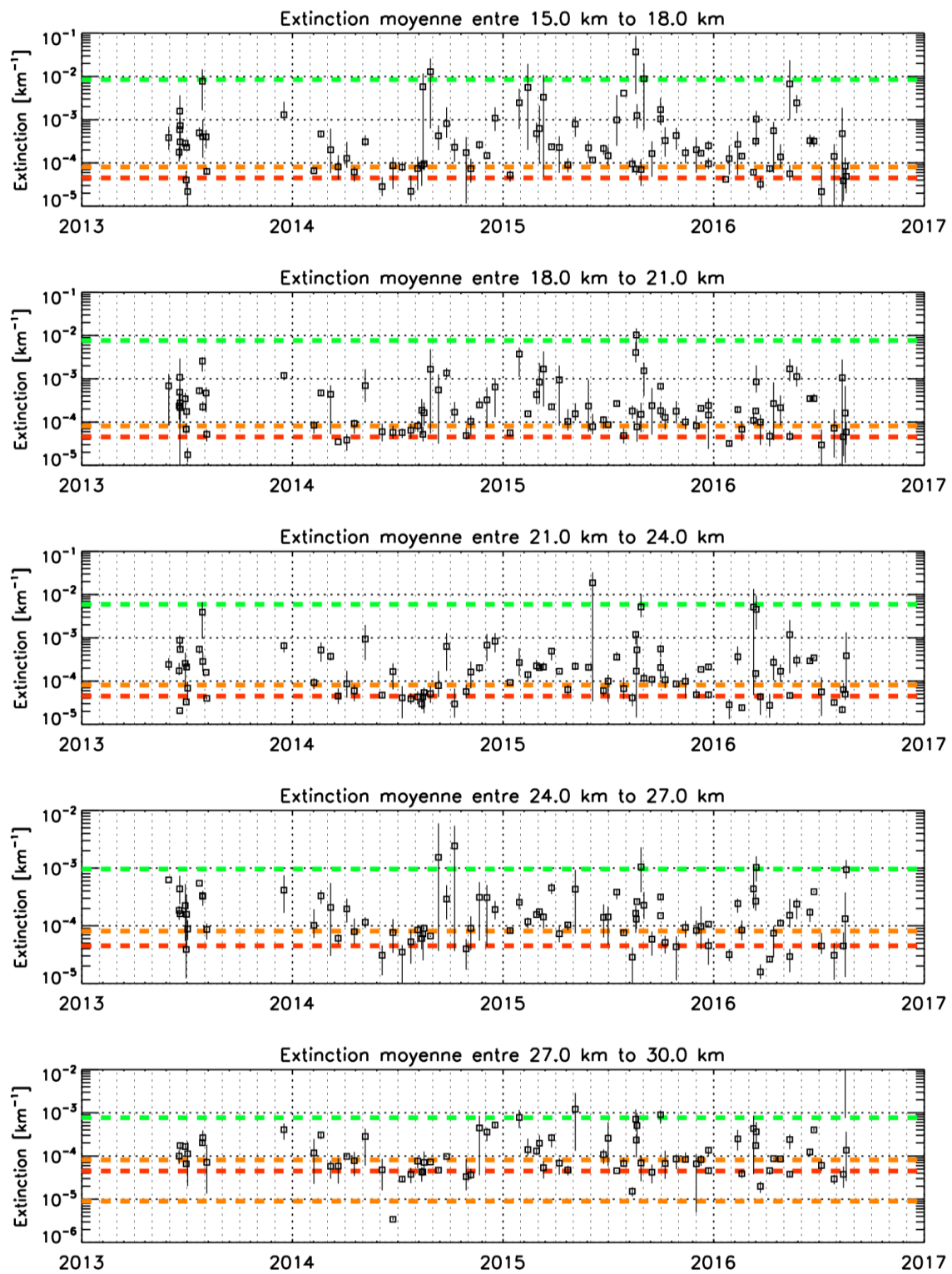


Figure 4.11 : Variabilité temporelle des extinctions moyennes LOAC par gamme de 3 kilomètres. Chaque carré représente la moyenne des extinctions LOAC accompagnée d'une barre d'incertitude représentative des valeurs minimale et maximale mesurées dans la gamme de 3 km. La ligne pointillée verte représente le critère Pinatubo. Les courbes discontinues rouge et orange sont respectivement la moyenne des extinctions résiduelles et sa dispersion à  $\pm 1\sigma$

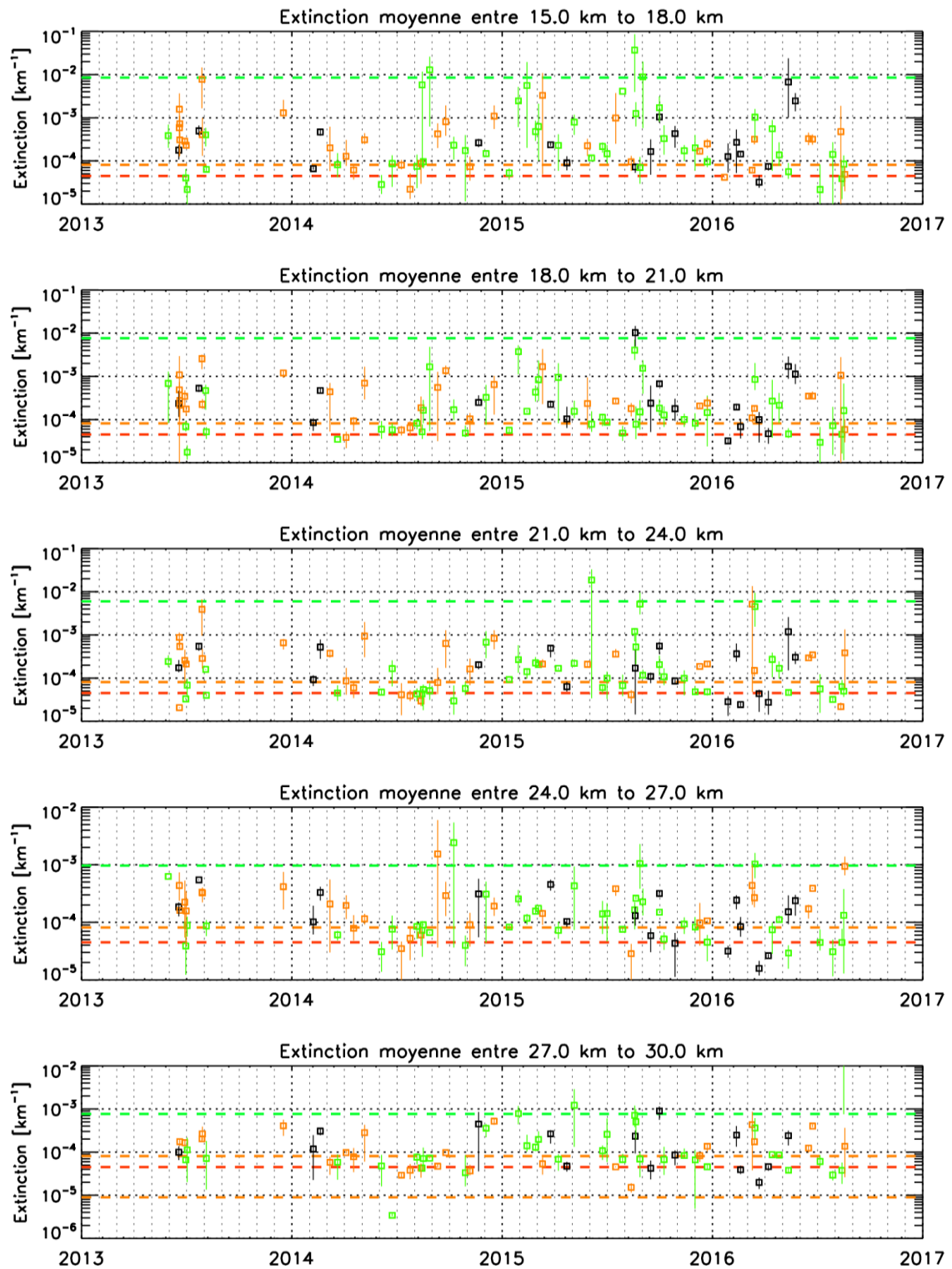


Figure 4.12 : Variabilité temporelle des extinctions moyennes LOAC par gamme de 3 kilomètres. Chaque carré représente la moyenne des extinctions LOAC accompagnée d'une barre d'incertitude représentative des valeurs minimale et maximale mesurées dans la gamme de 3 km. La ligne pointillée verte représente le critère Pinatubo. Les courbes discontinues rouge et orange sont respectivement la moyenne des extinctions résiduelles et sa dispersion à  $\pm 1\sigma$ . Chaque couleur de carré est associée à la note de confiance du vol. La ligne pointillée verte représente le critère Pinatubo. Les courbes discontinues rouges et orange sont respectivement la moyenne des extinctions résiduelles et sa dispersion à  $\pm 1\sigma$ .

La Figure 4.12 représente les mêmes résultats que la Figure 4.11 avec les indices de confiance sur les vols. Il n'apparaît pas de corrélation entre la note de confiance et l'apparition des pics d'extinction, ni avec des extinctions sous la limite de détection. Une population d'indices de confiance de 0 (points noirs) représentative de vols bruités est visible début 2016 mais ne permet pas d'attribuer une période où la confiance est significativement basse, ni de période où la confiance est notoirement haute. On remarque que les niveaux de confiance sont généralement bons lors des pics proches et supérieurs au critère Pinatubo.

### 4.1.3 Conclusion sur le jeu de données LOAC

Les données LOAC mesurées sous ballons météorologiques en stratosphère au-dessus de la France pour la période de mai 2013 à août 2016 exprimées en extinction sont dispersées autour d'une moyenne qui décroît avec l'altitude. La médiane des données est inférieure à la moyenne, indiquant le caractère non gaussien des distributions par gammes d'altitudes, qui s'avère plutôt log-normal.

Une proportion de sursauts attribuée à l'interaction avec le rayonnement cosmique décroît avec l'altitude au-delà d'un maximum vers 16-18 km. Une certaine variabilité par gamme d'altitude apparaît comme bruitée sans de saisonnalité clairement identifiable. La proportion des détections significatives décroît avec l'altitude, la médiane des extinctions est proche de la limite de détection à partir de 27 km d'altitude.

Des pics d'extinctions importantes sont reportés par l'instrument, entre un ordre de grandeur et deux par rapport aux valeurs d'extinctions LOAC de fond. Ces pics ne présentent globalement pas de saisonnalité apparente. Certaines de ces valeurs sont plus importantes que les extinctions mesurées lors de la dernière éruption majeure. Ces valeurs extrêmes témoignent probablement soit d'une importante variabilité des extinctions en période de fond, soit d'un biais instrumental encore non expliqué.

## 4.2 Comparaison de l'évolution du contenu en extinction LOAC à des sources de données indépendantes

### 4.2.1 Présentation du jeu de données indépendantes

Pour comparer les données LOAC, nous sélectionnons les données de 3 instruments satellites, un lidar sol et les sorties d'un modèle global couvrant la période de mesure LOAC (2013 à 2016). Les 3 instruments spatiaux sont présentés au chapitre 2.4. Nous présentons ici le lidar sol et le modèle global.

#### a. LiO3S/OHP

Le lidar de l'Observatoire de Haute-Provence (OHP) (44°N ; 6°E) LiO3S est dédié à la mesure de l'ozone stratosphérique (355 nm) de laquelle il est extrait l'extinction des particules stratosphériques (Godin-Beekmann et al., 2003; Khaykin et al., 2016). La distribution des particules selon leur taille ainsi que leur propriété optique est contenue dans le terme de rapport lidar constant dans le temps et l'altitude. Ce lidar fonctionne la nuit par temps clair pendant une durée de l'ordre de 3 à 5 h. Lors du jour, le rayonnement solaire ne permet pas son fonctionnement (rapport signal sur bruit trop faible). La méthode implique une altitude de référence où l'extinction est nulle. Cette référence est prise entre 30 et 33 km d'altitude (Khaykin et al., 2016). La diffusion moléculaire est calculée à partir des données NCEP (*National Centers for Environment Prediction*) ainsi qu'avec les données de radiosondage. Les lidars sol permettent de rendre compte d'une mesure locale de résolution verticale 150 m. Les incertitudes cumulées liées à la possibilité de présence d'aérosols à l'altitude de référence, au bruit du détecteur ainsi que sur le ratio lidar sont inférieures à 7 % pour les altitudes stratosphériques et pendant le temps d'intégration de quelques heures (Chazette et al., 1995). Dans la suite de cette étude, le lidar LiO3S est nommé lidar OHP.

#### b. WACCM-CARMA/CESM

Le modèle CESM (*Community Earth System Model*) permet une simulation globale du système planétaire Terre (Garcia et al., 2007; Marsh et al., 2013). Ce modèle est composé de différents modules organisés par compartiments géophysiques (Surface, Océans, Glace et Atmosphère). Nous utilisons dans cette étude les

## 4.2 Comparaison de l'évolution du contenu en extinction LOAC à des sources de données indépendantes

sorties du module Atmosphère nommé WACCM (*Whole Atmosphere Community Climate Model*) qui utilise comme données d'entrée les sorties des autres modules CESM (Océans, Glace et Surface). Le Module WACCM assimile également les données dynamiques MERRA (*Modern Era Restrospective-analysis for Research and Application*) qui force le modèle par des mesures de température, pression et champs de vent. Dans cette étude, les données d'extinction aérosol WACCM ont été simulées avec un module de chimie-aérosol spécifique pour le soufre nommé CARMA (*Community Aerosol and Radiation Model Atmopshere*) (Toon et al., 1988), qui utilise comme données d'entrée des cartes de flux d'espèces chimiques soufrées issues de différentes sources géophysiques (sources anthropiques notamment asiatiques, sources océaniques et volcaniques). Dans cette étude, le modèle WACCM rend compte seulement de l'extinction des particules soufrées. La simulation a été produite par T. Lurton et F. Jégou du LPC2E. La résolution spatiale du modèle est de 1° par 1° de longitude et de latitude par 1 km d'altitude. La résolution temporelle est de 1 jour.

### 4.2.2 Stratégie de comparaison

Afin de pouvoir comparer les différents jeux de données, différents critères sont établis afin d'homogénéiser les informations.

#### a. Coefficient d'Angstrom et rapport lidar

Les mesures à distance OSIRIS ( $\lambda = 675$  nm), OMPS ( $\lambda = 750$  nm) et lidar OHP ( $\lambda = 355$  nm) sont converties en extinctions à 532 nm grâce à un coefficient d'ajustement spectral. Ce type de coefficient suppose qu'il existe une dépendance spectrale entre l'extinction des particules et la longueur d'onde d'observation sous la forme d'une loi de puissance. Ce coefficient est une fonction de la nature optique des aérosols et des distributions en tailles des particules. Ces coefficients sont déterminés par l'expérimentation et montrent une certaine variabilité selon la nature des particules (Lenoble et Pruvost, 1983; Ramachandran et Jayaraman, 2003) ou bien selon le nombre de modes que comportent les distributions (Schuster et al., 2006). Supposer un coefficient constant selon l'altitude et le temps implique que la variabilité de la nature et des distributions en tailles des particules stratosphériques est supposée négligeable.

Les lidars OHP et CALIOP mesurent un coefficient de rétrodiffusion. Cette grandeur est proportionnelle à l'extinction à travers le rapport lidar. Cette grandeur traduit le rapport de rétrodiffusion sur l'extinction. Un rapport lidar de 50 est généralement utilisé par les communautés lidar, cependant cette valeur peut varier d'environ 30 à 100, ce qui représente environ une incertitude  $\pm 50$  % sur l'extinction (Choi et al., 2010; Jäger et Deshler, 2002).

Les extinctions LOAC sont calculées à la longueur d'onde 532 nm à partir des concentrations. Les extinctions LOAC sont des extinctions « partielles » en tant qu'elles sont représentatives d'une portion de la distribution en taille supérieure à 200 nm et inférieure à 10  $\mu$ m. L'analyse des distributions des extinctions par gamme de taille montre que la contribution des extinctions des particules de taille micronique à quelques  $\mu$ m est majoritaire, ce qui nous permet d'estimer que les extinctions LOAC « partielles » peuvent être comparées aux extinctions des autres jeux de données.

#### b. Représentativité spatiale et temporelle

Les données satellites, lidar sol et WACCM sont inter-comparées avec LOAC selon une période temporelle et une zone spatiale. La période de janvier 2013 à décembre 2015 est retenue pour cette étude pour couvrir la période des données LOAC (mai 2013 à décembre 2015). La zone spatiale retenue est décrite sur la Figure 4.1, de coordonnées 38° à 50°N de latitude et -6° à 10°E de longitude. Cette zone spatiale est déterminée pour conserver une bonne fréquence d'échantillonnage des données satellites. Avec cette zone, nous comparons les données LOAC avec environ 1 passage du satellite tous les 5 jours en moyenne pour OSIRIS et 1 tous les 2 jours pour OMPS (Tableau 4.2). Lors de chaque passage, le satellite effectue 1 ou plusieurs profils qui sont moyennés par jour. Les données lidars CALIOP et OHP sont quant à elles moyennées sur des périodes de temps respectives de 1 mois et une semaine. La représentativité spatiale de CALIOP est zonale de 35° à 50°N.

Chaque instrument réalise des mesures avec une représentativité spatiale différente. OSIRIS et OMPS produisent un profil représentatif d'une surface de quelques  $10^3$  km<sup>2</sup>. Dans cette étude, les données CALIOP sont fournies en moyenne zonale sur 15° en latitude. Le lidar OHP échantillonne l'atmosphère à l'aide d'un laser, ce qui représente un volume de l'ordre de grandeur de la centaine de cm<sup>2</sup>. Le modèle WACCM possède une grille de 2,5° en longitude et 1,875° en latitude, ce qui représente une résolution d'environ  $40.10^3$  km<sup>2</sup> au-dessus de la France. Le rapport du volume échantillonné par unité de temps du LOAC par la vitesse ascensionnelle du ballon permet d'estimer la section de la colonne représentative de la mesure. Cette section est de l'ordre de 6 mm<sup>2</sup>. Enfin la zone de comparaison retenue est une surface de l'ordre de  $1,7.10^6$  km<sup>2</sup>.

Instrument et modèle	Période temporelle disponible	Nb de profils disponibles	Fréquence d'échantillonnage	Représentativité en surface d'un profil / km d'altitude	Zone géographique	Longueur d'onde en nm avant conversion	Coefficient Angstrom/Lidar
OSIRIS/ODIN	2013 – 2015	240	~1/5 jours	~ $10^3$ km <sup>2</sup>	38°N → 50°N -6°E → 10°E	750	2.0/-
OMPS-LP/SNPP	2013 – 2015	698	~1/2 jours	~ $10^3$ km <sup>2</sup>	38°N → 50°N -6°E → 10°E	675	1.8/-
CALIOP/CALIPSO	2013 – 2014	23	1/mois	moyenne zonale	Moyenne zonale 35°N → 50°N	532	-/50
LiO3S/OHP	2013 – 2015	156	1/semaine	~ qq cm <sup>2</sup>	44°N ; 6°E	355	1.3/50
WACCM/CESM	Juillet 2013 – juillet 2015	1460	1/jour	~ $40.10^3$ km <sup>2</sup>	38°N → 50°N -6°E → 10°E	500	-/-
LOAC/Ballon	Mai 2013 – décembre 2015	73	~1/2 semaines	~ qq mm <sup>2</sup>	AsA : 43°N ; 0°E Ury : 48°N ; 2°E Min : 39°N ; 4°E IdL : 43°N ; 6°E	532	-/-

Tableau 4.2 : Liste des jeux de données et leurs caractéristiques utilisés pour l'inter comparaison

Le temps d'échantillonnage par kilomètre pour ces instruments est également différent. OSIRIS et OMPS réalisent un profil en une dizaine de seconde. Par jour, et lorsque les satellites passent au-dessus de la France, la moyenne de 2 à 4 profils pour OSIRIS et OMPS représente une moyenne des aérosols stratosphériques d'environ quelques minutes. Les lidars CALIOP et OHP doivent être moyennés sur une plus grande période, ils sont directement représentatifs des conditions sur un mois et une semaine respectivement. La simulation WACCM fournit 1 extinction par jour. La représentativité temporelle des mesures LOAC par gamme de 1 km est d'environ 3 minutes.

### 4.2.3 Résultats

L'évolution temporelle des extinctions par bande de 3 kilomètres pour la période 2013 à 2015 au-dessus de la France est relativement constante selon les données satellites, modèle ou lidar sol (Figure 4.13). Ces données sont cohérentes entre-elles et montrent peu de fluctuation temporelle comparée à celle de LOAC. Cette dispersion temporelle relativement faible des mesures à distance par rapport aux extinctions sont en accord avec l'hypothèse d'une stratosphère en période de fond.

Les fluctuations temporelles des données LOAC peuvent s'expliquer par le caractère extrêmement local de la mesure comparée aux mesures à distance beaucoup plus intégrées. Pour discuter les variations de mesures in situ bimensuelles obtenues par un compteur de particules avec des données satellites il faut discuter de la représentativité des 20 litres échantillonnés LOAC dans une gamme de 3 km (10 minutes) avec les  $3.10^9$  litres représentatifs de la mesure OSIRIS et OMPS. La représentativité du volume du lidar CALIOP ainsi que celle du modèle WACCM sont bien supérieures à celles d'OSIRIS et OMPS. Le volume de mesure du lidar OHP est assez faible, cependant, le fait de moyennner sur une semaine réduit la dispersion.

4.2 Comparaison de l'évolution du contenu en extinction LOAC à des sources de données indépendantes

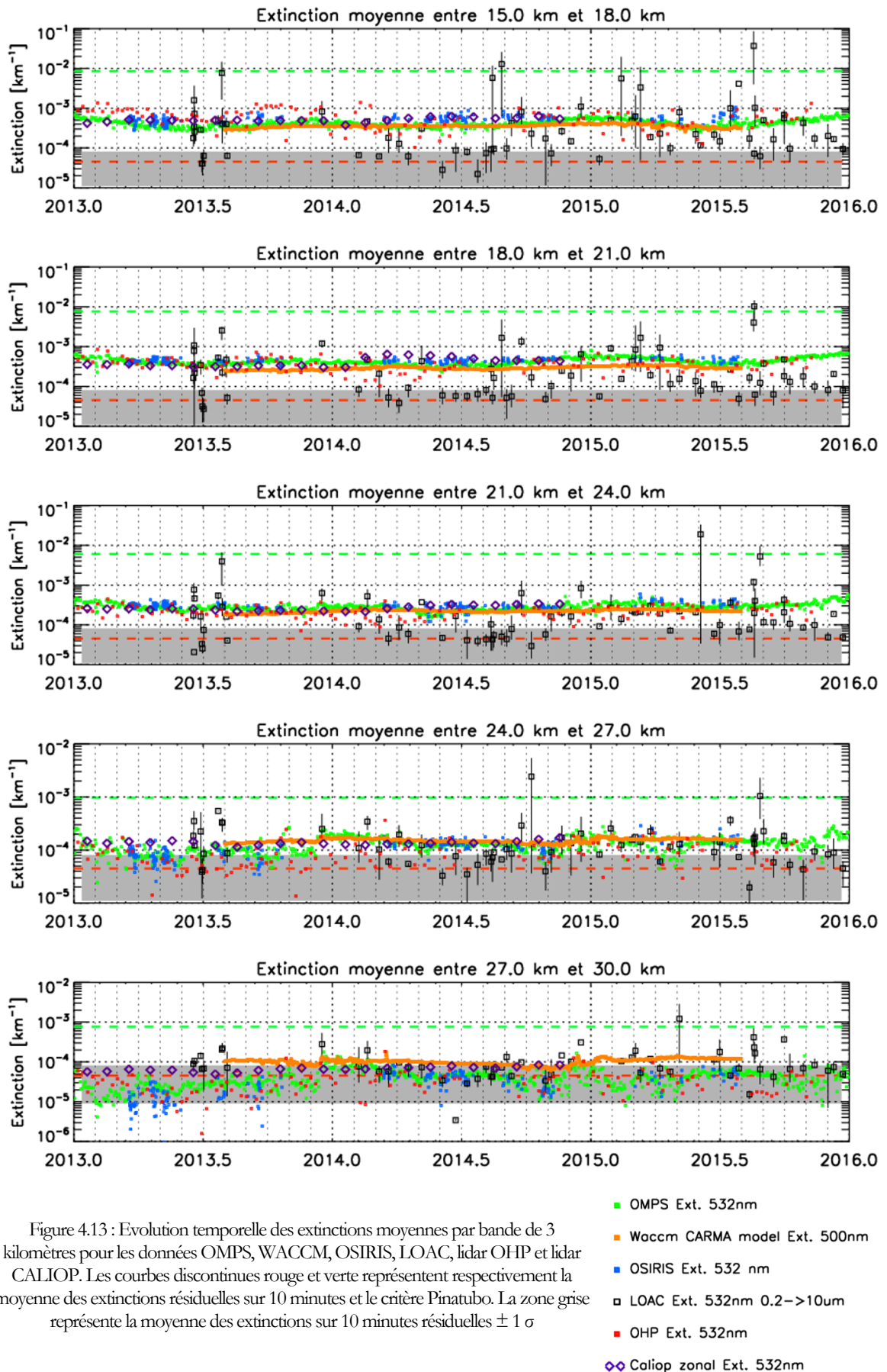


Figure 4.13 : Evolution temporelle des extinctions moyennes par bande de 3 kilomètres pour les données OMPS, WACCM, OSIRIS, LOAC, lidar OHP et lidar CALIOP. Les courbes discontinues rouge et verte représentent respectivement la moyenne des extinctions résiduelles sur 10 minutes et le critère Pinatubo. La zone grise représente la moyenne des extinctions sur 10 minutes résiduelles  $\pm 1\sigma$



Puisque la période 2013-2016 est une période fond hors éruption volcanique majeure, nous discutons la moyenne verticale sur 3 ans de ces extinctions (Figure 4.14 à gauche). Le LOAC est présenté selon sa moyenne avec et sans le critère Pinatubo (estimant retirer une partie des sursauts) ainsi que par sa médiane. Les distributions des extinctions, par kilomètre et pour tous les profils journaliers disponibles, sont représentées sur la Figure 4.14 à droite.

Sur la Figure 4.14 à gauche, les incertitudes reportées pour les données OSIRIS, OMPS, CALIOP et OHP sont extraites de la littérature. Les données OSIRIS sont données avec une incertitude de  $\pm 15$  à  $\pm 50$  % pour les altitudes de 15 à 30 km (Bourassa et al., 2007). Les données OMPS sont données avec une incertitude de  $\pm 20$  % pour toutes les altitudes (DeLand et al., 2016). Les données CALIOP sont ici présentées avec une incertitude  $\pm 10$  %, l'incertitude sur le coefficient lidar n'est pas prise en compte et est estimée être de  $\pm 50$  % (communication personnelle J.-P. Vernier). Les données OHP sont données avec une incertitude  $\pm 7$  % (Chazette et al., 1995; Khaykin et al., 2016). Ces incertitudes sont présentées à titre indicatif et ne considèrent par le nombre de profils disponibles par gamme d'altitude. La dispersion ( $1 \sigma$ ) des moyennes sur 3 km est représentée sur la Figure 4.15. Les dispersions ne sont pas normalisées par le nombre de profils disponibles et sont calculées sur les extinctions directement et non sur les logarithmes des extinctions. Les dispersions de moyennes 3 km LOAC sont de l'ordre de quelques  $10^{-3} \text{ km}^{-1}$  jusqu'à 25 km, puis de l'ordre de  $10^{-4} \text{ km}^{-1}$  de 25 à 35 km. L'allure des dispersions des moyennes LOAC tenant compte du critère Pinatubo possède une inflexion vers 25 km caractéristique de l'allure du critère Pinatubo (Figure 4.9) ; le critère Pinatubo appliqué afin de limiter la dispersion des données LOAC influence donc son allure verticale. Les dispersions des moyennes en tenant compte du Pinatubo sont de l'ordre de  $10^{-3} \text{ km}^{-1}$  jusqu'à 20 km, puis de l'ordre de  $10^{-4} \text{ km}^{-1}$  entre 25 et 35 km.

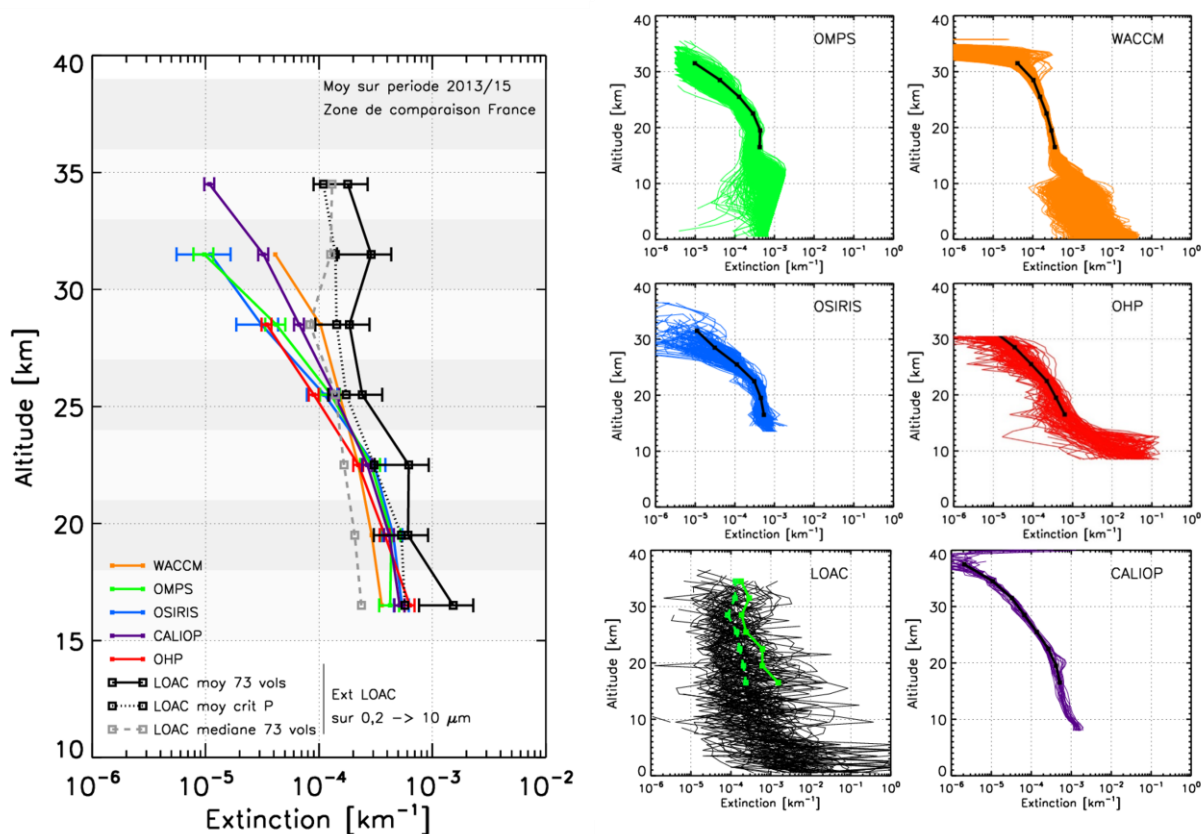


Figure 4.14 : A gauche : allures verticales moyennes par bande de 3 kilomètres des extinctions au-dessus de la France pour la période 2013-2015 des 6 valeurs indépendantes. Profil moyen pour tous les vols LOAC (trait plein noir), moyenne en tenant compte du critère Pinatubo (Crit P) (courbe discontinue noire) et médiane (courbe discontinue grise). A droite : allures moyennes par kilomètre des données représentées individuellement afin de rendre compte de la dispersion des données et la moyenne de l'extinction par bande de 3 kilomètres est reportée sur chaque figure par une ligne noire. Pour LOAC la courbe verte continue et discontinue représente respectivement la moyenne et la médiane 3 km

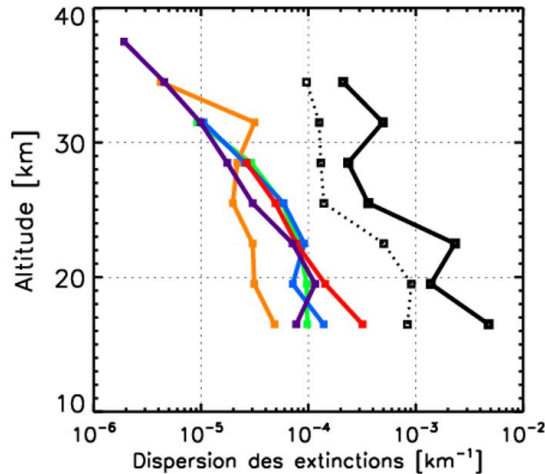


Figure 4.15 : Allures des dispersions  $1 \sigma$  des extinctions moyennes sur 3 km, OMPS en vert, WACCM en orange, OSIRIS, en bleu, OHP en rouge, CALIOP en violet et LOAC en noir. La courbe discontinue noire représente la dispersion de la moyenne 3 km des données LOAC auxquelles est appliqué le critère Pinatubo

Les dispersions ( $1 \sigma$ ) des moyennes sur 3 km pour les données indépendantes (données satellites, lidar sol) sont de l'ordre de  $10^{-4} \text{ km}^{-1}$  jusqu'à 20 km, puis de l'ordre de quelques  $10^{-5} \text{ km}^{-1}$  entre 25 et 30 km. Au-delà de 30 km, la dispersion de CALIOP décroît jusqu'à quelques  $10^{-6} \text{ km}^{-1}$ . La dispersion des données WACCM est relativement constante avec l'altitude jusqu'à 33 km d'altitude, à partir d'où elle chute d'un ordre de grandeur. La dispersion des données LOAC est supérieure d'environ un ordre de grandeur par rapport aux données indépendantes. La dispersion des extinctions LOAC est de l'ordre de grandeur des moyennes des extinctions de 15 à 36 km voire plus importante.

#### 4.2.4 Discussion

Les allures verticales des extinctions moyennes sur 3 kilomètres des 6 jeux de données montrent un bon accord dans la basse stratosphère de 15 à 21 km (Figure 4.14 graphique de gauche). La moyenne LOAC en tenant compte du critère Pinatubo est plus poche des données indépendantes (données satellites, lidar sol et modèle) que la moyenne ou la médiane. A partir de 30 km, il est envisagé que les données LOAC ne soit plus exploitables compte tenu de la limite de détection.

Le modèle WACCM, qui ne simule que les particules sulfatées dans notre étude, donne des extinctions inférieures d'environ un facteur 2 aux autres données entre 15 et 21 km, puis devient supérieur au-delà de 21 km. Le fait que WACCM ne modélise que les sulfates et que les résultats soient inférieurs aux autres données peut être interprété comme le fait que les aérosols en basse stratosphère ne contiennent pas que de purs sulfates, comme le montre les données avions (Murphy et al., 2014; Schwarz et al., 2006). Cependant, WACCM rend compte d'extinctions supérieures aux autres mesures au-delà de 27 km. Cet effet peut s'expliquer soit par l'approximation faite sur la longueur d'onde des extinctions annoncées (communication personnelle C. Bardeen), soit par le biais introduit par les méthodes de mesure à distance nécessitant l'absence de particules à une certaine altitude.

Au-delà de 30 km, les données LOAC semblent montrer un renforcement des extinctions de 30 à 36 km d'altitude, renforcement visible sur la moyenne et sur la médiane d'un facteur 2 environ par rapport aux extinctions entre 27 et 30 km. Cependant, ces augmentations d'un facteur 2 s'accompagnent également d'une augmentation d'un facteur 2 de la dispersion des extinctions. Il n'est donc pas démontré que cette augmentation soit statistiquement significative. Le nombre de points disponibles décroît avec l'altitude à partir de 30 km (respectivement 2/3 et 1/3 des ballons lâchés ont atteint les gammes d'altitudes 30-33 et 33-36 km) ce qui peut avoir pour effet de renforcer la dispersion des extinctions.

Cette augmentation des extinctions pourrait s'expliquer en partie par l'efficacité de captage décrite par Renard et al. (2016a). La surestimation des concentrations liée aux conditions d'isocinétisme augmente avec l'altitude, d'un facteur de  $1,9 \pm 0,4$  et de  $2,4 \pm 0,6$  sur le rapport d'isocinétisme (noté R ; voir chapitre 3.1.5) pour les particules de  $10 \mu\text{m}$  respectivement à 10 et à 30 km. La valeur moyenne est l'effet du prélèvement subsocinétique tandis que l'incertitude associée sur ces facteurs est liée à l'incertitude sur l'orientation du tube de prélèvement (voir Figure 3.7). Il n'est pas possible d'affirmer pour le moment que l'augmentation des extinctions mesurée par LOAC soit l'effet de l'efficacité de captage. L'efficacité de captage augmentant avec l'altitude pour les particules microniques et que ces particules qui contribuent le plus sur le calcul de l'extinction permettrait de justifier une correction liée à l'isocinétisme. Cette correction n'est pas pour le moment établie car elle nécessiterait plus d'information sur l'orientation réelle du tube de prélèvement en vol, information que nous ne possédons pas pour les vols passés, ainsi que des tests de sensibilité pour le système LOAC en condition de vol (par exemple entre deux LOAC sous ballon possédant des prélèvements orientés différemment). Cependant, cette augmentation n'est pas nécessairement un biais.

L'existence d'une couche de particules non purement sulfatées au-delà de 30 km est reportée par plusieurs auteurs. Des mesures avec le compteur d'aérosol STAC sous ballons en régions tropicales, moyennes latitudes et polaires montrent des augmentations de la concentration de particules à ces altitudes (Renard et al., 2010). Les mesures SAGEII dans la période 2000-2005 montrent un renforcement du rapport d'extinction centré sur 30 km (Vernier et al., 2011b). Neely et al. (2011) associe ce renforcement des extinctions à la présence de smoke particles, en montrant qu'il faut ajouter dans la simulation WACCM une population de particules provenant des altitudes d'ablation vers 80 km pour tendre vers les extinctions SAGE II (Figure 4.16) (nous rappelons que la simulation WACCM utilisée dans cette étude rend compte seulement des particules sulfatées). Hervig et al. (2009) montre que la contribution en extinction des smoke particles devient supérieure à celle des particules sulfatées lors d'un cas d'étude sur un profil à  $65^\circ\text{S}$  de latitude (Figure 4.17).

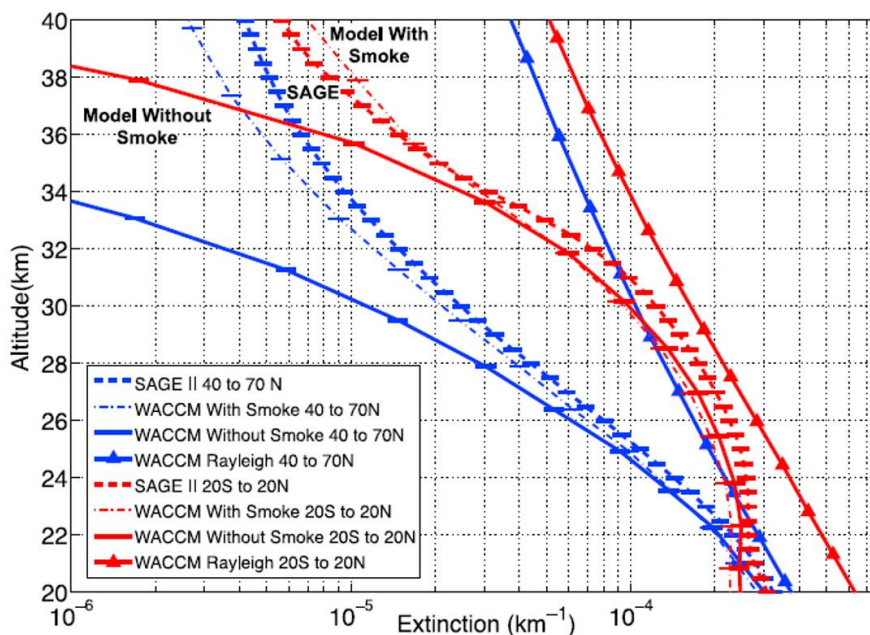


Figure 4.16 : Profils verticaux des extinctions à 525 nm zonales moyennes de SAGEII pour la période 2000-2005 aux latitudes moyennes et tropicales comparées aux sorties du modèle WACCM avec et sans la contribution des smoke particles (Neely et al., 2011)

Les simulations utilisées par Hervig et al. (2009) donnent des concentrations en nombre de particules de diamètres de 0,1 à quelques nm de l'ordre de 30 à 100 particules par  $\text{cm}^3$ , qui sont bien trop faibles pour produire une concentration détectable par LOAC (limite de détection LOAC  $\sim 0,6 \text{ cm}^{-3}$  de diamètres supérieurs à 200 nm par gamme de 3 km). Il semble difficile d'affirmer que LOAC détecte ces smoke particles à partir de 30 km en moyenne sur les 3 ans de données présentées.

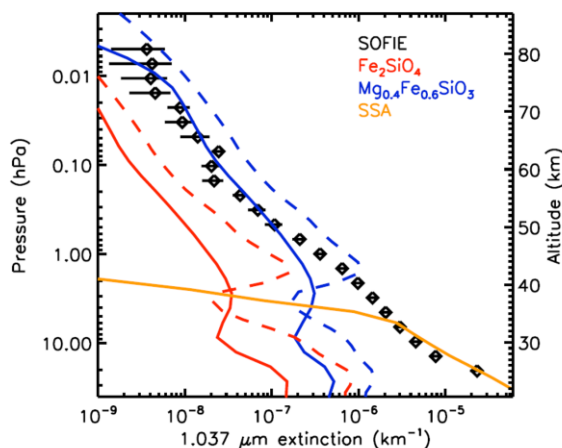


Figure 4.17 : Profil d'extinction à 1037 nm mesuré par SOPHIE (points noirs) le 20 juin 2008 à 65°S comparé aux simulations de CHEM2D et de WACCM respectivement en courbes pleine et discontinue pour deux compositions de smoke particles différentes représentées par les couleurs bleues et rouges. La courbe pleine orange représente les particules sulfatées simulées (Hervig et al., 2009)

De plus, s'il s'agit de smoke particles, les extinctions calculées à partir des mesures LOAC sont potentiellement sous-estimées si l'on tient compte du caractère absorbant de ces particules. En modifiant les propriétés optiques des particules dans le calcul des extinctions LOAC, celles-ci seraient encore plus importantes d'environ un facteur 2. Une étude de sensibilité est en cours d'analyse.

#### 4.2.5 Conclusion sur la comparaison des extinctions LOAC avec des données indépendantes

La moyenne des extinctions LOAC est cohérente avec les données satellites, lidar sol et modèle jusqu'à 24 km. La moyenne des extinctions LOAC est de l'ordre de grandeur de sa dispersion, cela rend difficile l'interprétation de l'allure verticale de la moyenne des extinctions, notamment la structure de l'augmentation vers 30 km.

Les principales limites de cette inter-comparaison résident dans les représentativités spatiales des données. La dispersion des données LOAC est très importante devant celle des données indépendantes et il est difficile de conclure sur la ou les causes de cette dispersion.

Si cette dispersion sur 3 ans est réelle et qu'il y a effectivement une grande variabilité du contenu des aérosols stratosphériques d'un vol LOAC à l'autre sur 15 jours (ou moins comme le montrent les données lors de la campagne ChArMEx), faire un suivi des aérosols stratosphériques avec un seul vol tous les 15 jours n'est pas suffisant. L'inter-comparaison de deux LOAC sous deux ballons lâchés à 1 minute d'intervalle montre une dispersion plus importante des concentrations que la répétabilité inter-instrumentale établie en laboratoire, mais cependant moins importante que la dispersion des données sur 3 ans.

### 4.3 Retraitement des données LOAC – version novembre 2016

Le jeu de données LOAC sous ballons météorologiques présenté précédemment dans cette étude a été retraité au cours du mois de novembre 2016. Ce retraitement tient compte des conclusions obtenues à partir de l'analyse des données et des résultats de l'inter-comparaison avec les données satellites, lidar sol et modèle ; à savoir la présence de sursauts de concentrations qui semblent liés aux rayonnements cosmiques et l'influence non-négligeable de la variation de température sur le contrôle du bruit. Ce retraitement est effectué par Jean-Baptiste Renard par réanalyse manuelle des données brutes d'une part et par introduction de critères automatisés dans le programme de post-traitement d'autre part.

Par rapport à la version précédente, la version des données LOAC de novembre 2016 contient les modifications suivantes :

- Suppression des données où interviennent des sursauts considérés comme étant produits par l'interaction avec le rayonnement cosmique dont l'influence est inférieure au critère utilisé dans le traitement automatique.
- Troncature des dernières minutes de données obtenues lorsqu'un contrôle du bruit intervient trop longtemps après l'éclatement du ballon.
- Rejet de données lorsque la variation du bruit est trop importante entre deux contrôles de bruit quelle que soit l'altitude.
- Rejet des contrôles de bruit anormaux dus à des perturbations extérieures.
- Rejet du vol de mai 2013, après la découverte d'un problème instrumental.

Le retraitement de novembre 2016 est un réexamen des données brutes pour les faibles concentrations en stratosphère qui sont plus sensibles aux sursauts de faibles amplitudes et pour de forts gradients du bruit électronique. Les résultats obtenus avec ce retraitement sont donnés selon les mêmes représentations graphiques que précédemment. La période considérée diffère légèrement puisque le vol de mai 2013 est désormais rejeté, nous considérons dans ce nouveau traitement la période de juin 2013 à août 2016. Les figures 4.18, 4.19, 4.20, 4.21 et 4.22 sont respectivement les mises à jour des figures 4.5, 4.6, 4.9, 4.13 et 4.14.

Entre la version précédente datant de juillet 2016 et celle-ci, les tendances moyennes et médianes verticales sur 3 ans sont globalement les mêmes jusqu'à 25 km (Figure 4.18). Les distributions des extinctions par gamme de 3 km demeurent non-gaussiennes (médiane inférieure à la moyenne) ce qui témoigne toujours d'une majorité de valeurs d'extinction de l'ordre de quelques  $10^{-4} \text{ km}^{-1}$  et d'une proportion moins importante d'extinctions de plus grande intensité organisées en fines structures de faibles amplitudes verticales. Au-delà de 25 km, le traitement de novembre 2016 conduit à faire disparaître le léger renforcement d'extinction précédemment visible entre 28 et 36 km. Dans ce nouveau traitement, la médiane des extinctions est constante avec l'altitude à partir de 28 km, supérieure à la moyenne des extinctions résiduelles établies en laboratoire et inférieure à cette moyenne plus 1 écart type (l'extinction résiduelle et la limite de détection étant respectivement de  $4,5 \cdot 10^{-5}$  et  $8,1 \cdot 10^{-5} \text{ km}^{-1}$ ). La médiane des extinctions au-dessus de 28 km est réduite d'environ  $4 \cdot 10^{-5} \text{ km}^{-1}$  passant de  $1,2 \cdot 10^{-4}$  à  $8 \cdot 10^{-5} \text{ km}^{-1}$ . Les moyennes en tenant compte ou pas du critère Pinatubo décroissent légèrement à partir de 28 km.

La comparaison temporelle des données LOAC retraitées avec les données satellites, lidar sol et modèle en moyenne sur 3 km d'altitude de 15 à 30 km d'altitude (Figure 4.19) révèle les mêmes tendances qu'avec la version précédente avec une proportion moindre de valeurs d'extinctions importantes. Il demeure toutefois une variabilité des données LOAC importante que nous attribuons en partie à l'aspect local de la mesure. La comparaison de l'allure verticale moyenne sur la période 2013 à 2015 des extinctions LOAC et des données satellites, lidar sol et modèle (Figure 4.20) est quasiment inchangée jusqu'à 25 km. Au-delà, les données LOAC sont en moyenne supérieures aux données de mesure à distance.

La version novembre 2016 des données LOAC présente moins de sursauts et des extinctions moyennes légèrement inférieures à la version précédente. Les extinctions médianes n'évoluent cependant que très peu. Les données de cette version convergent en moyenne stratosphère vers une valeur d'extinction de l'ordre de  $10^{-4} \text{ km}^{-1}$  constante avec l'altitude. En l'état actuel de nos connaissances sur le fonctionnement du LOAC utilisé sous ballon météorologique et en conditions de fond stratosphérique, il est difficile d'affirmer sans réserve que l'instrument converge vers l'extinction résiduelle. Cependant, l'existence de cette extinction résiduelle permettrait d'expliquer en partie la tendance moyenne des extinctions LOAC supérieure aux extinctions satellites, lidar sol et modèle à partir de 28 km d'altitude et constante avec l'altitude. A cet effet s'ajouterait la contribution de perturbations demeurant à ces altitudes mais non diagnostiquées dans notre retraitement.

En conclusion, la comparaison des extinctions moyennes LOAC sur 3 km en tenant compte du critère Pinatubo avant le retraitement et après (Figure 4.23) montre que ce retraitement introduit un décalage vers des extinctions plus faible d'environ 3 à  $4 \cdot 10^{-5} \text{ km}^{-1}$ . Ce décalage permet de faire converger les données LOAC sur les données satellites, lidar sol et modèle en basse stratosphère mais ne corrige pas les conclusions sur la convergence des données vers une valeur d'extinction résiduelle à partir de 27 km.

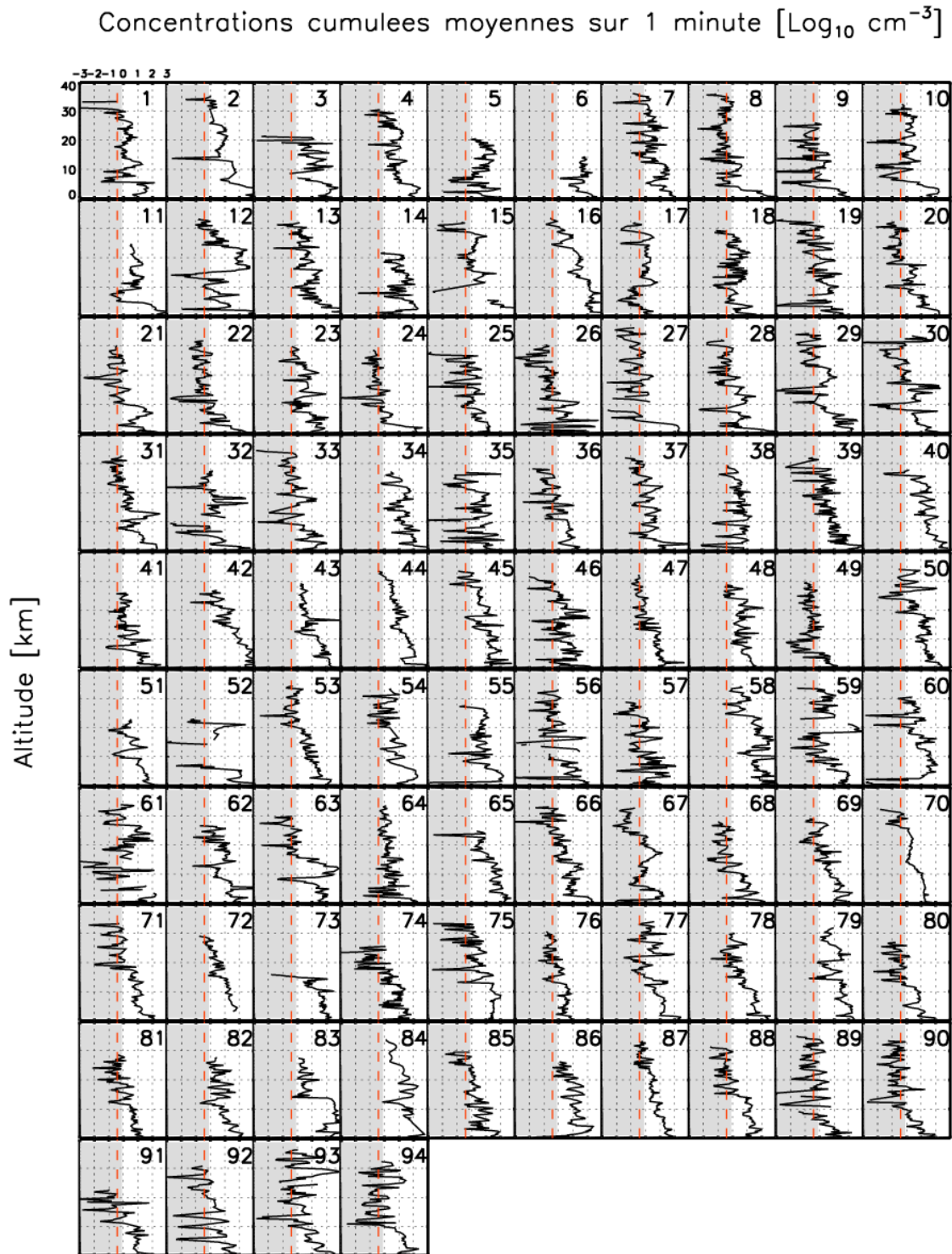


Figure 4.18 : Profils verticaux des 9 vols LOAC moyens par minute exprimés en concentration cumulée – données issues du retraitement de novembre 2016. La courbe discontinue orange est représentative de la moyenne de concentration cumulée résiduelle sur 1 minute établie en laboratoire. La zone grise représente la variation à  $1 \sigma$  de la concentration résiduelle. La limite de la zone grise vers  $0,8 \text{ cm}^{-3}$  représente la limite de détection en concentration cumulée sur 1 minute. Chaque numéro est relatif à un vol dans la période juin 2013 à août 2016

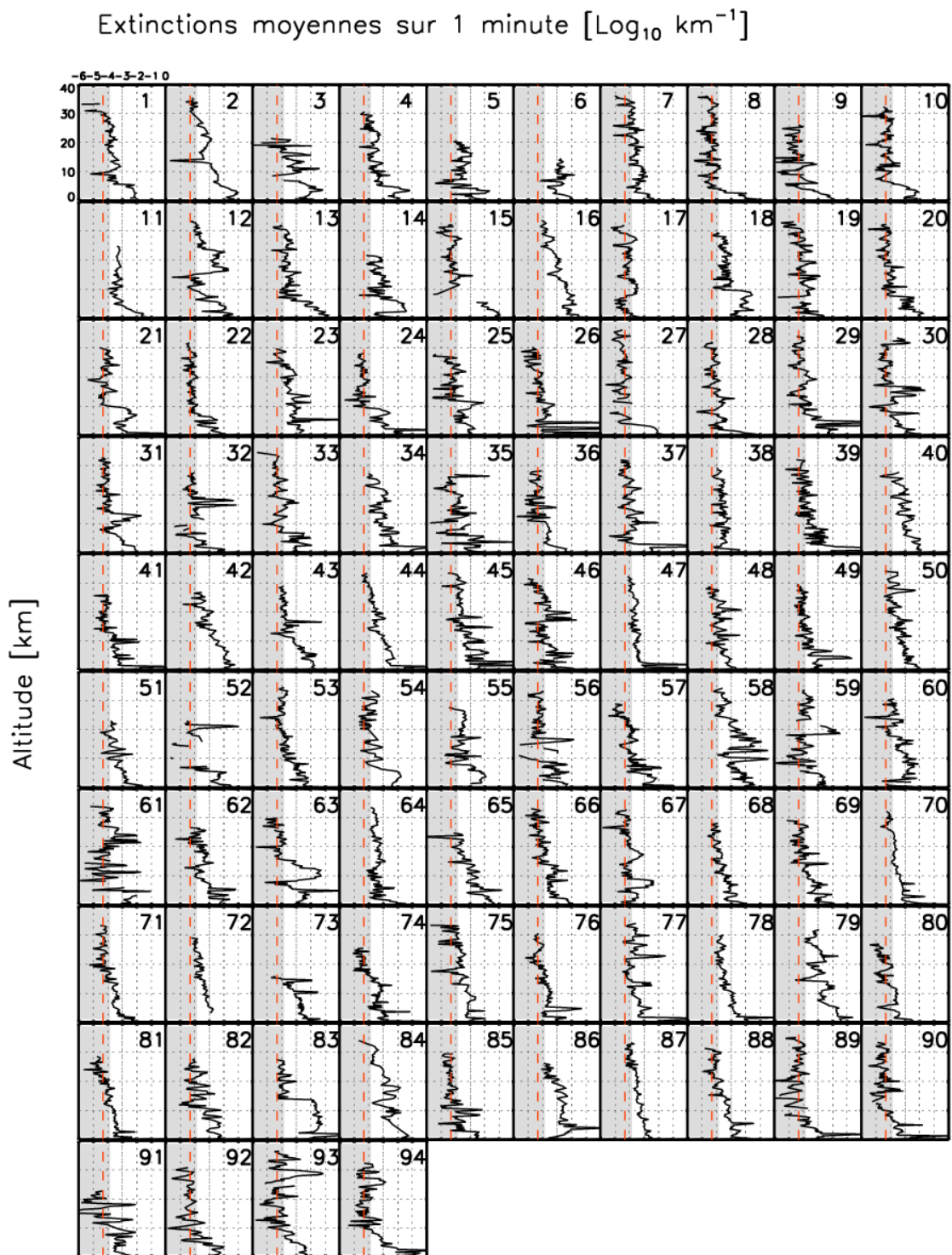


Figure 4.19 : Profils verticaux des 95 vols LOAC moyens par minute exprimés en extinctions calculées à 532 nm pour des particules sphériques d'indice de réfraction représentatif de gouttelettes d'acide sulfurique – données issues du retraitement de novembre 2016. Chaque numéro est relatif à un vol dans la période juin 2013 à août 2016+

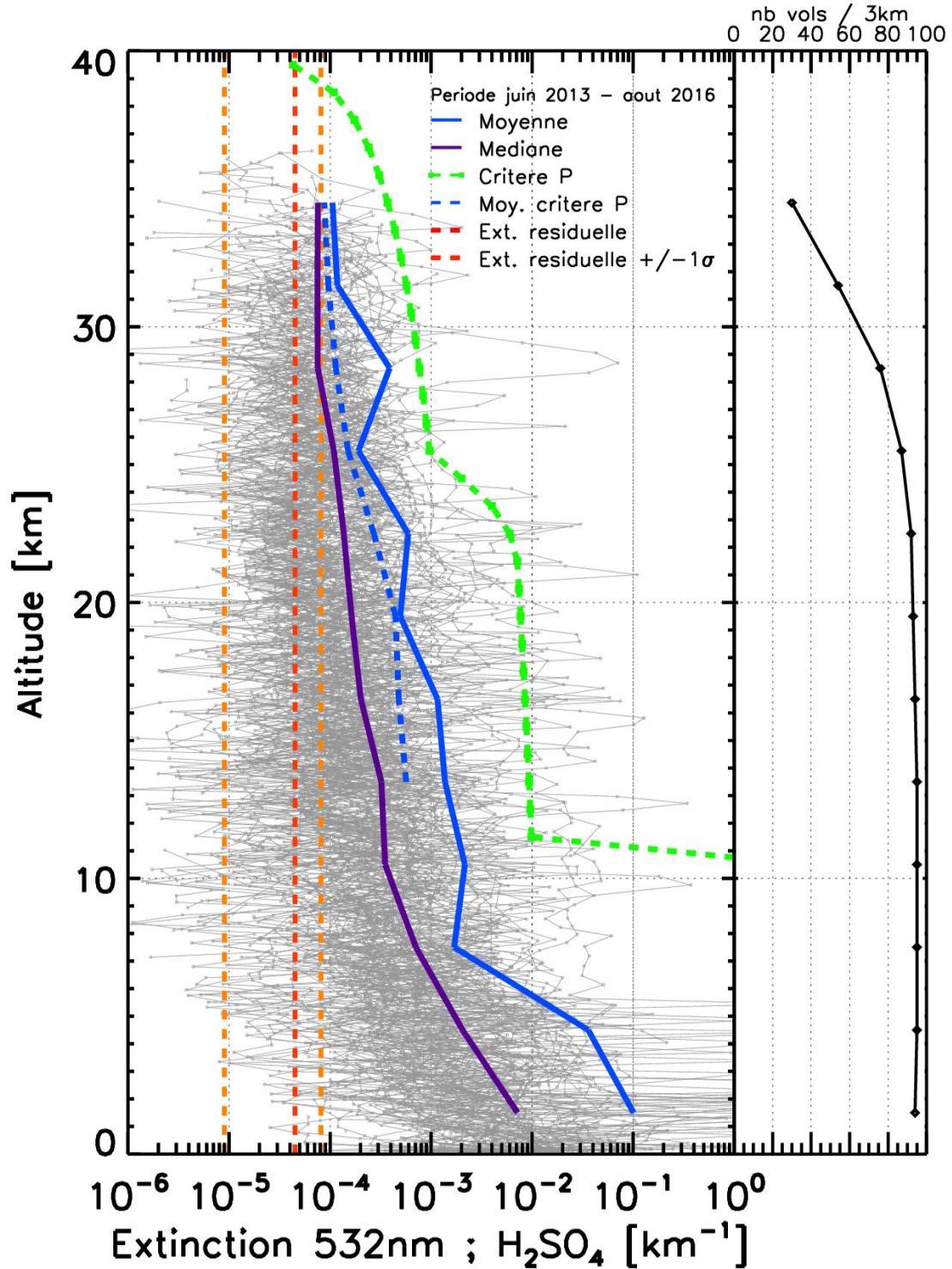


Figure 4.20 : Profils verticaux moyen et médian pour les 95 vols LOAC exprimés en extinction moyen sur 3 km. Le critère Pinatubo est représenté en vert pointillé. Les courbes bleues représentent les moyennes de distributions des extinctions moyennes par 3 km (trait plein sans tenir compte du critère Pinatubo, trait pointillé en excluant les valeurs supérieures aux extinctions du Pinatubo). La courbe violette est la médiane des distributions par 3 km. La courbe discontinue rouge indique la moyenne sur 10 minutes des extinctions résiduelles. Les courbes jaunes représentent la dispersion  $1\sigma$  de la moyenne des extinctions résiduelles sur 10 minutes. Les profils gris sont les profils LOAC en extinction 1 minute. Le nombre de vols pris en compte pour produire les moyennes 3 km est représenté par la courbe noire à droite

Données LOAC version novembre 2016



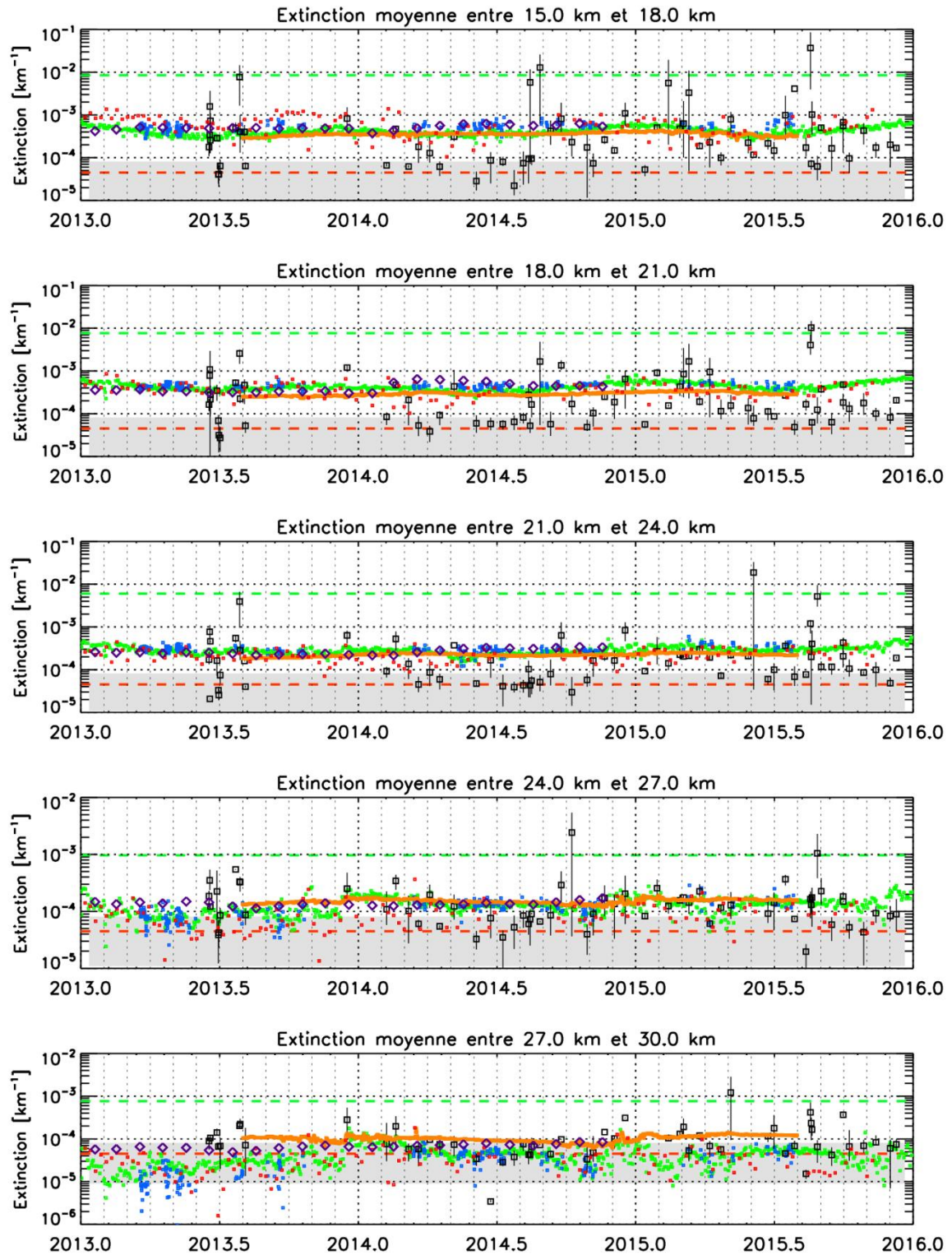


Figure 4.21 : Evolution temporelle des extinctions moyennes par bande de 3 kilomètres pour les données OMPS, WACCm, OSIRIS, LOAC, lidar OHP et lidar CALIOP. Les courbes discontinues rouge et verte représentent respectivement la moyenne des extinctions résiduelles 10 minutes et le critère Pinatubo. La zone grise représente la moyenne des extinctions sur 10 minutes résiduelle  $\pm 1 \sigma$   
Données LOAC version novembre 2016

- OMPS Ext. 532nm
- Waccm CARMA model Ext. 500nm
- ◆ OSIRIS Ext. 532 nm
- LOAC Ext. 532nm 0.2-10um
- OHP Ext. 532nm
- ◆ Caliop zonal Ext. 532nm

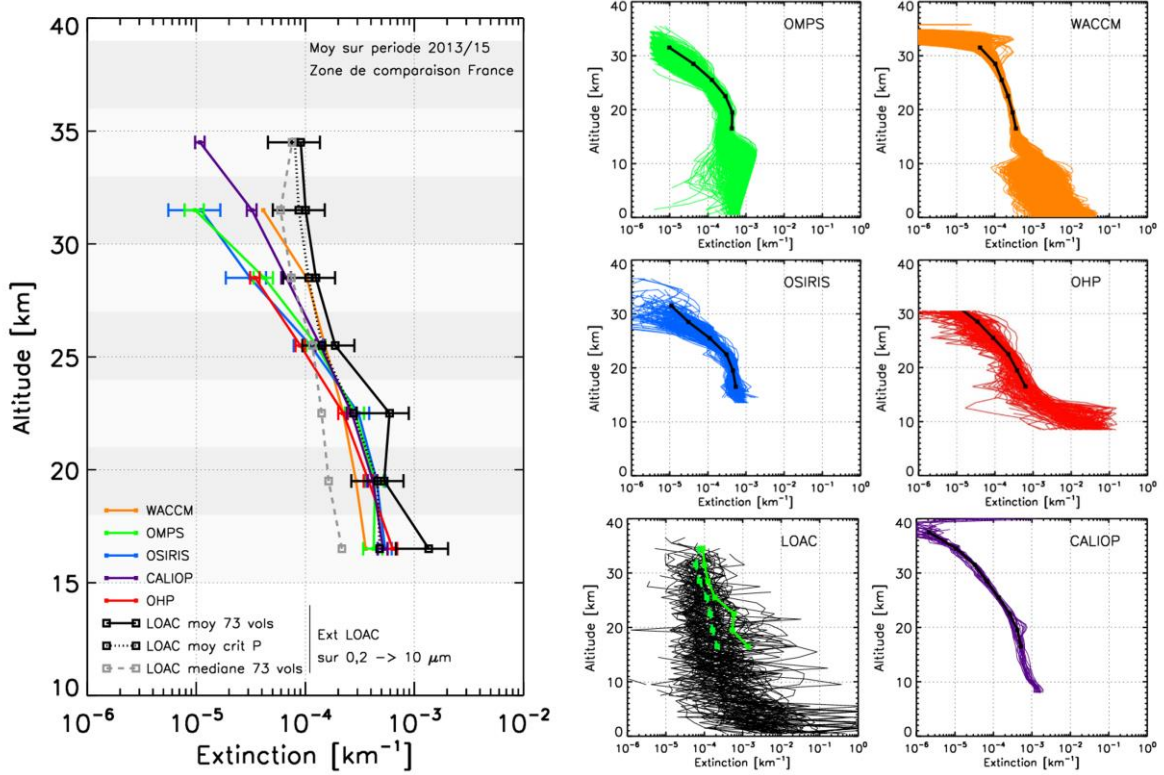


Figure 4.22 : A gauche : allures verticales moyennes par bande de 3 kilomètres des extinctions au-dessus de la France pour la période 2013-2015 des 6 valeurs indépendantes. Profil moyen pour tous les vols LOAC (trait plein noir), moyenne en tenant compte du critère Pinatubo (Crit P) (courbe discontinue noire) et médiane (courbe discontinue grise). A droite : allures moyennes par kilomètre des 6 jeux de données représentés individuellement afin de rendre compte de la dispersion des données et la moyenne de l'extinction par bande de 3 kilomètres est reportée sur chaque figure par une ligne noire. Pour LOAC la courbe verte continue et discontinue représentent respectivement la moyenne et la médiane 3 km  
Données LOAC version novembre 2016

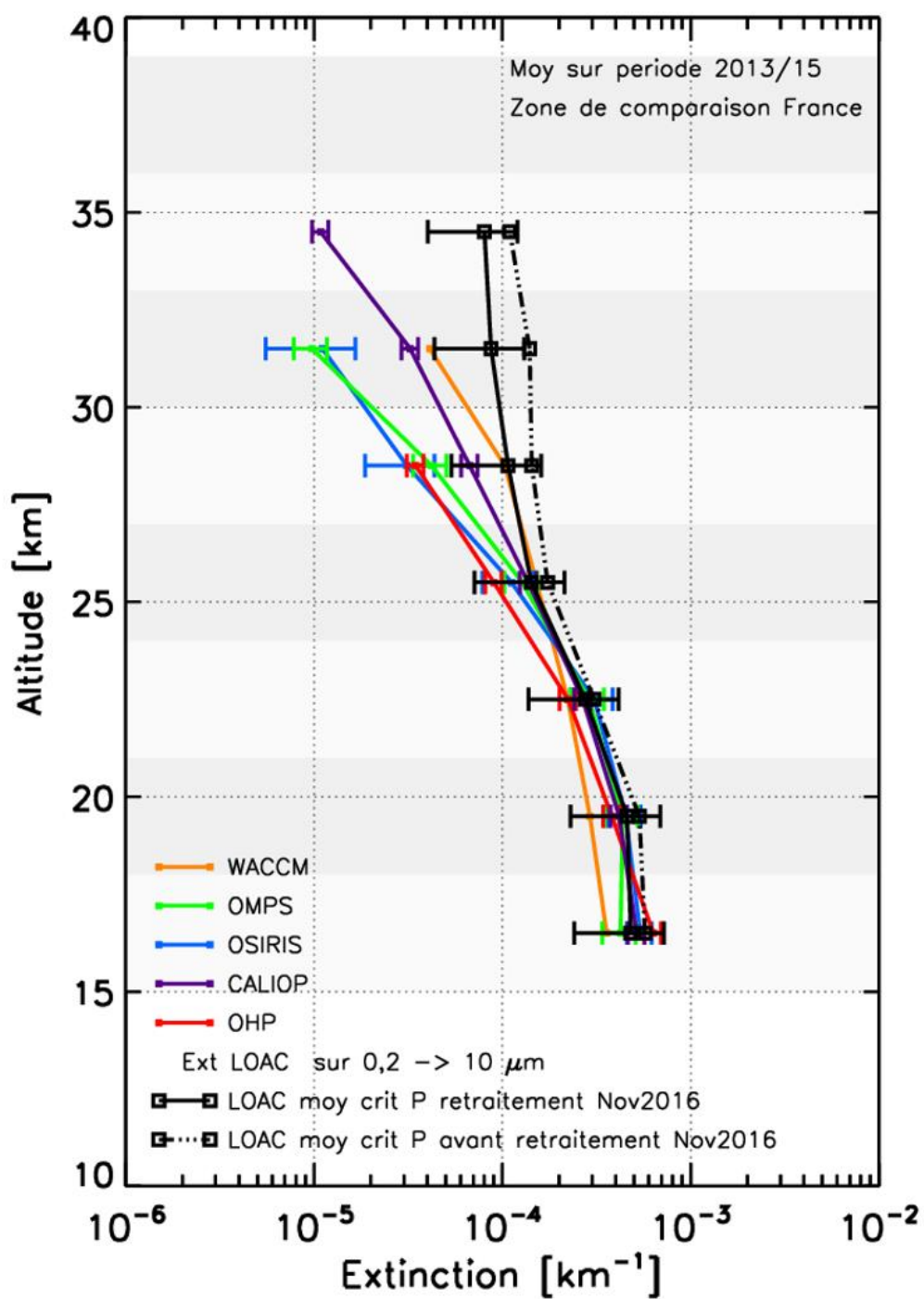


Figure 4.23 : Profils verticaux des extinctions moyennes sur 3 km des données LOAC en tant compte du critère Pinatubo avant le retraitement de novembre 2016 (courbe pleine noire) et après le retraitement de novembre 2016 (courbe discontinue noire) comparés aux autres données WACCM, OMPS, OSIRIS, CALIOP et OHP. Les barres d'incertitudes sur les données LOAC sont représentées pour les données après le retraitement et pas sur les données avant le retraitement pour plus de lisibilité

## 5 Caractérisation des sources de la variabilité des aérosols stratosphériques

A travers différents cas d'étude, nous présentons une série de sources influençant la variabilité des aérosols stratosphériques et leur caractérisation que nous avons pu réaliser à l'aide du LOAC. Nous organisons l'exposé de ces cas d'étude en décrivant dans un premier temps les sources se trouvant en troposphère puis les sources au sein de la stratosphère.

### 5.1 Les sources troposphériques

#### 5.1.1 Sources volcaniques

##### a. Caractérisation in situ de particules volcaniques dans un panache « jeune »

Les mesures in situ des aérosols volcaniques sont nécessaires afin de mieux comprendre les processus qui gouvernent l'évolution des panaches. La physique et la chimie des émissions ainsi que la détermination de la hauteur d'injection des aérosols volcaniques sont deux informations clés des modèles de dispersion en troposphère tout autant qu'en stratosphère. La plupart des études portant sur la mesure in situ sous ballon ou en avion de la composition des aérosols volcaniques sont réalisées sur des panaches relativement âgés, physiquement et chimiquement évolués (Jégou et al., 2013 ; Marengo et al., 2011). Il existe peu d'études portant sur la caractérisation in situ des aérosols près des sources et aucune ayant réalisé de mesures in situ du profil vertical de la structure d'un panache proche de la zone d'émission.

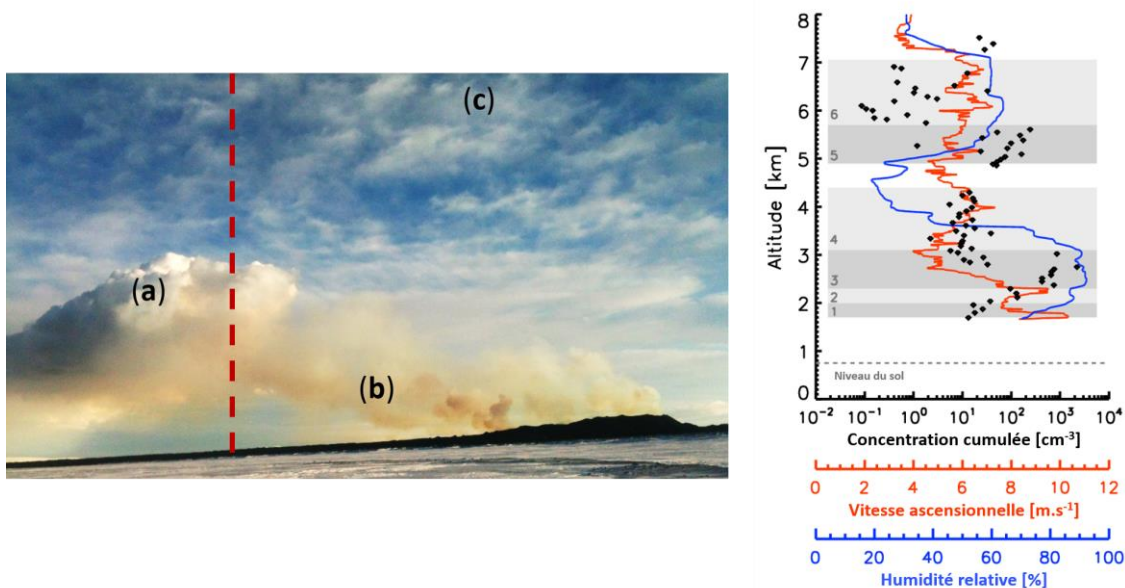


Figure 5.1 : A gauche, photographie du panache du Hólhraun prise le 22 janvier 2015 à 14 TU. a) panache condensé, b) panache non-condensé, c) nuage glacé de haute altitude. La droite rouge discontinue représente schématiquement la trajectoire verticale du ballon ayant traversé le panache 7 heures après que le cliché ait été pris. A droite, représentation des paramètres mesurés lors de l'ascension du ballon : concentration cumulée de particules (de diamètres de 0,2 à 100 μm) en noir, vitesse verticale du ballon météorologique en rouge, et humidité relative en bleu. 6 zones verticales sont déterminées en fonction de ces paramètres et sont représentées par des rectangles gris afin de faciliter la description du profil (Adaptée d'après Vignelles et al. 2016)

Même si elle n'a pas affecté le contenu en aérosols de la stratosphère, l'éruption du volcan islandais Hólhraun situé au nord du glacier Vatnajökull, entré en activité le 31 août 2014 (Gíslason et al., 2015), a été l'occasion de produire une mesure afin de disposer d'une base de référence en termes d'échantillonnage de panache volcanique par le LOAC. Nous décrivons les principaux résultats obtenus lors d'une campagne de mesure en Islande en janvier 2015 où un LOAC sous ballon météorologique a traversé le panache du

cratère Baugur (64°52'N, -16°49'E) lors de l'éruption du Holuhraun à une distance d'environ 8 km. Ces travaux font l'objet d'une publication : Vignelles et al., 2016. La réussite de ce lâcher de ce ballon est un résultat en soi, nous démontrons qu'il est possible d'effectuer un profil LOAC à moins de 8 km d'un volcan en éruption, de nuit, par des températures inférieures à 0°C, sous un vent moyen au sol supérieur à 10 m.s<sup>-1</sup>, par seulement 3 personnes dont deux non formées à la technique LOAC. De plus, le système de réception des données de vol était alimenté sur la batterie du camion d'expédition polaire, indispensable pour rejoindre ce site de lancement isolé à plus d'une journée de route dans des conditions particulièrement difficiles.

L'analyse du profil de concentration en particules cumulées sur les 19 gammes de tailles LOAC comparé avec les paramètres de vitesse du ballon ainsi qu'avec l'humidité relative mesurés lors de l'ascension du LOAC à travers le panache permet de déterminer 6 zones sur le profil vertical (Figure 5.1). Les 4 premières zones représentent : zone 1 conditions de fond sous le panache, zone 2 panache non-condensé, zone 3 panache condensé, zones 4 et 5 conditions de fond au-dessus du panache tandis que la zone 6 est identifiée comme un nuage glacé.

La distinction du panache en deux parties non-condensée et condensée est cohérente à l'observation visuelle du panache ainsi que par la mesure in situ (zone 1 et 2 Figure 5.1). Au plus près du cratère, le panache est brun et non-condensé, puis lors de son ascension et de son évolution physico-chimique, celui-ci se condense.

Gíslason et al. (2015) considèrent que l'éruption du Holuhraun, de par son caractère principalement effusif, n'a émis qu'une quantité très minime de cendres volcaniques. Le terme d'effusif fait référence au volcan produisant des coulées de lave et un dégazage contrairement à un volcan éruptif produisant un panache de cendres et de gaz. Le LOAC attribue à la partie brune du panache (zone 2) une typologie relative à une matière absorbante (Figure 5.2). Les aérosols volcaniques près de leur émission sont très réactifs et les particules soufrées peuvent être produites par oxydation près des sources magmatiques à haute température (Ilyinskaya et al., 2012; Roberts et al., 2014). Quoi qu'il en soit, les typologies sont clairement différentes en zones 1 et 2 et permettent d'affirmer que le LOAC est capable d'identifier différents types d'aérosols. Le rayon effectif moyen pour la partie non-condensée du panache a été déterminé à  $0,17 \pm 0,02 \mu\text{m}$  selon la définition de Hansen et Travis (1974).

L'altitude de la limite supérieure du panache est déterminée avec précision lors de la mesure in situ LOAC. Cette altitude est comparée avec la mesure indépendante fournie par IASI (*Infrared Atmospheric Sounding Interferometer*), instrument mesurant l'émission infrarouge de l'atmosphère à bord du satellite MetOp (*Meteorological Operational*). Les deux mesures d'altitude donnent un encadrement de l'altitude supérieure du panache au-dessus du niveau de la mer entre 2,7 et 3,1 km pour LOAC et 2,9 et 4,1 km pour IASI. L'incertitude de l'altitude du panache déterminée par IASI est propre à la méthode de détection à distance (Carboni et al., 2012, 2016), tandis que celle de LOAC est limitée par la fréquence d'échantillonnage combinée à la vitesse du ballon ainsi que par les aspects dynamiques du panache. A partir de 2,8 km d'altitude, le panache condensé disparaît et le LOAC enregistre une concentration représentative de la condition de fond. Cependant, à 3,1 km, le LOAC mesure une forte augmentation du même ordre de grandeur que celle du panache condensé. Nous associons cette couche d'épaisseur d'environ 600 m à une langue du panache formée probablement par la dynamique turbulente du panache (Figure 5.3). Cette mesure

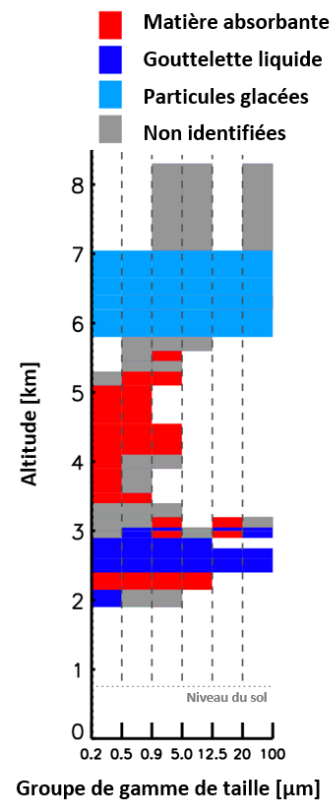


Figure 5.2 : Profil de typologie par groupe de gammes de taille lors de l'ascension du LOAC au travers du panache volcanique du Holuhraun (groupe de 3 gammes de tailles successives ; adaptée d'après Vignelles et al. 2016)

montre que l'estimation des altitudes des panaches dans les premières minutes après leur émission, peut être difficile à déterminer par la variabilité même de cette altitude.

Il est possible de donner une estimation du flux de particules par la mesure in situ LOAC lorsqu'on la combine avec une mesure du flux et de la concentration de  $\text{SO}_2$ . La mesure de  $\text{SO}_2$  utilisée dans cette étude est fournie par un DOAS (*Differential Optical Absorption Spectroscopy*) qui réalise une mesure spectrale d'absorption automatisée en poste fixe au sol près du cratère (Galle et al., 2010). Cette estimation du flux de particules est valable seulement à une distance donnée par rapport au cratère et représentative du moment où le radiosondage a été effectué. Cette limitation est introduite d'une part par la grande variabilité spatio-temporelle des concentrations de particules qui existe au sein d'un panache volcanique et d'autre part par la mesure ponctuelle qu'effectue le LOAC lors de l'ascension. Le flux de particules est estimé être de l'ordre  $10^{15}$  particules par seconde de diamètres compris entre 0,2 et 100  $\mu\text{m}$  avec une incertitude de l'ordre d'une magnitude. Cette approximation est faite en établissant le ratio entre le nombre de particules et la masse de  $\text{SO}_2$  (ce ratio est de l'ordre de  $5 \cdot 10^{12}$  particules par  $\text{kg}_{\text{SO}_2}$  en utilisant le flux et la concentration massique mesurés par le DOAS).

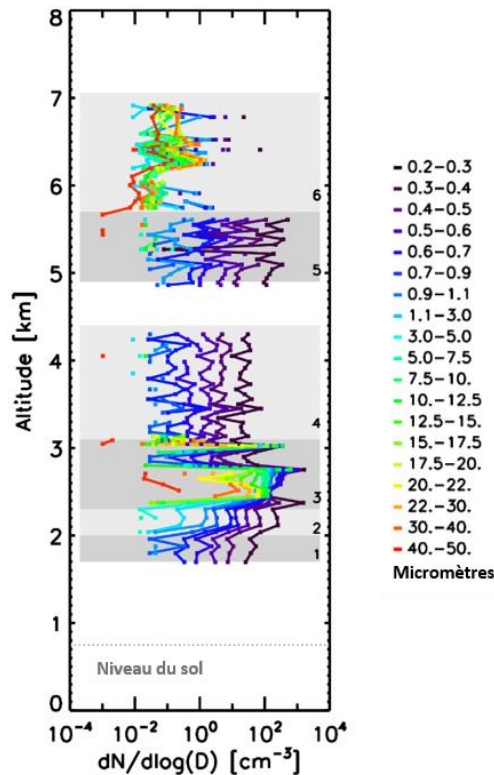


Figure 5.3 : Profil de concentration par gamme de taille lors de l'ascension du LOAC au travers du panache volcanique du Holuhraun (résolution 10 secondes ; adaptée d'après Vignelles et al. 2016)

Cette estimation du flux de particules est très incertaine et doit être considérée comme une démonstration technique plus qu'une donnée scientifique. Il est envisagé de pouvoir réduire cette incertitude en combinant les résultats de plusieurs radiosondages à différentes distances par rapport au cratère avec un modèle physico-chimique de l'évolution du panache. La mesure de la concentration en  $\text{SO}_2$  embarquée sur la même nacelle de vol que le compteur d'aérosol pourrait également réduire considérablement la dispersion du résultat. La possibilité d'utiliser des capteurs électrochimiques type Alphasense pour caractériser les panaches volcaniques a été démontrée par Roberts et al. (2012). L'établissement d'un ratio du nombre de particules par la masse de  $\text{SO}_2$  pourrait permettre dans le futur d'estimer par la mesure de la concentration de  $\text{SO}_2$  (beaucoup plus généralisée que la mesure de la concentration en particules) des flux de particules

émis par les volcans. Connaissant la masse de particules émise par les volcans, il serait possible de contraindre encore un peu plus le cycle de vie du soufre notamment en stratosphère (Kremser et al., 2016).

#### b. Caractérisation du panache stratosphérique du Calbuco au-dessus de l'île de la Réunion

N. Bègue (maître de conférences au LACy Laboratoire des Cyclones, Université de la Réunion), en collaboration avec le LPC2E étudie le panache du Calbuco lors de son passage au-dessus de la l'île de la Réunion.

Le Volcan Chilien Calbuco ( $-41^{\circ}\text{N}$ ,  $-72^{\circ}\text{E}$ ) est entré en éruption le 22 avril 2015. Les observations faites par IASI ainsi que par CALIOP au cours des semaines suivant l'éruption montrent qu'une partie du panache a atteint la stratosphère jusqu'à une altitude comprise entre 14 et 18 km. Les données IASI permettent d'estimer qu'une masse d'environ 0,4 Tg de  $\text{SO}_2$  est injectée en stratosphère, ce qui représente une éruption de faible amplitude en comparaison avec le Pinatubo ayant injecté 20 Tg de  $\text{SO}_2$  en stratosphère. Cela place le Calbuco comme une éruption faible comparée au Pinatubo et environ d'un facteur 2 inférieure aux précédentes éruptions des 50 dernières années ( $\sim 1,7$  Tg pour le Kasatochi en 2008, 0,9 Tg pour le Sarychev en 2009, 1,3 Tg pour le Nabro en 2011, Carn et al., 2016).

La trajectoire de la partie stratosphérique du panache est restée comprise entre les latitudes  $-15^{\circ}\text{N}$  et  $-50^{\circ}\text{N}$  selon les deux satellites. Le passage du panache au-dessus de la Réunion ( $-21^{\circ}\text{N}$ ,  $55^{\circ}\text{E}$ ) a coïncidé avec la campagne de mesure MORGANE (*Maïdo Observatory Gas Aerosols NDACC Experiment*) organisée au LACy (Laboratoire des Cyclones à Saint-Denis de la Réunion). Cette campagne de validation du site NDACC réunionnais a permis la réalisation de mesures lidar et la caractérisation de l'altitude du panache en stratosphère. Le lâcher d'un LOAC sous ballon météorologique a été réalisé sur alerte le 19 mai 2015.

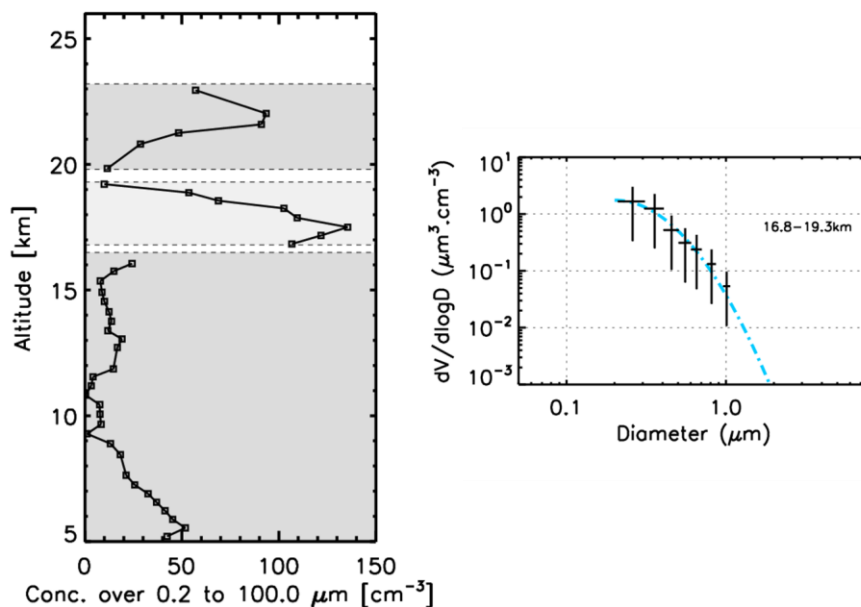


Figure 5.4 : Données LOAC pour le vol du 19 mai 2015 depuis l'île de la Réunion. A gauche, profil vertical de la concentration cumulée. A droite, distribution des volumes dans la zone d'altitude où se trouve le panache volcanique (Bègue et al., en cours de soumission)

Les mesures LOAC permettent de déterminer le rayon effectif des particules composant le panache à la date du 19 mai 2015. Un rayon effectif de  $0,16 \pm 0,02 \mu\text{m}$  est déterminé d'après les mesures LOAC et selon la définition de Hansen et Travis (1974). Cette estimation est de l'ordre des rayons effectifs déterminés pour l'éruption du Sarychev avec des mesures de 8 vols STAC ( $0,18 \pm 0,02 \mu\text{m}$ , Jégou et al., 2013). La valeur du rayon effectif mesuré par LOAC dans le panache du Calbuco est cohérente avec la relation établie par

Arfeuille et al. (2014) entre le rayon effectif et la masse injectée par une éruption (Figure 2.6) si on extrapole la relation à une masse de 0,41 Tg de SO<sub>2</sub> injectée en stratosphère.

Le signal rétrodiffusé du lidar 355 nm NDACC Réunion, détecte le panache du Calbuco entre 18 et 19 km d'altitude tandis que le LOAC le détecte entre 17 et 19 km. La différence d'altitude peut être expliquée par la relativement faible coïncidence spatio-temporelle des mesures, la variabilité à petite échelle du panache étant peu connue. Le lidar renseigne sur la tendance moyenne du panache et les données doivent être moyennées pendant un temps significativement long par rapport à la représentativité temporelle de la mesure LOAC. Bien qu'il existe des différences de représentativité sur ces deux techniques, la comparaison est encourageante.

Bègue et al. (en cours de soumission) analysent la variabilité de l'altitude du panache ainsi que de l'épaisseur optique à travers les barrières dynamiques tropicales. Le panache du Calbuco a été injecté dans la zone de surf (Plumb, 2002; Polvani et al., 1995). Le logiciel DyBAL (*Dynamical Barrier Location*), développé par le Laboratoire LACy permet la détection de la position des barrières dynamiques (Portafaix et al., 2003) et la caractérisation de la zone de surf.

Cette étude montre que la variabilité des aérosols stratosphériques au-dessus de l'île de la Réunion est influencée au niveau planétaire par les éruptions volcaniques et modulée au niveau régional par l'activité des ondes de Rossby qui déforment les barrières dynamiques. Les mesures LOAC et lidar montrent également qu'il existe également une variabilité de plus petite échelle modulant l'altitude du panache sur quelques jours.

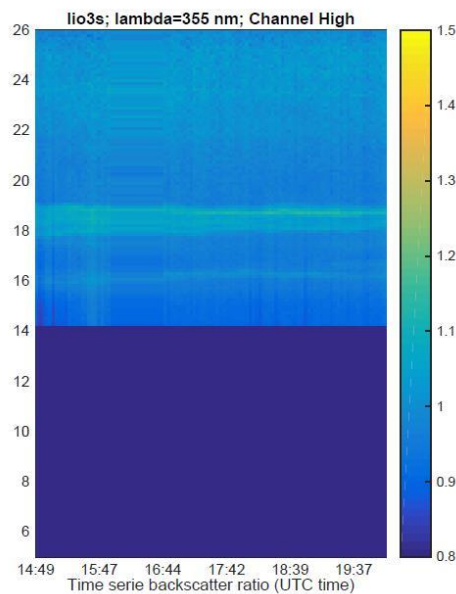


Figure 5.5 : Coefficient de rétrodiffusion du lidar 355 nm Île de la Réunion le 19 mai 2015 (Bègue et al., en cours de soumission)

### 5.1.2 Mousson indienne

L'origine anthropique des aérosols et son importance sur l'augmentation de l'épaisseur optique en basse stratosphère est encore débattue (Hofmann et al., 2009 ; Neely et al., 2013). L'influence de la mousson sur le contenu en aérosols dans la basse stratosphère et dans la région couverte par l'anticyclone de la mousson, est maintenant démontrée (Bergman et al., 2013; Morwal et al., 2012; Vernier et al., 2011a). Cependant, les propriétés optiques et les quantités de particules traversant la tropopause lors de ces événements ne sont pas encore complètement décrites. Vernier et al. (2015b) estiment que la partie inférieure de l'ATAL (*Asian Tropopause Aerosol Layer*) est composée de particules carbonées et sulfatées. Dans la partie supérieure, la proportion de sulfates par rapport au carbone est supposée augmenter. Le développement du continent asiatique et l'utilisation des ressources fossiles émettrices de pollutions gazeuse et particulaire est en



constante augmentation. La mousson indienne est depuis quelques années le centre de nombreux intérêts scientifiques car ce phénomène est une voie d'intrusion d'air troposphérique en stratosphère (SPARC, 2006; Vernier et al., 2015b).

Lors de la campagne BATAL 2015 (*Balloon Asian Tropopause Aerosol Layer*) 3 vols LOAC à quelques heures d'intervalle ont été réalisés pendant le mois d'août depuis Bénarès en Inde (25°N, 82°E).

L'un des vols LOAC a été fait à bord d'une nacelle poly-instrumentée embarquant un COBALD (*Compact Optical Backscatter Aerosol Detector*). Le COBALD est un mini détecteur d'aérosols fonctionnant sur le principe de la mesure de rétrodiffusion de deux émissions lumineuses (Brabec, 2007). Il est utilisé pour rendre compte de l'épaisseur des cirrus et de leur répartition saisonnière (Cirisan et al., 2014).

Le profil des concentrations des particules de diamètres supérieurs à 5  $\mu\text{m}$  selon LOAC comparé aux rapports de diffusion COBALD identifie une forte augmentation entre 11 et 15 km, attribuée à un cirrus. Une seconde augmentation entre 16 et 17 km est également détectée par les deux instruments (Figure 5.6). L'étendue verticale de cette augmentation n'est pas la même pour les deux instruments utilisant des techniques de mesures très différentes. Cette seconde augmentation est identifiée comme étant l'ATAL. Les données sont en cours d'analyse mais semblent indiquer que l'ATAL peut également être constituée de particules de diamètres supérieurs à 5  $\mu\text{m}$  à des concentrations de l'ordre de  $10^{-1} \text{ cm}^{-3}$  d'après les mesures LOAC.

Ces résultats sont très préliminaires, et nécessitent une analyse conjointe avec les autres observations menées lors de la campagne BATAL 2015.

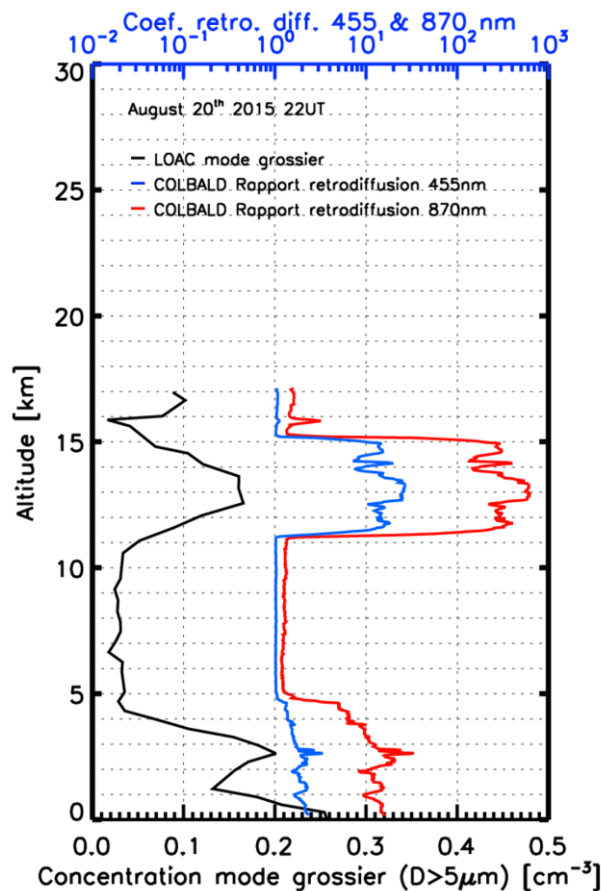


Figure 5.6 : Profils verticaux de la concentration du mode grossier mesuré par LOAC (courbe noire) et du rapport de rétrodiffusion aux longueurs d'ondes 455 et 870 nm mesurés par COBALD (courbe bleue et rouge) lors de la campagne BATAL depuis Bénarès en Inde

## 5.2 Origines stratosphériques de la variabilité

### 5.2.1 Variation de l'extinction stratosphérique au-dessus de la France

Le contenu en aérosols stratosphériques au-dessus de la France pourrait être modulé à la fois par des phénomènes relativement périodiques comme la mousson indienne et le vortex polaire (annuels), la ventilation du réservoir tropical par la QBO (biannuelle) mais également pas des événements de relativement faibles intensités et d'apparitions erratiques qui se révèlent être des acteurs importants (volcans, feux de forêt, rentrées météoritiques d'importances) lors des périodes de fond telles que les années étudiées dans ce travail de cette thèse. Au travers de la série temporelle des mesures LOAC et des données indépendantes détaillées au chapitre 4, nous analysons la variabilité du contenu en aérosols au-dessus de la France pour la période 2013-2016.

Les paramètres dynamiques révèlent une périodicité annuelle assez répétable et visible sur les données assimilées d'ERA-Interim (ECMWF) lors de la période 2013-2015. La Figure 5.7 représente les dépendances verticale et temporelle de la température de l'air et du vent zonal moyen dans la zone de comparaison au-dessus de la France ( $38^{\circ}\text{N}$  ;  $50^{\circ}\text{N}$  et  $-6^{\circ}\text{N}$  ;  $10^{\circ}\text{N}$ ). Nous distinguons schématiquement deux phases : une phase d'été où les vents zonaux sont d'est et une phase d'hiver où les vents sont d'ouest (Figure 5.7 B). La

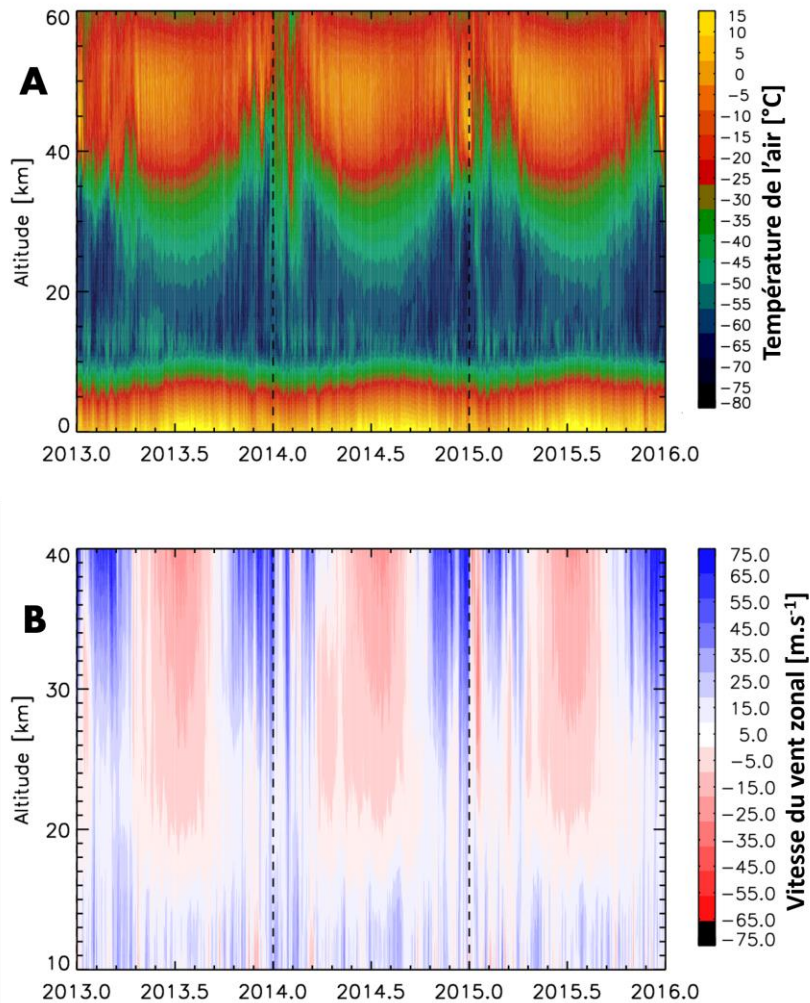


Figure 5.7 : Dépendance verticale et temporelle des paramètres dynamiques au-dessus de la France selon les données ERA-Interim ECMWF (dans la zone de comparaison  $38^{\circ}\text{N}$  ;  $50^{\circ}\text{N}$  et  $-6^{\circ}\text{N}$  ;  $10^{\circ}\text{N}$ ). En haut, température de l'air. En bas, vitesse du vent zonal

vorticité potentielle (PV, modèle MIMOSA, Figure 5.8) est corrélée avec les phases d'été et d'hiver à partir de 21 km au-dessus de la France.

La phase d'été (mi-avril à mi-août) se caractérise par un gradient vertical de température croissant de 30 à 50 km d'altitude (Figure 5.7 A), des vents zonaux d'est et une vorticité potentielle présentant peu de variation dans le temps (Figure 5.8).

La phase d'hiver (mi-août à mi-avril) est représentative d'une période perturbée où les vents zonaux peuvent s'inverser en quelques jours à partir de 20 km d'altitude (exemple hiver 2014-15 Figure 5.7). La vorticité potentielle peut y évoluer rapidement (notamment au-dessus de 15 km Figure 5.8) témoignant d'une variation des barrières dynamiques (les valeurs de PV élevées sont associées à la présence de masses d'air polaire). De plus, la phase d'hiver ne se présente pas comme une phase prévisible et répétable.

L'hiver 2013-2014 est marqué par une rapide augmentation de la température à partir de janvier 2014 en moyenne stratosphère (30-35 km de -60 à -40 °C environ, Figure 5.7 A). Un changement brutal de la PV est corrélé à ce changement de température. Cette chute de la température en moyenne stratosphère n'apparaît pas lors de l'hiver 2014-2015. L'évolution temporelle de la PV ne s'effondre pas mais montre plutôt un pic important sur quelques jours.

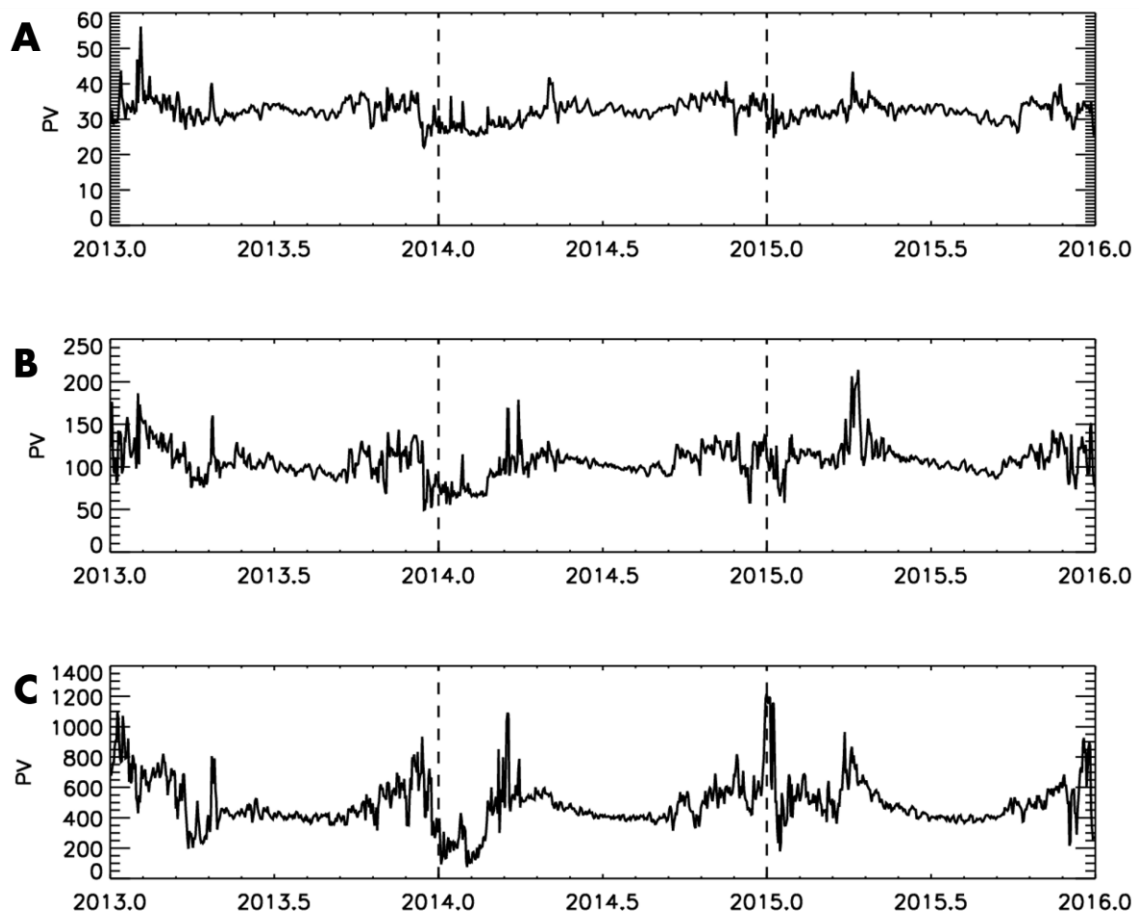


Figure 5.8 : Vorticité potentielle moyenne au-dessus de la France pour 3 altitudes : A) environ 18 km, B) environ 21 km, C) environ 28 km. Données extraites du modèle MIMOSA

Lors de l'hiver 2013-2014 le vortex polaire arctique a eu tendance à se positionner au Nord de l'Europe et à se maintenir circulaire jusqu'à mi-décembre. A partir de mi-décembre, la forme du vortex s'est maintenue « allongée » au-dessus du pôle, s'étendant entre le Groenland et le Nord de l'Oural. L'hiver 2014-2015 est différent. Lors du début du mois de janvier 2015, le vortex arctique s'est étendu jusqu'au Sud de

l'Europe en moyenne stratosphère avant de quasiment disparaître. La Figure 5.9 représente la forme du vortex polaire pour les jours du 5 janvier des années 2014, 2015 et 2016. L'année 2016 est aussi montrée pour illustrer la diversité des situations. La Figure 5.10 représente la position du vortex vers 28 km d'altitude (950K) et est donnée pour illustrer l'évolution dans le temps du vortex. On remarque que pour ces trois hivers, la France est plus ou moins influencée par le vortex. Lors des hivers 2013/14 et 2015/16, le bord du vortex est plutôt positionné au nord de l'Europe, tandis que pendant l'hiver 2014/15, le vortex a pénétré loin dans les latitudes moyennes.

La Figure 5.11 représente en concordance de temps et du haut vers le bas le vent zonal vers 28 km, la vorticité potentielle vers 28 km, l'extinction OMPS, l'extinction WACCM, l'extinction lidar OHP et l'extinction LOAC. Les représentations du vent zonal, de la vorticité, de l'extinction OMPS et WACCM sont comparables entre elles car elles sont données comme des moyennes journalières sur la France (selon la zone de comparaison telle que définie au chapitre 4). Les extinctions lidar OHP et LOAC sont représentées sur la Figure 5.11 par leur moyenne mensuelle. L'évolution de l'extinction LOAC est présentée sur la Figure 5.11 après un filtrage vertical médian sur 5 points de chaque profil individuel puis un lissage par une moyenne glissante sur 3 points dans le temps afin de retirer les sursauts et perturbations. Nous présentons ainsi « l'enveloppe » de la variation de l'extinction LOAC hors événements intenses d'échelle très locale (d'origine instrumentale ou non).

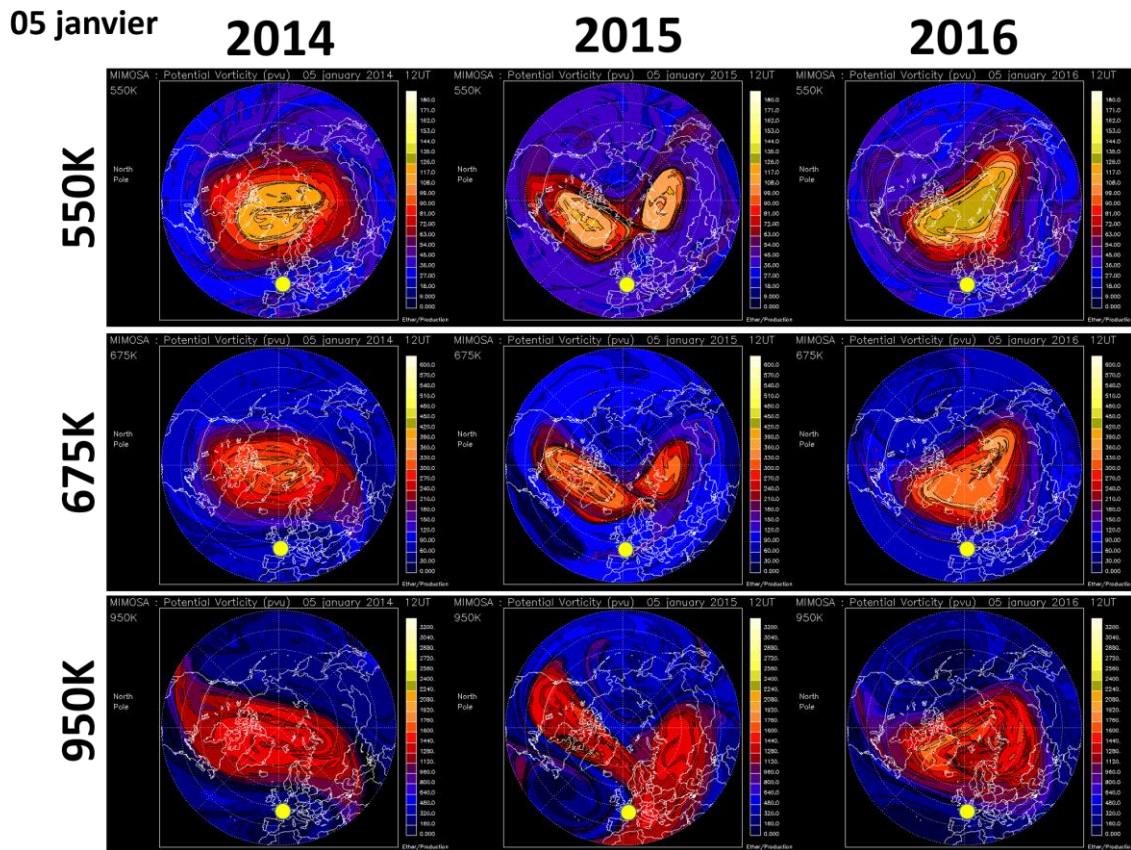


Figure 5.9 : cartes de PV de l'hémisphère nord représentant la position du vortex polaire pour le 5 janvier 2014, 2015 et 2016 à trois niveaux d'altitudes 550K (18 km), 675K (21 km) et 950K (28 km). Le point jaune représente la position de la France, sa surface est de l'ordre de grandeur de la zone utilisée pour comparer les données

Les données moyennes WACCM et OMPS sont plutôt corrélées entre elles ainsi qu'avec les données dynamiques (vent et PV), les phases d'hiver et d'été sont bien marquées. Les données OMPS et WACCM présentent des augmentations du contenu en aérosols au-dessus de 25 km tous les hivers plutôt corrélées avec les augmentations de PV signant l'effet de la présence du vortex polaire (ou de structures filamentaires au-dessus de la France). OMPS révèle des maximums d'extinctions en aérosols tous les hivers dans la basse

stratosphère, particulièrement en 2015 et 2016. Une hypothèse qui demeure à confirmer serait que le vortex polaire, à l'intérieur duquel le contenu en aérosols s'avère plus important qu'à l'extérieur (Curtius et al., 2005; Weigel et al., 2014) au moins en dessous de 20 km, influe à l'échelle de l'hémisphère nord. Le modèle WACCM ne simule pas clairement cette saisonnalité dans la basse stratosphère, peut-être en raison de l'origine météoritique de ces particules qui ont été observées à ces altitudes (Curtius et al., 2005 ; Weigel et al., 2014) et non prises en compte dans la simulation.

Les mesures locales (lidar OHP et LOAC) présentent une plus grande variabilité spatiale et moins de saisonnalité. Les mesures locales et les données moyennes (OMPS, WACCM) sont représentatives de zones spatiales différentes. Le lidar OHP positionné au sud de la France (44°N ; -6°E) et la base de lâchers à Aire sur l'Adour (43°N ; 0°E où la majorité des vols LOAC sont effectués) sont représentatifs de la partie sud de la zone de représentation (38°N ; 50°N et -6°E ; 10°E).

Il est difficile d'interpréter les fortes extinctions mesurées par le lidar et le LOAC en hiver compte tenu de la situation perturbée dynamiquement et des effets potentiellement importants qu'il peut exister entre les lieux de lâchers des ballons LOAC et le site de l'Observatoire de Haute Provence. On remarque néanmoins que les mesures LOAC présentent également un renforcement du contenu en aérosols au-dessus de 28 km vers janvier 2015 en corrélation avec le pic de PV. Les augmentations des extinctions dans la basse stratosphère à ces mêmes périodes semblent également confirmées par LOAC.

Les phases d'été 2014 et 215 dont nous disposons sont respectivement dans les phases d'ouest et d'est de QBO. Une étude est en cours de réalisation afin de déterminer s'il apparaît des effets locaux dans les données LOAC et lidar OHP pendant les phases d'été.

Nous étudions aussi la question du passage du panache du volcan Kelud (Indonésie 8°S ; 112°E, éruption en février 2014) dans l'hémisphère nord. Nos simulations WACCM qui permettent de prendre en compte cette éruption, ne montrent pas un tel transport. Une étude en cours de publications/discussions par S. Khaykin (Khaykin et al., 2016) du LATMOS portant sur le lidar OHP semble pourtant indiquer le contraire. Selon cet auteur, le panache est mesuré au-dessus du sud de la France début 2015. Nous ne pouvons pour le moment affirmer que l'on voit le panache dans nos données LOAC.

L'anticyclone associé à la mousson asiatique est une structure dynamique de l'UTLS d'échelle synoptique atteignant les bords est de la Méditerranée. L'intense pollution anthropique en Asie semble être principalement à l'origine des fortes quantités de particules qui y sont confinées jusqu'à 17 km (ATAL). Une hypothèse à l'étude à l'heure actuelle est que l'ATAL pourrait impacter la stratosphère de l'hémisphère nord en été ou après le délitement de l'anticyclone. Or les données présentées dans la Figure 5.11 ne révèlent aucune évidence d'une augmentation des extinctions en particules précisément en cette saison en dessous de 18 km.

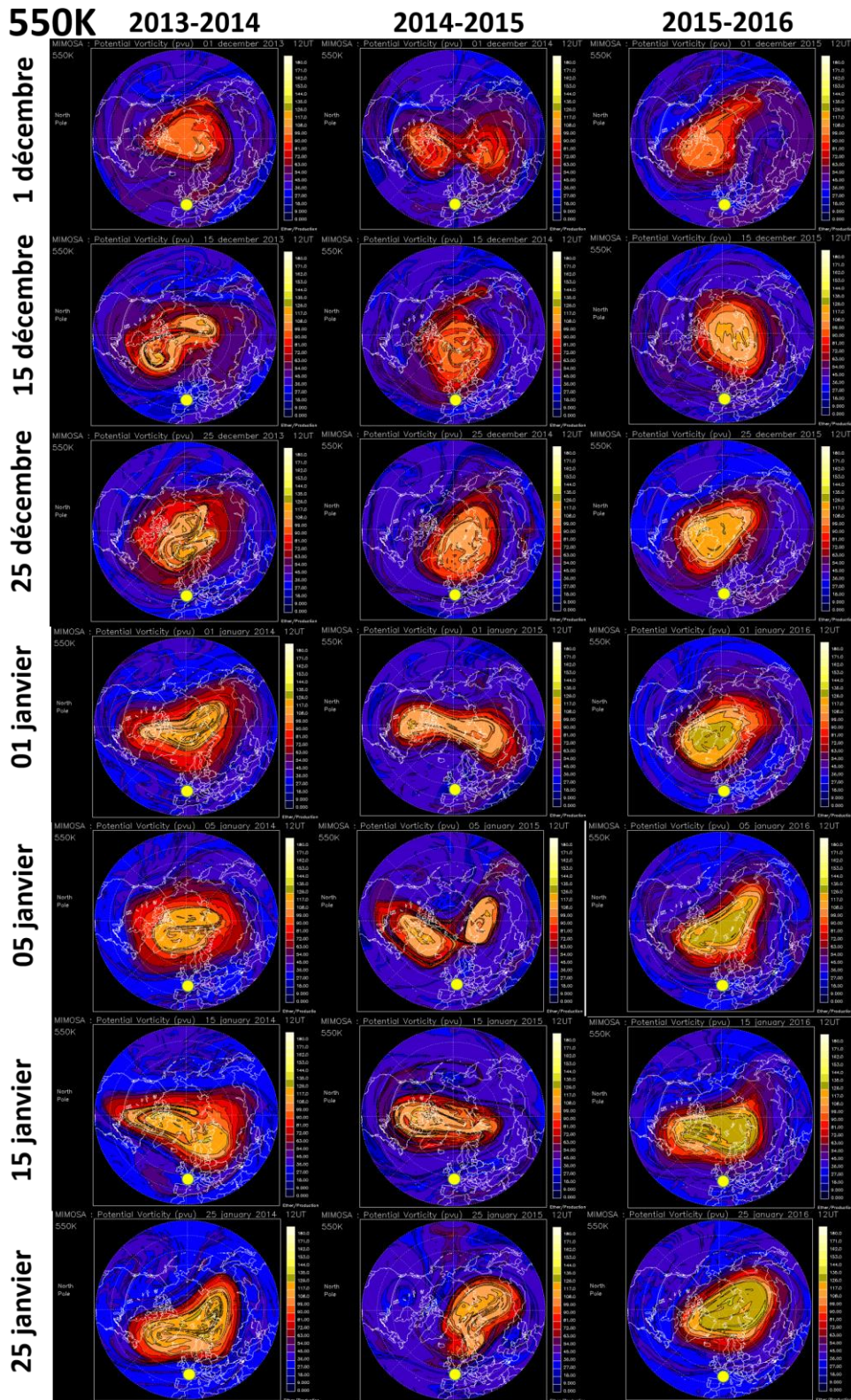


Figure 5.10 : cartes de PV hémisphère nord représentant la position du vortex polaire pour l'altitude 950K pour les 3 hivers 2013/14, 2014/15 et 2015/16. Le point jaune représente la position de la France, sa surface est d'ordre de grandeur de la zone utilisée pour comparer les données

## 5 Caractérisation des sources de la variabilité des aérosols stratosphériques

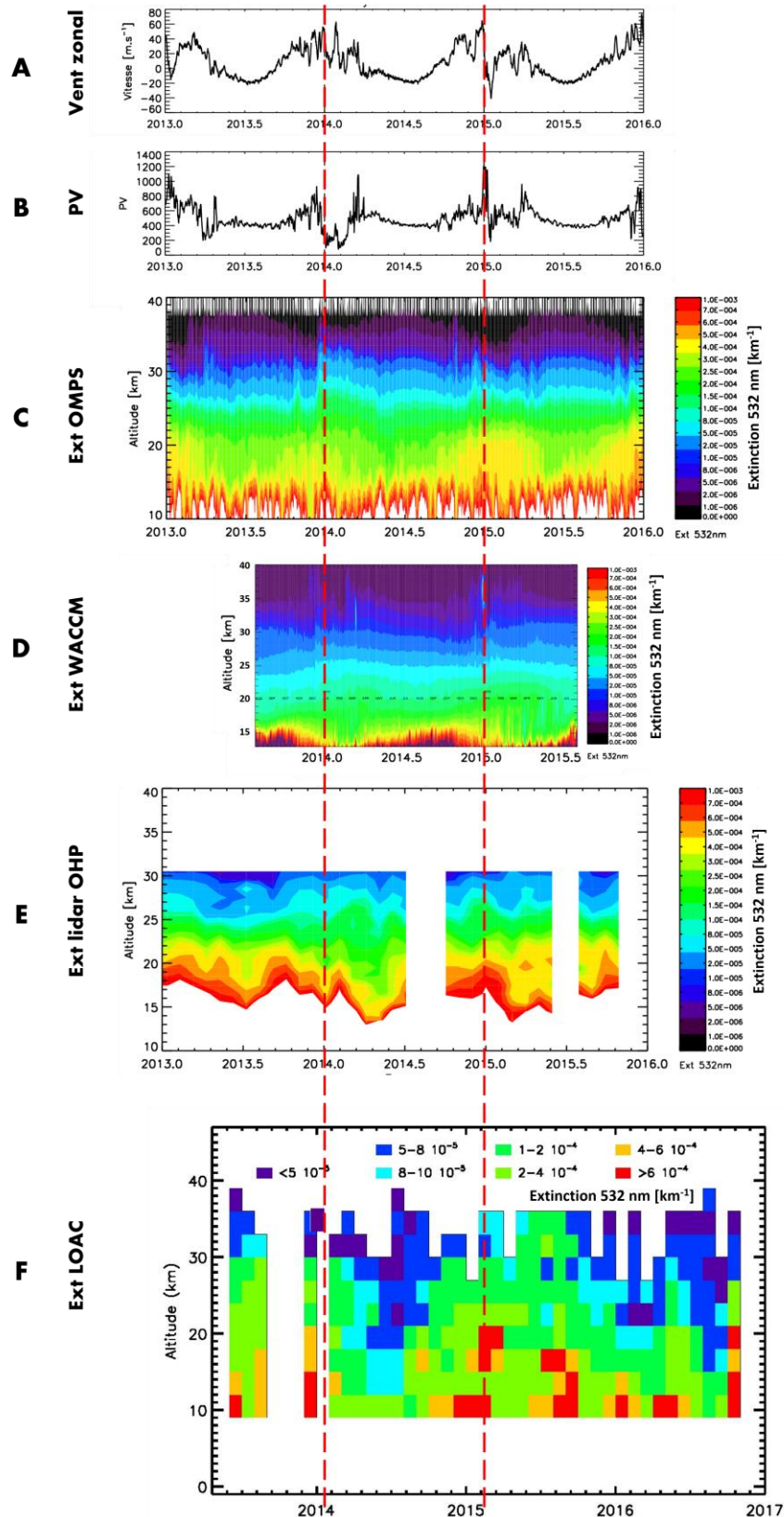


Figure 5.11 : De haut en bas en concordance de temps : A) vent zonal moyen à 28 km environ selon ECMWF, B) vorticité potentielle à environ 28 km selon MIMOSA, C) extinction à 532 nm selon OMPS, D) extinction à 500 nm selon WACCM, E) extinction à 532 nm selon le lidar OHP, F) extinction à 532 nm selon LOAC. Toutes les tendances sont données comme moyennes sur la zone de comparaison déterminée dans le chapitre 4 en moyenne journalière, sauf pour lidar OHP et le LOAC qui représentent des extinctions locales en moyenne mensuelle

### 5.2.2 Cas de l'influence des ondes de gravité sur la distribution spatiale et temporelle des aérosols

Le jet stream est un courant de vent localisé en haute troposphère, parcourant les moyennes latitudes d'est en ouest (North et Zhang, 2015). Les masses d'air dans le jet se déplacent à des vitesses de l'ordre de 20 à 30 m.s<sup>-1</sup>. L'accélération des masses d'air et la modification de la direction zonale du jet peuvent dans certaines conditions conduire à un événement nommé jet streak. Un jet streak est une zone du jet stream associée à une accélération des vitesses des masses d'air favorable à l'apparition d'ondes de gravité (Plougonven et Zhang, 2014). La Figure 5.12 représente la situation météorologique du 27 juillet à 12h00 TU à l'altitude de 300 hPa par les données opérationnelles ECMWF. La zone délimitée par la courbe discontinue jaune représente l'identification du jet streak où les vitesses des masses d'air dépassent 50 m.s<sup>-1</sup>.

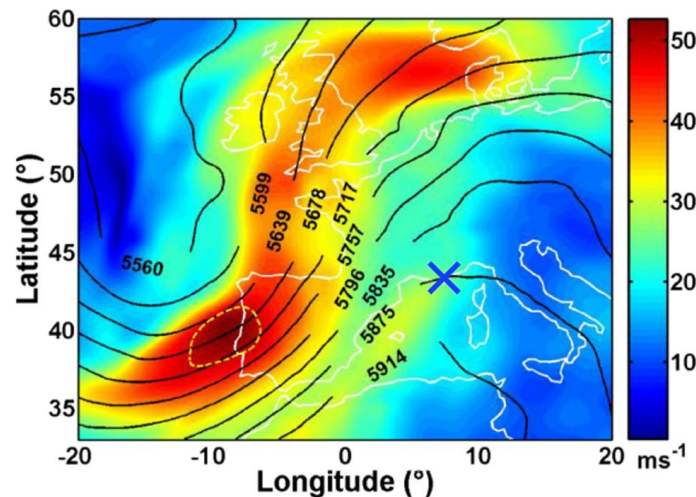


Figure 5.12 : Représentation des vitesses du vent à l'altitude 300 hPa le 27 juillet à 12h00 TU (données opérationnelles ECMWF). Les couleurs représentent les vitesses en m.s<sup>-1</sup>. La zone où les vitesses dépassent 50 m.s<sup>-1</sup> est indiquée par la courbe discontinue jaune à l'ouest de la péninsule ibérique. Les courbes noires représentent les altitudes géopotentielles à 500 hPa. La croix indique le lieu du lâcher du LOAC sous ballon météorologique (Chane Ming et al., 2016)

Chane Ming et al. (2016) (que je cosigne) caractérisent l'activité ondulatoire présente le 27 juillet 2013 au-dessus de la Méditerranée. Les observations météorologiques d'un vol LOAC, des données ozone d'un second ballon météorologique (Gheusi et al., 2016) et les données GPS par radio-occultation sont examinées afin d'identifier des fluctuations dans les données de gaz traceurs et dans la distribution verticale des concentrations de particules lors de la campagne ChArMEx 2013.

Les Figure 5.13 représentent respectivement les fluctuations verticales de la température (a) et du vent zonal (b) sur la gauche en courbe bleue, accompagnée de l'analyse spectrale de ces fluctuations suivant la longueur d'onde à droite. La fluctuation est obtenue par soustraction entre le profil et son signal de fond, le spectre est obtenu par analyse continue en ondelettes de Morlet (Chane Ming et al., 2010). Le scalogramme montre de fortes valeurs des coefficients en ondelettes pour la longueur d'onde verticale 2,6 km aux altitudes comprises entre 13 et 20 km (zone rouge sur la Figure 5.13 à droite). Cette structure est également présente sur les perturbations des profils d'ozones et de vents méridiens ainsi que dans les données GPS par radio-occultation (non montrés ici).

Le profil LOAC obtenu le 27 juillet à 23h03 TU depuis l'île du Levant par radio-sondage (43°N ; 6°E, croix bleue sur la Figure 5.12) présente une augmentation marquée de la concentration localisée entre 15 et 28 km (résolution des données 10 secondes, Figure 5.14).



## 5 Caractérisation des sources de la variabilité des aérosols stratosphériques

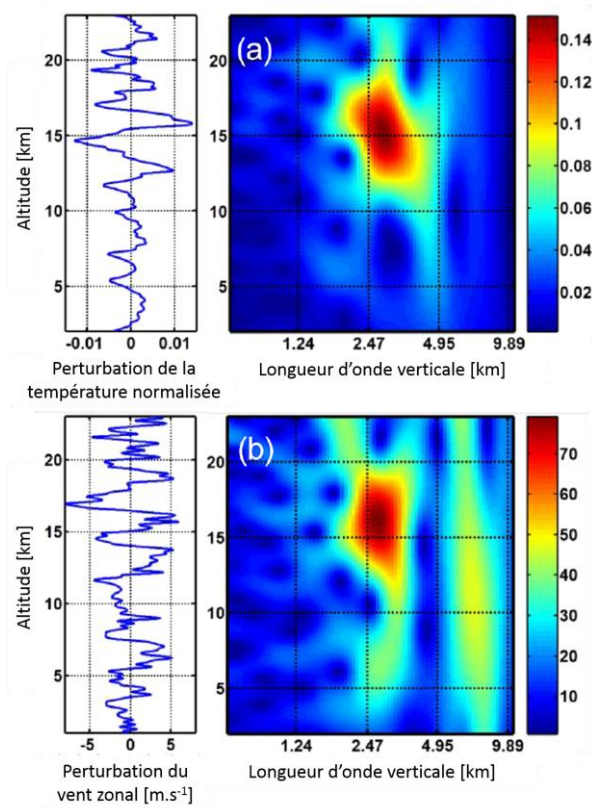


Figure 5.13 : Représentation des perturbations et de la transformée en ondelettes de Morlet pour la température potentielle (A) et le vent zonal (B) en fonction de l'altitude (adapté d'après Chane Ming et al., 2016)

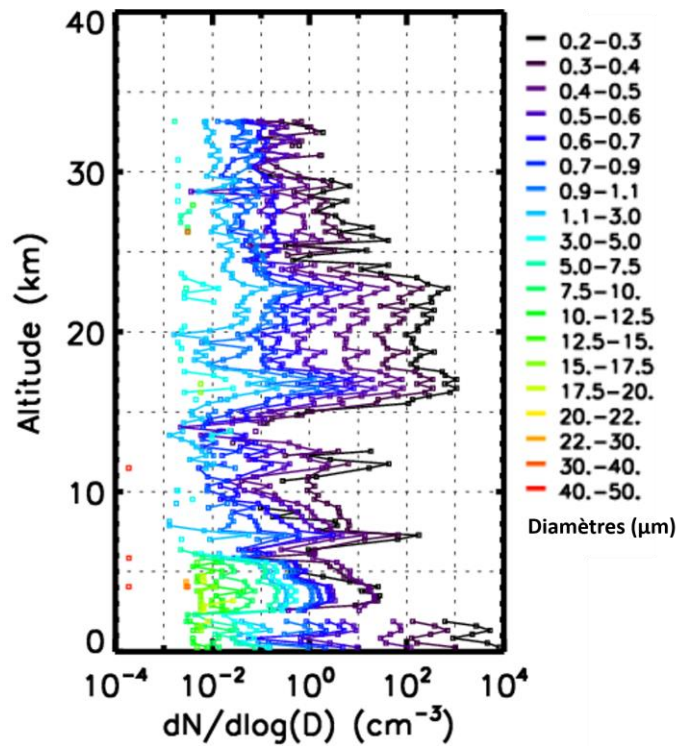


Figure 5.14 : Distribution verticale des concentrations par gammes de tailles mesurée par LOAC le 27 juillet 2013 à la résolution 10 secondes

L'analyse continue en ondelettes de Morlet est appliquée sur les mesures de concentrations cumulées sur les 5 premières gammes de tailles, représentatives des diamètres de particules de 0,2 à 0,7  $\mu\text{m}$ . L'analyse révèle une structure ondulatoire de longueur d'onde verticale de 2,6 km présente entre 13 et 20 km d'altitude (Figure 5.15). La longueur d'onde ainsi que sa présence en altitude concorde avec l'analyse des paramètres dynamiques. Cette structure ondulatoire dans le profil de concentration cumulée est donc associée à une origine dynamique. Cette onde module le contenu en concentration mesuré par LOAC jusqu'à  $\pm 60\%$  de la concentration de fond. Cette variation est estimée être régionale, structure méso-échelle de l'ordre du millier de kilomètres, présente pendant 24 heures environ. Un vol LOAC a été produit le lendemain 28 juillet 2013 à 15h24 TU dans lequel l'onde n'est plus présente, le jet streak s'étant dissipé après 12h00 TU.

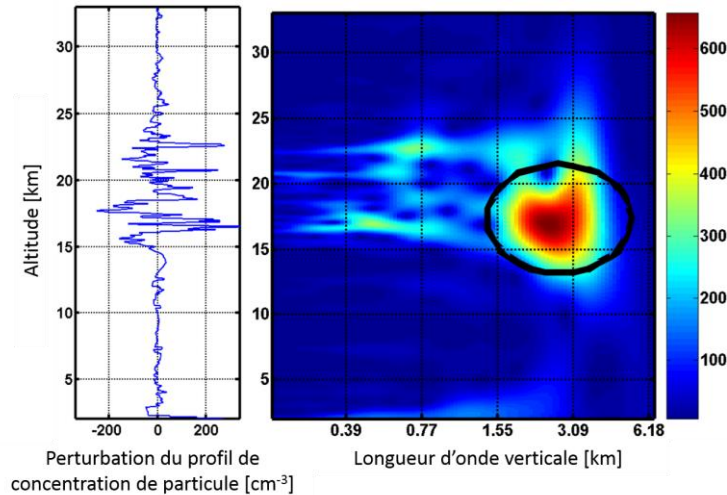


Figure 5.15 : A gauche, profil de perturbation des concentrations cumulées LOAC sur les gammes de tailles 0,2 à 0,7  $\mu\text{m}$ , à droite spectre de la perturbation révélant une structure vers 2,6 km de longueur d'onde entre 13 et 20 km d'altitude (adapté d'après Chané Ming et al., 2016)

Les ondes de gravité modulent donc le contenu en particules dans la stratosphère. Nilsson et al. (2000) montrent que des variations de température de courtes périodes affectent le taux de nucléation jusqu'à une magnitude de 5 pour une variation de quelques Kelvin. L'amplitude de l'onde serait un paramètre prépondérant sur l'augmentation du taux de nucléation selon les mêmes auteurs, et affecterait la concentration des particules de diamètre inférieur au micromètre.

Le vol LOAC du 27 juillet 2013 est une occasion rare de caractériser l'effet des ondes de gravité sur le contenu en particules car l'activité de ces ondes n'est pas homogène, ni dans le temps ni dans l'espace. D'autre part, pour que l'onde puisse être détectée par le LOAC en stratosphère, il est nécessaire d'avoir une concentration relativement élevée devant la limite de détection de l'instrument. Le cas de ce vol est particulier car la concentration dépasse plusieurs centaines de particules par  $\text{cm}^3$  sur environ 8 km d'altitude. Ce qui est relativement rare dans le jeu de données LOAC (Figure 4.5). Bien que l'empreinte ondulatoire dans les données de concentration LOAC soit manifeste, il est difficile d'affirmer que tout le contenu en particules provient effectivement de l'activité ondulatoire. L'hypothèse, qui reste à confirmer, selon laquelle la mousson asiatique a une influence jusqu'en Europe occidentale, permettrait de corrélérer l'origine des masses d'air échantillonnées par le LOAC avec la source d'introduction de masses d'air troposphérique que permet l'anticyclone de la mousson justement actif au mois de juillet (période du vol étudié ici).

La Figure 5.16 représente les rétro-trajectoires calculées avec le code FLEXible TRAjectories 5.0 (FLEXTRA, Stohl et al., 1998). Les rétro-trajectoires sont initialisées avec les données opérationnelles ECMWF, résolues temporellement à 3 h et spatialement  $1^\circ \times 1^\circ$  horizontalement pendant 10 jours depuis le 27 juillet à 23h TU, à chaque km entre 0 et 30 km d'altitude. Les courbes turquoise et vertes sont représentatives de la trajectoire de masses d'air ayant croisé la trajectoire du LOAC sous ballon à des altitudes entre 15 et 26 km, ces masses d'air proviennent toutes de l'est (Figure 5.16). L'origine des masses d'air se trouvant au-dessus de la Méditerranée entre 15 et 20 km le 27 juillet lors de la mesure LOAC, étaient au-

dessus du continent asiatique 5 à 10 jours avant, plutôt en région tropicale. Au-dessus de 20 km, les trajectoires suivent le 40° parallèle. Il est envisagé que la masse d'air se soit chargée en particules ou gaz précurseurs provenant de la troposphère lors de son passage au-dessus du continent asiatique. Après avoir été advectée jusqu'au sud de la France, celle-ci aurait subi l'interaction avec l'onde de gravité modulant en altitude sa concentration par un effet sur le taux de nucléation.

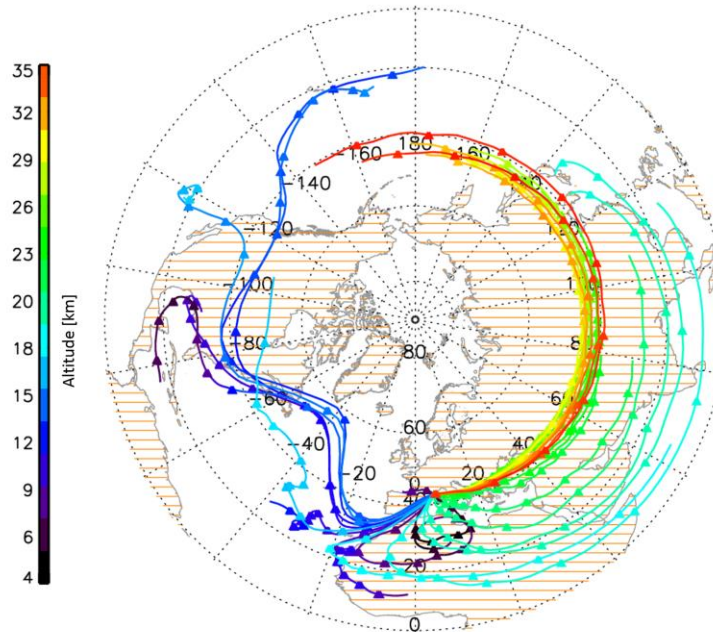


Figure 5.16 : Rétro-trajectoire des masses d'air échantillonnées par le LOAC le 27 juillet 2013. Chaque courbe de couleur représente la rétro-trajectoire lancée tous les kilomètres en altitude sur la trajectoire de la montée du ballon pour une durée de 10 jours, chaque triangle représente une période de 24 h. On distingue typiquement 3 régions : la troposphère jusqu'à 15 km (noir à bleu) d'origine diverse plutôt outre-Atlantique, la basse stratosphère de 15 à 22 km (turquoise à vert) dont l'origine est de tropicale à latitude moyenne (10° à 40° N) en fonction de l'altitude, puis la moyenne stratosphère au-dessus de 22 km (vert à rouge) dont l'origine zonale, est homogène avec l'altitude (40°N)

L'origine de la masse d'air ne prouve cependant pas l'origine de la relative forte concentration mesurée par LOAC. Certains vols pendant la campagne ChArMEx possèdent également des rétro-trajectoires advectées depuis le continent asiatique sans que le LOAC ne détecte de fortes concentrations. De plus, les particules ne sont pas des traceurs dynamiques fiables, compte tenu de leurs nombreuses interactions avec l'atmosphère, l'interaction avec l'activité ondulatoire en étant une en particulier, relativement peu documentée.

Cette variabilité des concentrations des particules produites par les ondes de gravité serait donc de courte durée dans le temps, de l'ordre de la journée et restreinte à une échelle régionale. L'étude de ce phénomène nécessite une mesure in situ de la concentration compte tenu de la dimension de l'onde (quelques km verticalement). Les mesures à distance du type limbe ou occultation par satellite ne permettent pas d'atteindre cette résolution. Les hypothèses de traitement de ces techniques de mesure à distance supposent une certaine homogénéité spatiale et temporelle de plus grande dimension que l'onde. D'autre part, la résolution verticale n'est pas assez grande (environ 2 à 3 km). La mesure lidar sol du type de celle de l'OHP permettrait peut-être d'atteindre ce genre de résolution, la durée de la présence de l'onde étant de quelques dizaines d'heures tandis qu'un lidar adapté à la mesure des aérosols stratosphériques fonctionne pendant quelques heures chaque nuit dans le meilleur des cas. La résolution verticale du lidar semblerait compatible. Le lidar spatial CALIOP serait cependant moins adapté compte tenu de son déplacement et du temps d'intégration nécessaire pour les mesures en stratosphère. L'instrumentation sous ballon permet de caractériser ce phénomène. Il existe probablement d'autres cas d'études dans les 95 vols LOAC lâchés depuis la France qui nécessiteraient d'être étudiés afin de caractériser la fréquence d'interaction des ondes avec les aérosols et estimer leur impact global.

## 6 Conclusions et perspectives

### 6.1 Conclusions générales

Ce travail de thèse a eu pour but l'étude de 3 ans de données LOAC sous ballon météorologique au-dessus de la France et lors de campagnes ponctuelles notamment à l'étranger. L'analyse des tendances temporelles de 95 vols réguliers lors d'une période de fond hors éruption volcanique ainsi que de vols lors d'événements particuliers a eu pour ambition de caractériser la variabilité des aérosols stratosphériques selon la distribution de leur concentration, de leur taille ainsi que de leur nature optique avec le temps et l'altitude.

Le LOAC allie la capacité de rendre compte des particules non-sphériques et de compositions non-homogènes au potentiel d'être lâché avec une grande fréquence grâce à son relatif faible coût. L'avantage de la technique LOAC pour la recherche sur les aérosols stratosphériques est certain. Cette technique annonce à la fois la possibilité de rendre compte des particules sulfatées et non-sulfatées en stratosphère, et de caractériser leur variation sur une faible échelle de temps et d'espace par la mesure in situ. Ce type de mesure est nécessaire afin de pouvoir discuter de la pertinence des hypothèses sur la nature moyenne des aérosols stratosphériques. Nous pensons que les aérosols non purement sulfatés (d'indice de réfraction différent de  $1,45 + 0i$ ) sont trop souvent ignorés et que cette simplification d'usage conduit à généraliser l'utilisation inadaptée de coefficients d'Angstrom et rapports lidar générant des biais importants en moyenne stratosphère.

Les campagnes de mesure Voltaire-LOAC et ChArMEx comptabilisant plus de 95 vols météorologiques à la fréquence moyenne de 2 vols par mois depuis la France entre juin 2013 et août 2016, sont inédites en termes de fréquence d'observation et de nombre de vols ; elles fournissent un jeu de données tout autant inédit. Les données montrent une grande variabilité verticale et temporelle comparée aux données indépendantes de mesure à distance OSIRIS, OMPS, CALIOP, lidar LiO3s OHP ainsi que du modèle WACCM, et cependant un relativement bon accord des données moyennes sur 3 ans en basse stratosphère. En moyenne stratosphère, la dispersion des données LOAC est également importante mais révèle en moyenne des extinctions élevées, que les mesures à distance ne mettent pas en évidence. Les différences de représentativité spatiale et temporelle, ainsi que des hypothèses de traitement des mesures à distance permettent d'interpréter une partie des différences. Au-delà de l'analyse des données de vols, cette thèse a également eu pour objet les performances du LOAC pour son utilisation en stratosphère. Ce travail a mis en évidence la limite de détection, concernant les particules inférieures au micron, proche des valeurs attendues en basse stratosphère lors des périodes de fond en moyenne latitude. Cette limite de détection de l'ordre de 1 particule par  $\text{cm}^3$  restreint l'utilisation du LOAC en moyenne stratosphère à partir de 21 km typiquement aux moyennes latitudes lors de période de fond. L'influence du rayonnement cosmique se révèle également critique et limite les performances de l'instrument en basse stratosphère.

Si le fonctionnement du LOAC en stratosphère en condition de fond est limité, son utilisation pour caractériser des milieux denses et difficiles d'accès est très encourageante. L'exemple de la caractérisation de la structure verticale d'un panache volcanique en troposphère, 15 minutes après son émission, est remarquable et démontre tout le potentiel des instruments miniaturisés. Une étude de cas inédite sur l'influence de la répartition verticale des aérosols par l'interaction des ondes de gravité a été possible grâce à la technique LOAC sous ballon météorologique. La capacité de lancement sur alerte du LOAC sous ballon lors d'événements sporadiques comme l'éruption du Calbuco a été démontrée. L'étude du panache de ce volcan en stratosphérique au-dessus de l'île de la Réunion donne déjà de bons résultats notamment par comparaison avec les mesures lidar. L'étude de la mousson indienne et son influence sur l'ATAL avec le LOAC est très prometteuse afin de caractériser les particules anthropiques aux propriétés optiques attendues comme absorbantes.

En conclusion, le LOAC est un instrument dont le principe de mesure convient aux thèmes de recherche stratosphériques actuels par son indépendance à la nature des particules, le caractère in situ de sa mesure, son faible coût et sa souplesse de déploiement. Le jeu de données LOAC présenté dans cette étude permet de discuter l'aspect extrêmement local de probables variations dans le contenu des aérosols stratosphériques. Cependant, des conclusions quantitatives sont difficiles à avancer compte tenu des incertitudes sur les

mesures. Afin de pouvoir lever un certain nombre d'ambiguïtés sur les performances du LOAC en stratosphère, il est cependant nécessaire de poursuivre les études en laboratoire ainsi qu'en environnement. En perspectives nous proposons différents tests et essais sur le LOAC ainsi que sur le jeu de données 2013-2016 qui n'ont pas pu être produits pendant cette thèse. Nous abordons également les développements futurs d'ores et déjà engagés.

### 6.2 Perspectives métrologiques

A partir des résultats de cette thèse, 5 principales caractéristiques se dégagent de l'analyse des besoins en termes de performances métrologiques pour l'utilisation du LOAC version 1.2 (V1.2) en stratosphère sous ballons météorologiques. Ces 5 caractéristiques sont la linéarité, la stabilité, l'influence de la température, l'influence du prélèvement et l'influence du rayonnement cosmique. Ces objectifs se présentent comme des faiblesses et incertitudes pour la V1.2 que la nouvelle version LOAC version 2 (V2) prend en compte dans le cadre de son développement d'ores-et-déjà amorcé.

Techniquement, le développement du LOAC V2 est organisé selon des objectifs de réduction de la détection statistique, par l'augmentation du rapport signal sur bruit, ainsi que par la réduction du coût de l'instrument. Les principales modifications techniques portent sur :

- Augmentation de la puissance surfacique du faisceau laser au niveau de la cellule de détection par le remplacement du laser et de la forme oblongue de la section du faisceau pour une forme pinceau,
- Augmentation du rapport signal sur bruit des détecteurs photodiodes par le changement du détecteur et/ou de la chaîne de la mise en forme analogique du signal,
- Changement des composants électroniques créant la dépendance à la température de la mesure afin de s'affranchir de la procédure de recadrage,
- Optimisation de la carte principale LOAC afin d'augmenter la compatibilité électromagnétique,
- Optimisation de la cellule de détection par la modification de la géométrie et des matériaux.

Les changements entre la V1.2 et la V2 nécessitent une nouvelle caractérisation de ses performances vis-à-vis des conditions d'utilisation sous ballon météorologique en particulier. Nous proposons une stratégie idéalisée de calibration et d'organisation des campagnes de mesure basée sur le retour de d'expérience lors de l'utilisation de la V1.2.

#### 6.2.1 Linéarité

La réponse d'un instrument est linéaire si le rapport d'une variation de la grandeur à déterminer sur la variation de la grandeur mesurée est constant sur toute l'étendue de mesure. La linéarité de la mesure LOAC est établie par Renard et al. (2016a) selon la concentration massique ( $PM_{10}$ ) en référence avec un TEOM entre environ 3 et 70  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  pour des particules irrégulières de différentes natures incluant des particules optiquement absorbantes (Figure 3.9). La linéarité en concentration par gamme de taille est validée pour des gouttelettes d'eau et d'embruns marins dans des concentrations de l'ordre de plusieurs dizaines à quelques centaines de particules par  $\text{cm}^3$  (Figure 3.8).

Ces résultats sont très encourageants et afin de valider la linéarité pour de plus faibles concentrations en nombre de particules par gamme de taille et pour des particules représentatives des aérosols stratosphériques, il peut être envisagé de produire un banc de calibration dédié à la mesure en stratosphère.

Nous proposons un banc schématique constitué de 4 unités, la génération, la dilution, la sélection et la détection, les flèches indiquant le sens de l'écoulement de l'aérosol (Figure 6.1). L'objectif de ce dispositif est de présenter dans la cellule de détection du LOAC un aérosol représentatif de la stratosphère tout en disposant d'une mesure comparative afin d'établir la calibration. Chaque unité est discutée en perspective, nous proposons quelques solutions techniques envisageables compte tenu des dispositifs connus de recherche ou commerciaux disponibles et des contraintes sur les aérosols stratosphériques que l'on souhaite caractériser.

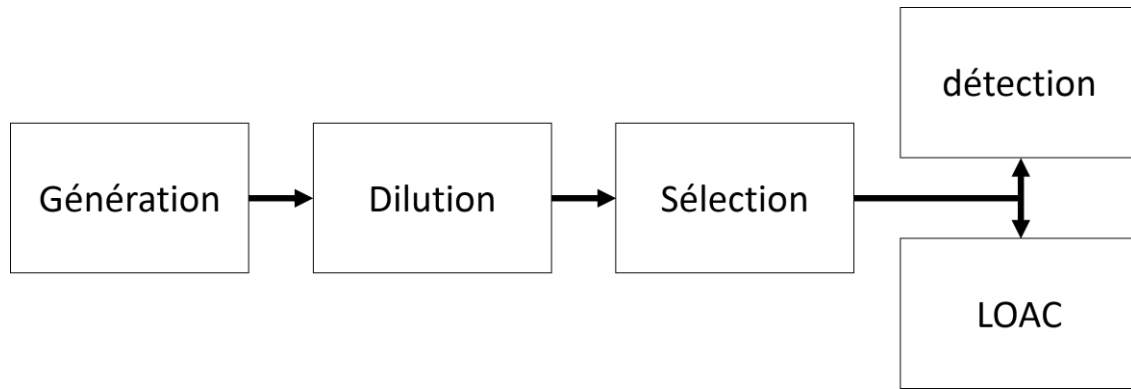


Figure 6.1 : Schéma de principe d'un banc de calibration

#### a. Le protocole

Le protocole détermine les procédures des tests compte tenu des objectifs fixés et des différents éléments qui formeront le banc. La nature des particules souhaitées, de l'étendue de mesure en concentration, des temps d'intégration souhaités détermineront les différentes unités du banc de calibration. La calibration de la linéarité consistera à faire varier la concentration en entrée du LOAC et de l'instrument de comparaison et d'enregistrer la réponse des deux instruments. La variation de la concentration s'effectue par l'unité de dilution, tandis que l'unité de sélection permettra de tester la linéarité des différentes gammes de tailles LOAC. La limite de discrimination minimale peut être établie pour chaque gamme de taille. La répétabilité ainsi que la reproductibilité inter-instrument peuvent également être estimées pour différentes concentrations et différentes natures d'aérosols.

#### b. Génération

Générer un aérosol stratosphérique nécessite de sélectionner avant tout une nature physico-chimique de particule souhaitée ainsi que les caractéristiques du gaz porteur. Dans la stratosphère, nous trouvons 3 grandes classes de particules : les sulfates, les suies ou particules carbonées (carbone suie, carbone élémentaire et carbone organique), et les particules cométaires et météoritiques. A ces 3 classes, il serait intéressant d'ajouter les mélanges possibles, inclusions, vieillissements, réactions hétérogènes. Analyser des échantillons purs dans un premier temps est déjà un défi en soi. Les pressions du gaz porteur varient entre quelques hPa et quelques centaines de hPa, tandis que les températures sont comprises entre  $-80^{\circ}\text{C}$  et  $0^{\circ}\text{C}$ .

Des chambres de simulation d'atmosphères stratosphériques dédiées aux aérosols sont à notre disposition. La chambre AIDA (*Aerosols Interaction and Dynamics in the Atmosphere*) (Mohler et al., 2001) à Karlsruhe Allemagne, reproduit des conditions d'expérimentations afin d'étudier la formation des nuages stratosphériques polaires (PSC) responsables de la destruction de l'ozone dans le vortex polaire. Cette chambre permet notamment de produire différentes distributions en tailles des particules sulfatées pour différentes concentrations de vapeur d'eau ainsi que des suies afin d'étudier la nucléation hétérogène des nuages glacés. La chambre CESAM (Chambre d'Expérimentale de Simulation Atmosphérique Multiphasique) (Wang et al., 2011) au LISA (Laboratoire Inter-universitaire des Systèmes Atmosphériques, Créteil) permet de produire des aérosols organiques secondaires (Denjean et al., 2015) que l'on retrouve en basse stratosphère. Il est également possible de produire des aérosols sulfatés et différents mélanges complexes. Quant aux particules météoritiques ou smoke particles, la chambre DAL (*Dust accelerator Laboratory*) au LASP/IMPACT (*Laboratory for Atmospheric and Space Physics / Institute for Modeling Plasma, Atmospheres and Cosmic Dust*, Boulder) permet de produire des analogues d'entrées météoritiques accélérés à des vitesses approchant  $100 \text{ km.s}^{-1}$ . Certaines de ces chambres fonctionnent à relative basse pression et basse température, représentatives de conditions stratosphériques. Il est d'ores et déjà prévu d'interfacer le LOAC avec la chambre CESAM ainsi que de positionner directement un LOAC dans celle-ci (communication personnelle, J.-F. Doussin, UPEC) permettant de placer le LOAC à basse pression et basse température en échantillonnant des concentrations de particules possédant des natures optiques variées.

Des générateurs d'aérosols existent dans le commerce. Les nébuliseurs et les atomiseurs permettent de produire des gouttelettes en suspension du liquide souhaité. Le DEHS (Di-Ethyl-Hexil-Sebacat) ou le sulfate d'ammonium sont utilisés par la communauté stratosphérique (Kovilakam et Deshler, 2015) car les propriétés optiques sont proches de l'acide sulfurique (respectivement d'indice de réfraction réel 1,45 et 1,54 vers 550 nm). Le mini CAST par exemple (Durdina et al., 2016) permet de générer des suies plus ou moins élémentaires. Des tests avec ce genre de générateurs ont permis de montrer que la typologie LOAC V1.2 est sensible à différents degré d'oxydation des particules générées.

Tester la réponse du LOAC à différents types d'aérosols permet également de produire des indices de typologie, avec des particules représentatives de la composition des aérosols stratosphériques dans des conditions microphysiques maîtrisées. Des tests en laboratoire à pressions et températures ambiantes ont montré qu'il est possible de produire une typologie d'aérosols formés de gouttelettes d'acide sulfurique.

c. Dilution

Différents types de dilutions peuvent être envisagés. La plus simple est certainement le mélange de l'aérosol à échantillonner avec un gaz ne contenant pas de particule. Cependant, le mélange de gaz à différentes températures et différentes pressions peut générer des biais sur la microphysique des particules extraites de la source.

Dans le cas où il serait envisagé de produire un aérosol à basse pression et basse température, la dilution par filtration du type du dilueur commercial TSI 3302A (Figure 6.2) pourrait être une meilleure solution afin de ne pas injecter un gaz supplémentaire qui pourrait produire une transformation non souhaitée de l'aérosol. Une limitation au niveau du type de filtre utilisé pourrait apparaître. Les filtres sont caractérisés par des efficacités de collections différentes suivant les tailles de particules. L'intégrité des filtres peut également être altérée par la nature chimique des particules, notamment l'acide sulfurique. Des méthodes de filtration inertielle comme les cyclones ou les impacteurs virtuels permettent de sélectionner un certain type de particules, ou aucune ce qui permet la filtration. Typiquement, un analyseur de mobilité paramétré pour sélectionner des tailles trop grandes ou trop petites pour la distribution générée, effectue de fait une filtration.

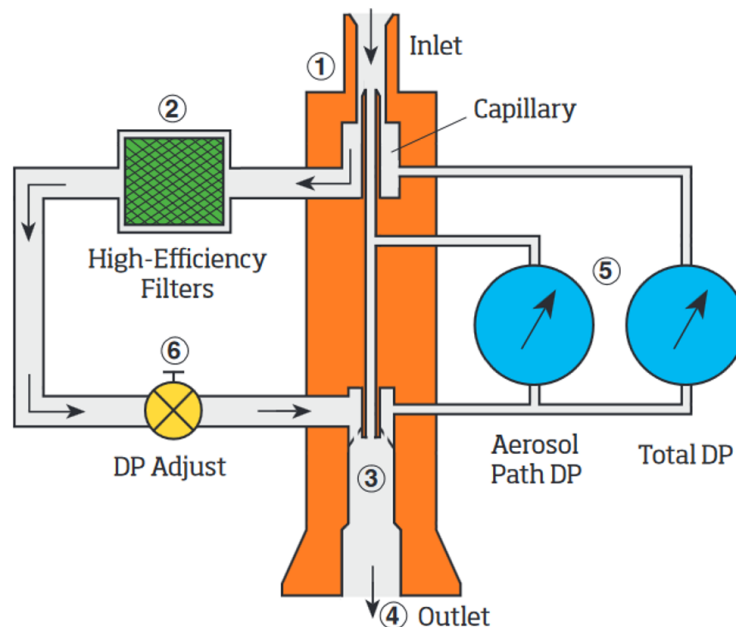


Figure 6.2 : Schéma de principe du dilueur TSI 3302A. 1 entrée, 2 filtre haute efficacité, 3 mélange air filtré et aérosol à diluer, 4 sortie, 5 mesure de pression, 6 régulation de la dilution ([http://www.tsi.com/uploadedFiles/\\_Site\\_Root/Products/Literature/Spec\\_Sheets/3302A\\_Aerosol\\_Diluter\\_A4\\_5001470\\_WEB.pdf](http://www.tsi.com/uploadedFiles/_Site_Root/Products/Literature/Spec_Sheets/3302A_Aerosol_Diluter_A4_5001470_WEB.pdf))

## d. Sélection

La sélection en taille la plus couramment utilisée est produite par un DMA (*Differential Mobility Analyser*) qui sélectionne une partie de la distribution en taille d'un aérosol donné selon sa mobilité dans un champ électrique. Utiliser ce genre de séparation conditionnera la calibration du LOAC en diamètre de mobilité électrique. Il est possible d'utiliser d'autres types de séparation par d'autres méthodes. Des méthodes inertielles permettront une calibration selon le diamètre aérodynamique (Hillemann et al., 2015; Tavakoli et Olfert, 2013).

## e. Détection

La détection la plus simple consiste à utiliser un CPC qui dénumbrera toutes les particules indépendamment des tailles de particules préalablement sélectionnées par l'unité de sélection. Utiliser un autre compteur stratosphérique comme celui de l'équipe de T. Deshler (Kovilakam et Deshler, 2015) ou de R. Gao (Gao et al., 2016) permettrait une inter-comparaison en laboratoire nécessaire pour interpréter les différences des mesures en vols (aucune inter-comparaison en laboratoire ou en vol n'a été effectuée avec le POPs de l'équipe de R. Gao).

La caractérisation des réponses comparées de la concentration totale mesurée par le détecteur et par le LOAC, étant données une concentration et une nature de particule, constitue l'étape de calibration.

Des techniques analytiques du type de la chromatographie ou de la spectrométrie de masse permettraient de produire une mesure de la composition chimique des particules échantillonnées en parallèle et permettre une meilleure compréhension des processus optiques.

### 6.2.2 Stabilité

La stabilité est définie comme la propriété d'un dispositif de mesure à conserver ses propriétés métrologiques constantes au cours du temps (BIPM, 2012). La stabilité des LOAC est jugée acceptable jusqu'à 3 vols sous ballons météorologiques. Cette stabilité est pour le moment uniquement établie sur le bruit des photodiodes, étant considérées comme les composants dont les caractéristiques s'altèrent le plus rapidement et qui modifient le plus la stabilité des LOAC. La dégradation de la stabilité liée aux photodiodes provient principalement des vibrations, une photodiode ayant effectué un atterrissage non-contrôlé peut voir sa stabilité altérée. Depuis août 2016, l'organisation de la campagne Voltaire-LOAC a été modifiée pour décontaminer les LOAC avant chaque vol et mesurer la moyenne et la dispersion des concentrations résiduelles. La limite de détection étant propre à chaque instrument, celle-ci sera ensuite utilisée dans l'analyse des vols à venir et permettra de limiter l'incertitude liée à l'utilisation d'une concentration résiduelle moyenne.

La stabilité est également affectée par le vieillissement des composants électroniques ainsi que de la pompe. Une façon de se préserver d'un vieillissement prématuré de l'électronique serait de conserver les LOAC dans des enveloppes antistatiques hermétiques (ESD), cela prévient des décharges électrostatiques lors de sa manipulation et permet de prolonger sa décontamination. Les nacelles en polystyrène ne sont pas particulièrement indiquées pour limiter les décharges électrostatiques. Le débit de pompe est également affecté par le vieillissement et diminue avec le temps à mesure que les pales du rotor (pompe à palettes) s'érodent sur le stator. La diminution du débit ainsi que la production de particules ont été constatées. L'utilisation de pompes de différents débits n'affecte pas la mesure car le débit est mesuré avant chaque vol. Le post-traitement tient compte de ce débit.

La contamination peut également se voir comme une source de d'altération de la stabilité. Certains profils LOAC ont dû être partiellement ou totalement rejetés à cause de suspicions de contamination par la présence d'objet dans la cellule de détection. Ces objets peuvent être présents avant le vol dans le cas où l'instrument n'est pas décontaminé. Il est également envisagé que la contamination survienne pendant le vol par le dépôt d'une particule au niveau de la cellule de détection. Si la particule permet la diffusion du faisceau, il est envisagée qu'elle produise des réflexions qui augmentent la lumière parasite. Cette lumière parasite sera retirée par le système si elle est relativement constante. Cependant, si la particule se déplace ou bien si l'agit



## 6 Conclusions et perspectives

d'une fibre en mouvement, celle-ci pourrait produire une lumière parasite non constante qui pourrait être interprétée comme le passage de particules dans le faisceau. Compte tenu de la dimension d'une fibre de diamètre de l'ordre de quelques microns à quelques centaines de microns et d'une longueur certainement supérieure à quelques dizaines de diamètres, l'interaction d'une fibre avec le faisceau conduirait certainement à saturer les concentrations, ou rendre l'allure du profil de concentration constant avec l'altitude. Une fibre ou un autre genre de particule positionnée avant l'entrée de la cellule de détection pourrait produire des turbulences dans le flux d'entrée de la cellule de détection et modifier la capacité du LOAC à déterminer la taille des particules, par exemple si les particules ne passent plus au centre du faisceau. La collecte de fibres a notamment été mise en évidence par l'observation du corps du LOAC après un vol. Le corps du LOAC étant fait d'une matière électrostatique, il est envisagé qu'une partie des particules échantillonnées par la pompe soit projetée sur le corps et captée. La Figure 6.3 présente des clichés pris sur la surface en regard de la pompe, dans la direction de refoulement où les particules sont susceptibles d'être captées. Des particules colorées rouges, vertes et bleues ainsi que des fibres sont identifiées parmi les particules de rejet de la pompe produites par l'érosion du rotor (particules plutôt blanches). Des analyses chimiques permettront de déterminer leur composition et peut-être leur provenance.

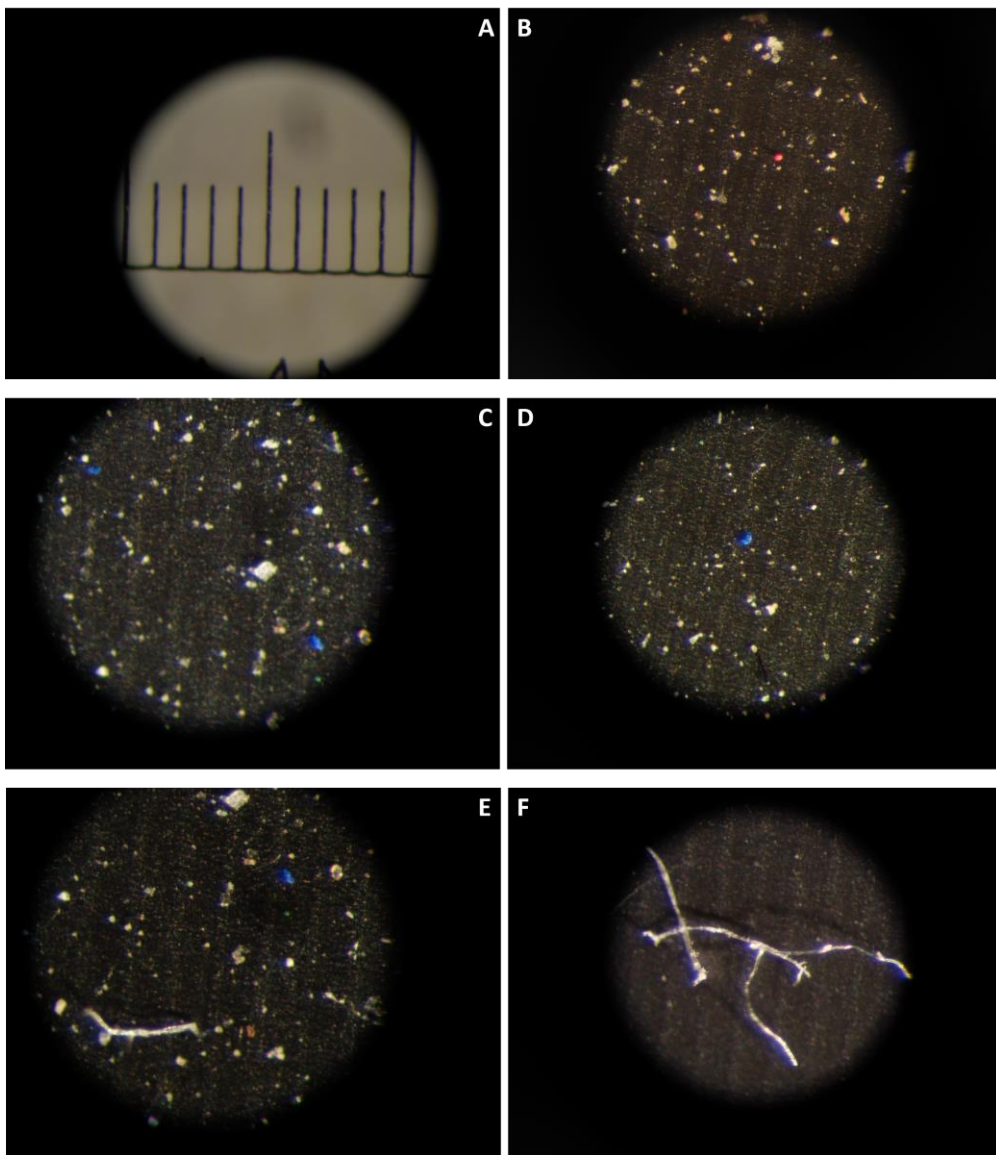


Figure 6.3 : Clichés pris au microscope de la surface du corps du LOAC 77 en regard avec la sortie de la pompe après un vol sous ballon météorologique. A) échelle de taille, le champ de vue est de l'ordre du millimètre, B), C), D), E) et F) observations de particules colorées et de fibres parmi les rejets de la pompe produits par l'érosion du rotor de la pompe (particules plutôt blanches)

L'organisation du suivi individuel des LOAC et d'un certain nombre des caractéristiques des instruments a été mise en place pendant la campagne Voltaire-LOAC. Ces informations compilées dans des cahiers de laboratoires conservés au LPC2E regroupent des informations telles que la localisation de l'instrument, le nombre de vols effectués, le numéro de série des lasers et photodiodes, le détail des maintenances, la limite de détection ou encore le débit de la pompe. Cette organisation n'est pas idéale car la campagne Voltaire-LOAC est menée en partie de manière autonome par le CNES à Aire sur l'Adour. Cette organisation a montré des limites ; par exemple il n'a pas été possible de constituer un suivi rigoureux de l'identification du numéro LOAC à chaque vol. Pourtant, savoir quel LOAC a volé est une information qui participerait à déterminer si la stabilité des LOAC est bonne ou non. Un outil commun dématérialisé du type page web permettrait un meilleur suivi des informations et une mise en commun des informations avec le CNES. Une démarche qualité, englobant tous le processus de développement de la version V2, sa calibration, les phases opérationnelles de mesure ainsi que le post-traitement algorithmique pourrait être développé avec l'ingénieur qualité du LPC2E.

### 6.2.3 Dépendance en température

L'influence des conditions de vol sur la mesure LOAC a été abordée pendant cette thèse. Cependant, la caractérisation des variables d'influences sur le fonctionnement du LOAC est loin d'être satisfaisante. L'influence d'une variation linéaire de la température sur l'approximation par interpolation du bruit de l'électronique LOAC n'est pas complètement caractérisée en vol. Les performances de la correction établie après le retraitement de novembre 2016, qui tiennent compte de ces variations de température, qui ont pour but de pallier aux effets de variations non linéaires de température ne sont pas connues ni validées. Les mesures des paramètres techniques dans les nacelles de vols sous ballons météorologiques établissent que les gradients de température dans le fond de la nacelle ainsi que sur le corps du laser LOAC sont au maximum de l'ordre de  $-20^{\circ}\text{C}\cdot\text{h}^{-1}$  sur plusieurs dizaines de minutes. La Figure 6.4 représente des tests préliminaires montrant que l'enceinte climatique du LPC2E permet de réaliser des gradients de température conformes aux gradients obtenus sous ballon. Le gradient noté 1 (zone beige) est de l'ordre de  $-20^{\circ}\text{C}\cdot\text{h}^{-1}$  pendant environ 1 h ce qui est compatible avec les données obtenues en vol. Une limite de cette méthode est introduite par la chute brutale du gradient à la fin des périodes beiges.

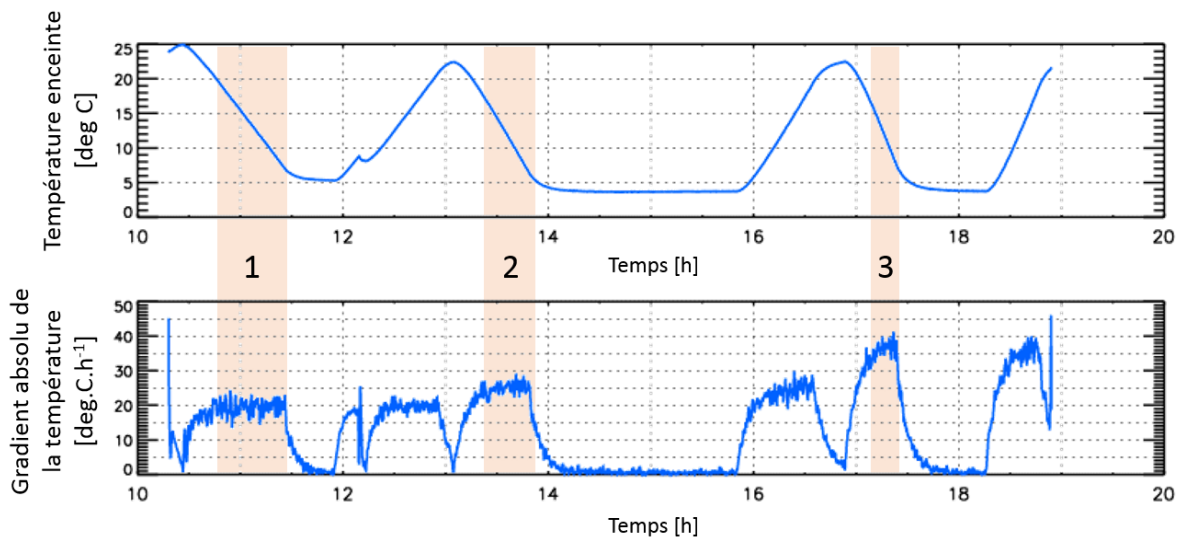


Figure 6.4 : En haut, variation de la température de l'air de l'enceinte climatique LPC2E. En bas, valeur absolue du gradient de température. Les indices 1, 2 et 3 correspondent respectivement à des consignes de gradient de température de l'enceinte de l'ordre de  $20^{\circ}\text{C}$  en 1h,  $20^{\circ}$  en 45 minutes et  $20^{\circ}$  en 30 minutes. Les zones beiges représentent les périodes pendant lesquelles la variation de température dans l'enceinte est représentative d'un vol sous ballon météorologique à l'intérieur de la nacelle LOAC

Soumettre un LOAC dans cette étuve à des gradients de cet ordre permettrait de produire des courbes de correction pour établir dans quelle mesure l'interpolation linéaire du bruit influence la mesure. Il faut cependant résoudre la question de l'absence de particules dans la cellule de détection. Remplir la cellule de détection du LOAC d'un gaz sans particule est possible mais n'est pas représentatif d'une mesure car suppose qu'il n'y ait pas d'écoulement dans l'instrument, et utiliser une pompe LOAC dans l'enceinte n'est pas satisfaisant puisque celle-ci produit des particules. De plus, l'absence de la pompe sur l'impédance du LOAC n'est pas connue mais est suspectée pouvoir se révéler non-négligeable connaissant les problèmes liés à la compatibilité électromagnétique du LOAC. L'utilisation d'un filtre peut être acceptable s'il n'est pas envisagé de produire de température négative qui risquerait de dégrader le dispositif de filtration.

Une autre incertitude liée à la température n'a pas été qualifiée lors de la calibration du LOAC V1.2 et pourrait avoir une influence non-négligeable sur la détermination de la concentration par gamme de taille. Les opérations de calibration ont été produites à température ambiante avec des billes de latex et de verres ainsi que des grains irréguliers. Utiliser ces calibrations à différentes températures suppose que la forme de la dispersion du bruit des cartes photodiodes est constante. Si la variation de la moyenne du bruit est prise en compte par la procédure d'auto-calibration, l'allure de la gaussienne de bruit (facteur de forme) n'est cependant pas quantifiée. La forme de la distribution du bruit modifierait l'efficacité de détection et le rapport signal sur bruit impliqué dans la détection statistique.

#### 6.2.4 Influence sur le prélèvement

Les conditions subsocinétiques du prélèvement LOAC (Renard et al., 2016a) conduisent théoriquement à surestimer les concentrations de particules de grandes inerties. Cet effet est produit par la différence à l'unité du rapport entre la vitesse relative de l'écoulement produit par l'ascension du ballon et la vitesse de l'air échantillonné au niveau de l'orifice de prélèvement. Un ballon s'élevant plus rapidement conduit à produire un renforcement de la surestimation des particules d'inerties importantes. Une étude préliminaire de la dépendance de la concentration mesurée par LOAC, normalisée par la tendance médiane de la concentration mesurée lors du vol considéré, ne montre pas un effet flagrant. L'analyse de la dépendance des concentrations cumulées normalisées par la médiane des concentrations cumulées à partir de 200 nm (Figure 6.5 figure de gauche) ne montre pas de dépendance, le nuage de points est plutôt circulaire. Cette situation est normale car les concentrations cumulées à partir de 200 nm sont largement dominées par les particules trop petites ne subissant pas l'effet de l'isocinétisme. En revanche, la concentration des particules, de diamètre supérieur à 4  $\mu\text{m}$  qui sont influencées par les conditions d'isocinétisme, ne présentent pas non plus de dépendance selon la vitesse ascensionnelle du ballon (Figure 6.5 figure de droite).

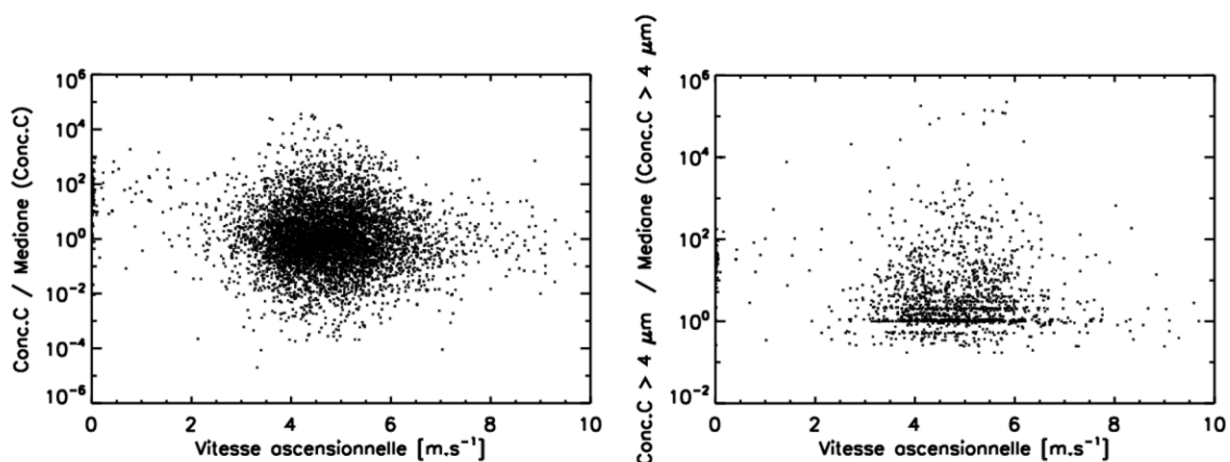


Figure 6.5 : Concentration cumulée normalisée à partir de 200 nm (à gauche) et à partir de 4  $\mu\text{m}$  en fonction de la vitesse ascensionnelle du ballon pour les 95 vols de la période mai 2013 à août 2015 sur toute la colonne échantillonnée

La vitesse ascensionnelle des ballons est calculée ici avec la position GPS des nacelles. Il est possible que la position GPS, précise à quelques mètres près, soit trop bruitée pour faire sortir une tendance. A moins que la dispersion des mesures soit plus importante que l'effet des conditions non isocinétiques. Une analyse à mener par gamme d'altitude et pour des altitudes où la concentration vraie est très supérieure à la concentration résiduelle des instruments révélerait peut-être un effet.

La question du prélèvement est complexe sous ballon météorologique. Dans cette représentation, la rotation de la nacelle est ignorée. La littérature sur le prélèvement isocinétique ne semble pas prendre en compte la possibilité que le prélèvement soit en rotation par rapport à l'écoulement d'air à notre connaissance. Le prélèvement pourrait être affecté par ce mouvement de giration d'une quantité non estimée et probablement difficile à estimer (communication personnelle, F. Gensdarmes IRSN). Cet effet de giration est également suspecté de diminuer l'efficacité de transmission entre l'orifice de prélèvement et la cellule de détection par inertie. Les particules d'inertie importante seraient projetées contre les parois internes du tube de prélèvement. Il en résulterait une sous-estimation des particules de grande inertie ou bien une mauvaise détermination de la présence en fonction de l'altitude si la particule est impactée puis remise en suspension après un temps.

A partir d'août 2016, les tubes de prélèvement ont été raccourcis afin d'optimiser la répétabilité de l'angle de prélèvement par rapport à la direction de l'écoulement. Cela augmente l'efficacité de captage et réduit l'incertitude liée à l'indétermination de l'angle de prélèvement.

### 6.2.5 Influence du rayonnement cosmique

L'influence du rayonnement cosmique sur le LOAC est une cause importante de limitation du fonctionnement du LOAC en stratosphère. Les rapides augmentations de concentration sur les premières gammes de taille, sursauts décrit au chapitre 4.1.2.b, ne sont pas encore strictement attribuées aux rayonnements cosmiques. Pour s'assurer de l'effet des différentes particules énergétiques présentes en atmosphère libre sur le LOAC, des tests en laboratoire permettraient de montrer si la réponse à des sources de rayonnements ionisants produisent les mêmes effets que ceux observés en vol. Disposer d'une source maîtrisée de rayonnement en laboratoire permettrait de réaliser différents tests à différents points sur les cartes LOAC afin de déterminer quelles sont les voies d'interactions avec le rayonnement cosmique. Une meilleure compréhension de l'effet du rayonnement cosmique permettrait un retraitement des données LOAC V1.2 et d'adapter le choix des composants électroniques pour le LOAC V2.

Réaliser un vol LOAC en l'associant avec une mesure des rayonnements cosmiques permettrait de déterminer si les sursauts détectés sont effectivement causés par l'interaction de ces hautes énergies avec notre système. Cette expérimentation est prévue en associant un compteur Geiger à la nacelle LOAC.

## 6.3 Perspectives statistiques

Une approche statistique des données LOAC a été menée avec Thierry Dudok de Wit, professeur au LPC2E. Une approche statistique permet de considérer notre jeu de données sous un angle différent. L'apport d'une démarche mathématique sur les données expérimentales peut permettre de révéler des corrélations ou des tendances insoupçonnées. L'idée générale est de réduire les degrés de liberté (ou variables d'influence en physique) de notre échantillon et faire apparaître des structures suivant le temps, l'altitude ou l'allure des granulométries. Les méthodes de regroupement (*Clustering* en anglais) sont des métriques de la similarité. Cette approche est possible compte tenu du nombre relativement important de vols LOAC dans des conditions similaires (campagnes Voltaire-LOAC et ChArMEx).

Les principales difficultés résident dans la pondération des données d'une part et dans la gestion des non-détections (Helsel, 2010) d'autre part. Il est souvent nécessaire de normaliser les données, en les centrant (soustraire la moyenne) ou les réduisant (diviser par l'écart type) ou en les normalisant par une tendance moyenne. Il est parfois nécessaire de considérer les logarithmes des données plutôt que les valeurs si les distributions des grandeurs ne sont pas gaussiennes. L'utilisation des logarithmes des données implique que les valeurs nulles ne peuvent pas être considérées, bien qu'elles puissent avoir un sens physique. Ces non-détections doivent être considérées avec prudence. Une approche mathématique souhaitera estimer les

grandeurs sous la limite de détection instrumentale en estimant qu'une extrapolation peut être acceptable selon certaines hypothèses. Des algorithmes tels que l'espérance-maximisation (*Expectation-maximization* en anglais) sont des méthodes permettant par exemple d'extrapoler la distribution des concentrations des grandes gammes de taille lorsque la mesure est proche de la limite de discrimination minimale et cela par rapport à la tendance générale de l'échantillon. Cependant, il est nécessaire de considérer qu'il soit possible qu'il n'y ait pas de particules de grand diamètre dans certaines situations pour des raisons de physico-chimie de l'atmosphère. Il est donc nécessaire d'instaurer un dialogue avec l'équipe de mathématiciens et de physiciens pour contraindre les méthodes applicables et les hypothèses à mettre en œuvre.

Cette démarche exploratoire mathématique (*Data mining* en anglais) a été entamée pendant cette thèse et montre des résultats encourageants sur les données LOAC. Principalement 3 méthodes ont été appliquées : la décomposition par les k-moyennes, la décomposition en valeurs singulières et la corrélation des données LOAC entre elles suivant l'altitude. Nous mettons en perspectives seulement les résultats des méthodes des k-moyennes. Les autres résultats étant plus complexes à interpréter.

- Résultats obtenus par décomposition selon les k-moyennes

La méthode des k-moyennes (*k-means* en anglais) réalise une décomposition des données par optimisation. La méthode consiste à classer un ensemble de valeurs suivant un nombre donné de clusters (ou groupes de valeurs selon leur distance entre elles) répartis au sein d'un espace vectoriel donné.

Dans notre cas, les distributions des logarithmes des concentrations par gamme de taille LOAC sont placées dans un espace vectoriel de 19 dimensions où chaque dimension représente une gamme de taille LOAC. Nous étudions l'organisation de leur dispersion. La méthode déduit un certain nombre de clusters par optimisation de la distance entre les données. Le cluster est donc une granulométrie ayant une certaine forme suivant les gammes de taille et une concentration donnée comme représentative d'un ensemble de données. La Figure 6.6, colonne de gauche, représente 4 clusters déterminés en fonction du logarithme des concentrations décrivant les jeux de données des 73 vols LOAC de la période mai 2013 à décembre 2015. Ces clusters représentent les 4 groupes de données majoritaires. Cette représentation n'est pas normalisée par la gamme de taille (concentrations exprimées en  $\text{cm}^{-3}$  et non en  $\text{dN}/\text{dLog(D)}$ ), de plus toutes les valeurs nulles sont exclues du jeu de données. Leur répartition suivant l'altitude est donnée par Figure 6.6 colonne de droite et exprimée en fréquence d'apparition par km normalisée par le nombre total de cas identifiés.

L'interprétation de la forme des distributions en tailles des clusters associées à leur apparition en altitude permet de produire un certain nombre d'hypothèses. Par exemple le cluster noté 1 possède une allure caractéristique d'un nuage ou d'un brouillard par la présence d'un mode vers quelques dizaines de microns (Hammer et al., 2014; Morwal et al., 2012; Warner, 1969). L'apparition de ce cluster est strictement contenue en troposphère (Figure 6.6 colonne de droite). La méthode k-moyenne permet donc d'identifier les nuages dans le jeu de données LOAC. Cela n'est pas particulièrement utile puisque la typologie LOAC permet d'identifier les nuages sans ambiguïté grâce à la typologie. Cependant, cette méthode mathématique indépendante de l'interprétation physique démontre qu'une identification par famille d'aérosols fonctionne pour un cas relativement simple.

Les clusters de distribution en taille notés 2, 3 et 4 sont plus difficilement identifiables car l'allure des granulométries respectives est relativement similaire à la première.

Le cluster 2 possède une signature d'un aérosol plutôt troposphérique selon la fréquence d'apparition en altitude. La présence d'un mode vers  $2 \mu\text{m}$  sur la distribution en taille est cohérente avec l'hypothèse d'un aérosol primaire troposphérique confiné principalement dans la couche de mélange troposphérique. La concentration cumulée (somme des concentrations selon la gamme de taille de  $0,2$  à  $100 \mu\text{m}$ ) est élevée et proche de  $100 \text{part.cm}^{-3}$ . Ce cluster serait plutôt l'identification d'un aérosol représentatif de la couche de mélange et de la troposphère libre, hypothétiquement lié aux poussières désertiques. Sa présence est identifiée jusqu'en basse stratosphère. Un couplage avec la typologie ou avec une analyse des vols permettrait peut-être d'identifier des cas d'intrusion de masses d'air troposphériques en stratosphère, cette hypothèse est hautement spéculative mais pourrait faire l'exemple de cas d'étude intéressants, la méthode des k-moyennes permettrait d'identifier les cas à étudier.

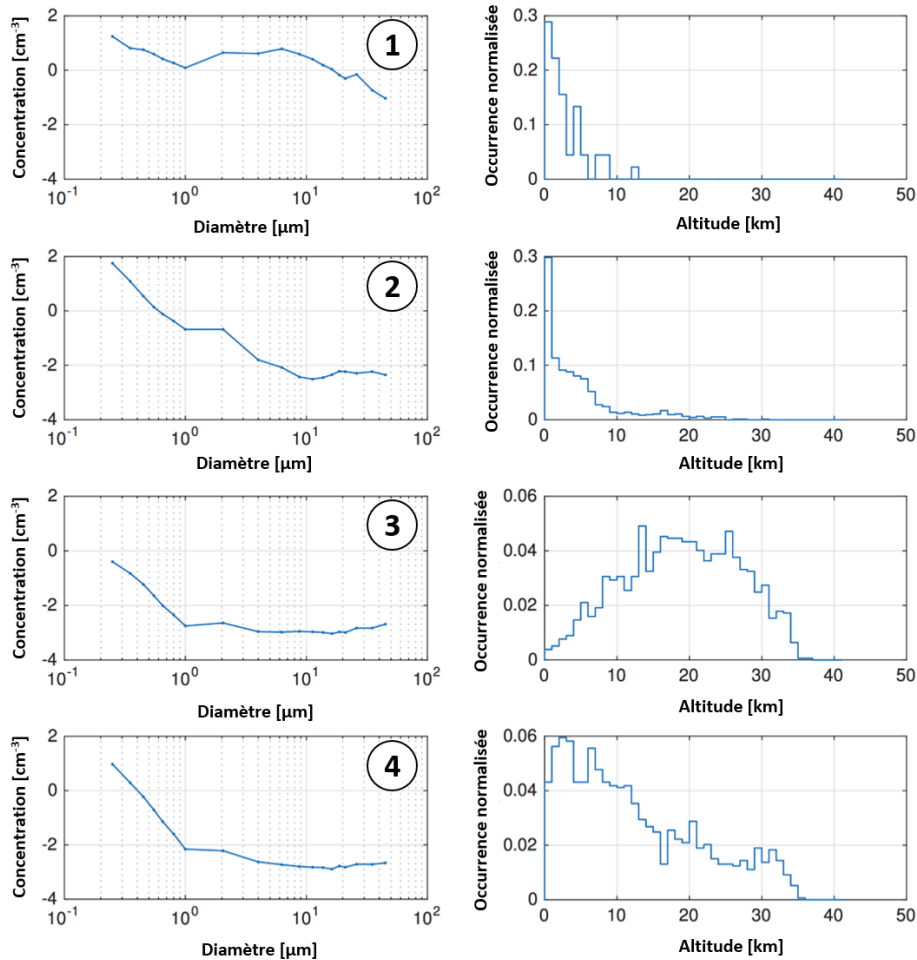


Figure 6.6 : Résultat d'une analyse par k-moyenne des 73 vols LOAC pour la période mai 2013 à décembre 2016. Les groupes de granulométrie sont représentés en colonne sur la gauche, tandis que leur fréquence d'apparition normalisée suivant l'altitude est représentée en colonne sur la droite

Les clusters 3 et 4 apparaissent en stratosphère, contrairement aux deux autres clusters. La forme de leur distribution en concentration suivant les gammes de taille est relativement similaire (Figure 6.6, colonne de gauche). La concentration cumulée du cluster 3 est proche  $10^{-1}$  part.cm<sup>-3</sup> et celle du cluster 4 de l'ordre de quelques  $10^1$  part.cm<sup>-3</sup>. La concentration cumulée du cluster 3 est de l'ordre de la limite de détection en concentration déterminée en laboratoire. En faisant l'hypothèse que la méthode des k-moyenne ait attribué un cluster aux situations où la limite inférieure en concentration est atteinte (et donc que la concentration vraie est plus faible), nous pouvons interpréter le profil de distribution verticale d'apparition du cluster 3 comme suivant : le cluster 3 n'apparaît que peu en troposphère où les concentrations sont relativement fortes, puis apparaît le plus souvent en basse stratosphère, puis décroît en moyenne stratosphère. La décroissance de l'apparition du cluster 3 en moyenne stratosphère peut s'expliquer par l'altitude moyenne d'éclatement des ballons ( $30,5 \pm 4,2$ ). 95 % des ballons ont atteint 22 km (altitude d'éclatement moyenne moins  $2\sigma$ ). Déconvoluer du nombre de ballons ayant atteint des altitudes plus élevées permettrait peut-être de voir une fréquence constante avec l'altitude du cluster 3 partir de 20 km environ. L'identification des vols ne contenant que la limite de détection à une certaine altitude pourrait être faite par la méthode des k-moyennes, les vols ne seraient pas considérés et seuls les profils contenant du signal seraient conservés. Cela revient à produire une méthode de filtrage par classe de granulométrie.

Le cluster 4 reste énigmatique. Nous ne lui attribuons pas de source puisqu'il est présent en troposphère ainsi qu'en stratosphère. Sa concentration cumulée est forte pour la stratosphère (environ  $10^1$  cm<sup>-3</sup>) avec un

renforcement vers 30 km. Ce cluster ne semble pas être la signature de l'interaction avec le rayonnement cosmique puisque sa présence est maximum au sol.

Au-delà de l'analyse des clusters un par un, cette méthode indique qu'il est possible de déterminer plusieurs types de distributions en taille. Selon la méthode des k-moyennes, notre jeu de données est donc une combinaison de différentes distributions en taille jusqu'en stratosphère moyenne. Intégrer une dimension supplémentaire dans l'analyse des k-moyennes, telle que la typologie ou plus simplement la voie à 60° (la seconde voie du LOAC) permettrait certainement de circonscrire de nouveaux clusters ou de préciser la caractérisation de ceux déjà déterminés.

Cette analyse par les k-moyennes est biaisée par deux hypothèses liées à la méthode. La première hypothèse est liée à la méthode qui associe préférentiellement des groupes de concentration lorsque la distribution en taille est complète, c'est-à-dire quand la concentration est non-nulle sur toutes les gammes de taille. Cela provient du fait que nous considérons ici les logarithmes des concentrations. Considérer les racines carrées des concentrations permettrait de réduire l'amplitude des concentrations liées à la distribution log-normale des concentrations par gamme de taille tout en conservant les valeurs nulles. Il serait intéressant de proposer des clusters ne contenant qu'une partie de la granulométrie. Les distributions contenant des concentrations nulles pour les grandes gammes de taille sont prises en compte dans cette étude mais ne bénéficient pas de cluster en particulier.

La seconde hypothèse postule qu'il est possible de partitionner le jeu de données en un nombre fini de clusters. Cela suppose que le jeu de données est composé d'un nombre fini de distributions en tailles de concentrations fixes. Cela est incompatible avec l'idée qu'une distribution en taille puisse être présente à différentes concentrations. Une approche statistique sur la forme de la distribution seulement, sans tenir compte du niveau de concentration a donc été appliquée à partir d'une méthode de décomposition en valeurs singulières (SVD). Nous ne présentons pas les résultats pour ne pas surcharger les perspectives mais cette méthode se révèle prometteuse.

### 6.4 Perspectives volcaniques

Les deux exemples de lâchers de ballons météorologiques à travers des panaches volcaniques présentés dans ces études démontrent que la technique LOAC est adaptée à ce genre d'expérimentation. Il est possible de réaliser des profils dans des lieux difficiles d'accès pour caractériser la structure des panaches jeunes, notamment leur altitude, ce qui est très utile pour les équipes travaillant sur la mesure de l'altitude du panache à distance (Carboni et al., 2016; Scollo et al., 2014). La comparaison des rayons effectifs, calculés avec les données LOAC, avec la quantité de soufre émise lors de l'éruption du Calbuco est cohérente en stratosphère (Arfeuille et al., 2014). La communauté SPARC (*Stratosphere-Troposphere Process and their Role in Climat Project*) SSiRC (*Stratospheric Sulfur and its Role in Climate*) travaillant sur le soufre en stratosphère notamment injecté lors d'éruptions majeures insiste sur le fait qu'il est nécessaire de développer des outils de mesure in situ capable de caractériser le panache stratosphérique de quelques jours à quelques semaines après son injection. Le LOAC est capable de répondre à cette demande. Plusieurs LOAC V1.2 sont depuis une année en attente d'alerte en Islande, à l'île de la Réunion et en France métropolitaine. Le matériel de réception est à disposition et les personnes en charge sur site sont formées à l'utilisation du LOAC sous ballons météorologiques. Les différentes campagnes de mesure à l'étranger ont démontré qu'il est possible de se rendre sur un lieu de lâcher à l'étranger depuis la France très rapidement en voyageant avec l'instrumentation de vol et de réception si besoin. La réponse à un lâcher de ballon après une éruption est principalement limitée par notre capacité à être informés de l'éruption ainsi que par la préparation administrative de la mission.

Multiplier les lâchers de ballons au cours du temps après qu'un panache volcanique ait atteint la stratosphère permettrait de décrire la microphysique et l'évolution des particules soufrées en stratosphère. Contraindre ainsi les modèles en fournissant les concentrations et les distributions en taille des particules soufrées permet de mieux déterminer l'impact climatique des volcans. L'utilisation combinée de capteurs électrochimiques tels que ceux utilisés par Roberts et al. (2012) en troposphère, permettrait d'étudier le soufre gazeux combiné à la mesure des aérosols soufrés. Des tests sur la faisabilité de l'utilisation de ces capteurs électrochimiques en stratosphère sous ballons météorologiques sont en cours de réalisation.

## **6.5 Perspectives sur le déploiement sous ballon météorologique**

### **6.5.1 Feux de biomasse**

Les feux de forêt émettent une quantité importante de gaz précurseurs et aérosols primaires, ce sont des contributeurs régionaux d'envergure en troposphère. Les importants feux de forêts sont accompagnés d'une dynamique de pyroconvection permettant d'injecter des particules en stratosphère (Cammass et al., 2009 ; Damoah et al., 2006 ; de Laat et al., 2012 ; Fromm et al., 2006, 2010 ; Fromm et Servranckx, 2003 ; Gonzi et Palmer, 2010 ; Hudson et al., 2004 ; Immler et al., 2005 ; Jost et al., 2004 ; Livesey et al., 2004). Les feux de forêt en Australie sont particulièrement dévastateurs, « Black Saturday Bushfires » sont tristement célèbres pour leur envergure.

Un projet LEFE porté par Nelson Bègue, maître de conférences au LACy (Laboratoire des Cyclones à Saint-Denis de la Réunion) propose la réalisation de plusieurs radiosondages LOAC en 2017. Il est nécessaire pour cela de coordonner différentes équipes travaillant sur les prévisions de trajectoire, la détection de feux de forêt et le lancement de ballon. L'objectif est entre autre de caractériser l'évolution microphysique des particules issues des feux de forêt afin de mieux connaître leurs impacts radiatifs.

### **6.5.2 Volcans troposphériques**

La réponse rapide du déploiement de LOAC, adaptée aux éruptions perturbant la stratosphère, est envisagée être appropriée aux éruptions telles que celle du volcan Islandais Eyjafjöll en 2010 qui paralysa le trafic aérien en troposphère. Une ou plusieurs mesures LOAC permettraient probablement aux décideurs de statuer sur les risques de reprendre le trafic aérien et quantifier ainsi au mieux l'influence des volcans sur l'économie des transports aériens.

### **6.5.3 Accidents industriels**

Il est envisageable que le LOAC soit également adapté aux accidents des unités de production d'énergie nucléaire ou tous sites SEVESO présentant un risque de production accidentelle d'aérosols.



## 7 Annexes

N° vol	Date / emplacement / heure	Altitude max	N° vol	Date / emplacement / heure	Altitude max	N° vol	Date / emplacement / heure	Altitude max
1	30 may 2013 Aerowave Ury 11h57	25.6	33	27 augu 2014 Voltaire AsA 07h32	27.5	65	30 sept 2015 Voltaire AsA 09h23	34.2
2	17 june 2013 ChArMEX-SOP1 18h20	33.3	34	10 sept 2014 Voltaire AsA 07h03	34.6	66	30 sept 2015 Volt. Tise 09h49	23.8
3	18 june 2013 ChArMEX-SOP1 16h29	35.4	35	24 sept 2014 Voltaire AsA 06h49	27.2	67	08 oct 2015 Voltaire AsA 11h28	33.3
4	18 june 2013 ChArMEX-SOP1 21h12	21.5	36	08 oct 2014 Voltaire AsA 07h39	26.9	68	27 oct 2015 Voltaire AsA 10h17	32.7
5	19 june 2013 ChArMEX-SOP1 10h09	30.7	37	28 oct 2014 Voltaire AsA 08h35	28.2	69	12 nov 2015 Voltaire AsA 12h24	28.1
6	19 june 2013 ChArMEX-SOP1 13h41	20.5	38	05 nov 2014 Voltaire AsA 09h52	32.0	70	01 dec 2015 Voltaire AsA 10h47	29.0
7	27 june 2013 ChArMEX-SOP1 09h20	14.4	39	20 nov 2014 Voltaire AsA 08h26	29.4	71	09 dec 2015 Voltaire AsA 09h47	32.2
8	28 june 2013 ChArMEX-SOP1 05h30	36.2	40	03 dec 2014 Voltaire AsA 10h17	33.6	72	22 dec 2015 Voltaire Ury 11h48	33.4
9	29 june 2013 ChArMEX-SOP1 23h19	35.9	41	17 dec 2014 Voltaire AsA 10h57	31.7	73	22 dec 2015 Voltaire Ury 12h30	29.1
10	30 june 2013 ChArMEX-SOP1 13h55	26.8	42	12 jan 2015 Voltaire AsA 11h09	25.9	74	21 jan 2016 Voltaire AsA 09h41	15.8
11	02 july 2013 ChArMEX-SOP1 10h20	32.8	43	28 jan 2015 Voltaire AsA 11h10	30.1	75	27 jan 2016 Voltaire AsA 08h42	25.9
12	22 july 2013 ChArMEX-SOP2 16h56	24.8	44	12 fev 2015 Voltaire AsA 10h16	30.8	76	11 fev 2016 Voltaire AsA 08h13	33.4
13	27 july 2013 ChArMEX-SOP2 23h03	33.2	45	27 fev 2015 Voltaire Ury 10h44	33.7	77	18 fev 2016 Voltaire AsA 08h11	30.6
14	28 july 2013 ChArMEX-SOP2 15h24	33.1	46	04 marc 2015 Voltaire AsA 10h42	33.4	78	10 marc 2016 Voltaire Ury 10h43	34.0
15	03 augu 2013 ChArMEX-SOP2 10h56	21.7	47	11 marc 2015 Voltaire AsA 10h35	31.8	79	14 marc 2016 Voltaire Ury 11h03	32.9
16	04 augu 2013 ChArMEX-SOP2 15h25	32.2	48	25 marc 2015 Voltaire AsA 11h22	32.5	80	15 marc 2016 Voltaire AsA 08h39	31.9
17	16 dec 2013 MeteoModem U 11h06	34.0	49	07 apr 2015 Voltaire AsA 21h00	28.7	81	22 marc 2016 Voltaire AsA 11h14	28.8
18	06 fev 2014 Voltaire AsA 10h31	32.0	50	22 apr 2015 Voltaire AsA 14h39	30.7	82	07 apr 2016 Voltaire AsA 15h53	28.8
19	18 fev 2014 Voltaire AsA 13h28	29.3	51	05 may 2015 Voltaire AsA 09h59	34.4	83	14 apr 2016 Voltaire AsA 09h55	27.7
20	07 Marc 2014 Voltaire AsA 08h43	33.4	52	28 may 2015 Voltaire AsA 10h02	22.9	84	26 apr 2016 Voltaire AsA 09h09	27.5
21	20 Marc 2014 Voltaire AsA 11h25	33.1	53	04 june 2015 Voltaire AsA 12h04	22.9	85	12 may 2016 Voltaire AsA 10h19	34.1
22	04 apr 2014 Voltaire AsA 08h14	32.7	54	23 june 2015 Voltaire AsA 11h35	34.5	86	12 may 2016 Voltaire AsA 10h37	29.6
23	17 apr 2014 Voltaire AsA 08h38	32.2	55	01 July 2015 Voltaire AsA 11h57	33.3	87	24 may 2016 Voltaire AsA 10h40	27.1
24	06 may 2014 Voltaire AsA 08h20	30.3	56	16 july 2015 Voltaire AsA 09h42	27.5	88	16 june 2016 Voltaire AsA 09h09	34.3
25	04 june 2014 Voltaire Ury 15h03	30.2	57	28 july 2015 Voltaire AsA 10h02	33.6	89	23 june 2016 Voltaire AsA 09h56	31.7
26	23 june 2014 Voltaire Ury 10h00	28.1	58	12 augu 2015 Voltaire AsA 12h29	28.7	90	06 july 2016 Voltaire AsA 09h41	35.2
27	09 july 2014 Voltaire Ury 10h27	30.3	59	18 augu 2015 Voltaire AsA 09h52	34.2	91	28 july 2016 Voltaire AsA 09h24	33.4
28	24 july 2014 Voltaire Ury 10h22	36.3	60	19 augu 2015 Voltaire AsA 08h59	34.6	92	11 augu 2016 Voltaire AsA 11h38	22.7
29	05 augu 2014 Voltaire AsA 08h26	34.2	61	20 augu 2015 Voltaire AsA 09h48	32.1	93	13 augu 2016 Voltaire AsA 10h51	31.2
30	12 augu 2014 Voltaire AsA 09h30	34.3	62	27 augu 2015 Voltaire AsA 11h51	34.5	94	16 augu 2016 Voltaire AsA 11h16	36.4
31	14 augu 2014 Voltaire AsA 09h21	33.7	63	01 Sept 2015 Voltaire AsA 11h24	26.6	95	18 augu 2016 Voltaire AsA 10h11	32.9
32	16 augu 2014 Voltaire AsA 06h59	33.4	64	15 sept 2015 Voltaire AsA 09h53	29.8			

Tableau A4.1 : Liste des vols LOAC retenus pour l'étude de la variabilité des aérosols stratosphériques pour la période mai 2013 à août 2016

N° vol	Date / emplacement / heure	Altitude max	N° vol	Date / emplacement / heure	Altitude max	N° vol	Date / emplacement / heure	Altitude max
1	17 june 2013 CharMEX-SOP1 18h20	33.3	33	24 sept 2014 Voltaire AsA 07h03	34.6	65	30 sept 2015 Volt. Tise 09h49	24.8
2	18 june 2013 CharMEX-SOP1 16h29	35.4	34	24 sept 2014 Voltaire AsA 06h49	27.2	66	08 oct 2015 Voltaire AsA 11h28	33.1
3	18 june 2013 CharMEX-SOP1 21h12	21.5	35	08 oct 2014 Voltaire AsA 07h39	26.9	67	27 oct 2015 Voltaire AsA 10h17	32.7
4	19 june 2013 CharMEX-SOP1 10h09	30.5	36	28 oct 2014 Voltaire AsA 08h35	28.2	68	12 nov 2015 Voltaire AsA 12h24	28.1
5	19 june 2013 CharMEX-SOP1 13h41	20.5	37	05 nov 2014 Voltaire AsA 09h52	32.0	69	01 dec 2015 Voltaire AsA 10h47	29.0
6	27 june 2013 CharMEX-SOP1 09h20	14.4	38	20 nov 2014 Voltaire AsA 08h26	29.3	70	09 dec 2015 Voltaire AsA 09h47	32.2
7	28 june 2013 CharMEX-SOP1 05h30	36.1	39	03 dec 2014 Voltaire AsA 10h17	32.0	71	22 dec 2015 Voltaire Ury 11h48	33.4
8	29 june 2013 CharMEX-SOP1 23h19	35.9	40	17 dec 2014 Voltaire AsA 10h57	27.8	72	22 dec 2015 Voltaire Ury 12h30	29.0
9	30 june 2013 CharMEX-SOP1 13h55	26.0	41	12 jan 2015 Voltaire AsA 11h09	25.9	73	21 jan 2016 Voltaire AsA 09h41	15.8
10	02 july 2013 CharMEX-SOP1 10h20	32.3	42	28 jan 2015 Voltaire AsA 11h10	26.8	74	27 jan 2016 Voltaire AsA 08h42	25.9
11	22 july 2013 CharMEX-SOP2 16h56	24.8	43	12 fev 2015 Voltaire AsA 10h16	29.1	75	11 fev 2016 Voltaire AsA 08h13	33.4
12	27 july 2013 CharMEX-SOP2 23h03	33.5	44	27 fev 2015 Voltaire Ury 10h44	33.4	76	18 fev 2016 Voltaire AsA 08h11	30.6
13	28 july 2013 CharMEX-SOP2 15h24	32.0	45	04 marc 2015 Voltaire AsA 10h42	33.4	77	10 marc 2016 Voltaire Ury 10h43	34.0
14	03 augu 2013 CharMEX-SOP2 10h56	21.7	46	11 marc 2015 Voltaire AsA 10h35	31.8	78	14 marc 2016 Voltaire Ury 11h03	30.0
15	04 augu 2013 CharMEX-SOP2 15h25	32.2	47	25 marc 2015 Voltaire AsA 11h22	32.2	79	15 marc 2016 Voltaire AsA 08h39	31.9
16	16 dec 2013 MeteoModem U 11h06	33.6	48	07 apr 2015 Voltaire AsA 21h00	28.7	80	22 marc 2016 Voltaire AsA 11h14	26.9
17	06 fev 2014 Voltaire AsA 10h31	32.0	49	22 apr 2015 Voltaire AsA 14h39	29.5	81	07 apr 2016 Voltaire AsA 15h53	28.6
18	18 fev 2014 Voltaire AsA 13h28	29.3	50	05 may 2015 Voltaire AsA 09h59	34.0	82	14 apr 2016 Voltaire AsA 09h55	27.7
19	07 Marc 2014 Voltaire AsA 08h43	33.4	51	28 may 2015 Voltaire AsA 10h02	22.9	83	26 apr 2016 Voltaire AsA 09h09	27.5
20	20 Marc 2014 Voltaire AsA 11h25	32.3	52	04 june 2015 Voltaire AsA 12h04	22.9	84	12 may 2016 Voltaire AsA 10h19	34.0
21	04 apr 2014 Voltaire AsA 08h14	30.2	53	23 june 2015 Voltaire AsA 11h35	34.6	85	12 may 2016 Voltaire AsA 10h37	29.6
22	17 apr 2014 Voltaire AsA 08h38	31.8	54	01 July 2015 Voltaire AsA 11h57	33.4	86	24 may 2016 Voltaire AsA 10h40	26.2
23	06 may 2014 Voltaire AsA 08h20	29.8	55	16 july 2015 Voltaire AsA 09h42	27.5	87	16 june 2016 Voltaire AsA 09h09	33.3
24	04 june 2014 Voltaire Ury 15h03	28.6	56	28 july 2015 Voltaire AsA 10h02	33.1	88	23 june 2016 Voltaire AsA 09h56	31.4
25	23 june 2014 Voltaire Ury 10h00	28.1	57	12 augu 2015 Voltaire AsA 12h29	28.7	89	06 july 2016 Voltaire AsA 09h41	35.2
26	09 july 2014 Voltaire Ury 10h27	30.4	58	18 augu 2015 Voltaire AsA 09h52	34.2	90	28 july 2016 Voltaire AsA 09h24	33.4
27	24 july 2014 Voltaire Ury 10h22	36.3	59	19 augu 2015 Voltaire AsA 08h59	33.6	91	11 augu 2016 Voltaire AsA 11h38	22.7
28	05 augu 2014 Voltaire AsA 08h26	32.1	60	20 augu 2015 Voltaire AsA 09h48	30.5	92	13 augu 2016 Voltaire AsA 10h51	30.8
29	12 augu 2014 Voltaire AsA 09h30	34.3	61	27 augu 2015 Voltaire AsA 11h51	34.4	93	16 augu 2016 Voltaire AsA 11h16	36.4
30	14 augu 2014 Voltaire AsA 09h21	33.7	62	01 sept 2015 Voltaire AsA 11h24	26.6	94	18 augu 2016 Voltaire AsA 10h11	32.3
31	16 augu 2014 Voltaire AsA 06h59	32.7	63	15 sept 2015 Voltaire AsA 09h53	29.8			
32	27 augu 2014 Voltaire AsA 08h32	27.5	64	30 sept 2015 Voltaire AsA 09h23	33.5			

Tableau A4.2 : Liste des vols LOAC retenus pour l'étude de la variabilité des aérosols stratosphériques pour la période juin 2013 à août 2016 après le retraitement de novembre 2016

## Liste des Tableaux

Tableau 3.1 : Liste des gammes de taille LOAC.....	52
Tableau 3.2 : Liste des incertitudes LOAC (d'après Renard et al., 2016a) .....	55
Tableau 3.3 : Liste des incertitudes relatives calculées à partir de l'incertitude sur la détermination du seuil de détection.....	70
Tableau 3.5 : Liste des limites de détection en concentration et en extinction pour deux temps d'intégration différents .....	72
Tableau 3.4 : Liste des concentrations résiduelles et leur dispersion pour les 10 premières gammes de taille LOAC en moyenne sur 1 et 10 minutes .....	72
Tableau 3.6 : Liste des limites de discrimination minimale pour deux temps d'intégration.....	74
Tableau 4.1 : Nombre de proportion des vols où la moyenne sur 10 minutes par gammes de 3 km d'altitude (10 minutes) est supérieur à la moyenne des concentrations résiduelles et au seuil de détection	97
Tableau 4.2 : Liste des jeux de données et leurs caractéristiques utilisés pour l'inter comparaison.....	102

## Liste des Figures

Figure 1.1 : A gauche, exemple de météorographe déployé sous ballon météorologique permettant de mesurer la température, la pression et l'humidité de l'air, employé par Léon Teisserenc de Bort en 1989. A droite, la suite de satellite <i>Afterson constellation</i> appelée également <i>A-train</i> , constitué de 7 satellites se suivant embarquant environ 19 instruments dédiés à la mesure à distance des nombreux paramètres physico-chimiques de l'atmosphère terrestre.....	13
Figure 2.1 : Schématisation de la décomposition de l'atmosphère en fonction du gradient de température. ....	15
Figure 2.2 : Schématisation des particules stratosphériques, de leur transport, des flux et des principales sources (Kremser et al., 2016).....	16
Figure 2.3 : Schématisation simplifiée des différentes réactions chimiques menant à la production de l'acide sulfurique en stratosphère. La couleur des flèches grises ou noires indiquent le lieu des réactions, respectivement en troposphère ou en stratosphère. Les couleurs bleu à rouge représentent le degré d'oxydation du soufre (adapté d'après Kremser et al., 2016) .....	17
Figure 2.4 : Evolution mensuelle du contenu zonal en aérosols stratosphériques (-20°N , 20°N) de 1985 à 2012 exprimée en rapport d'extinction (figure supérieure) et en épaisseur optique des aérosols stratosphériques (figure en dessous). Données satellites combinées SAGE II, GOMOS et CALIPSO. Les éruptions notables sont indiquées par des lettres : Ne : Nevado del Ruiz, Au : Augustine, Ch : Chikurachki, Ki : Kliuchevskoi, Ke :Kelut, Pi :Pinatubo, Ce : Cerro Hudson, Sp : Spur, La : Lascar, Ra : Rabaul, Ul : Ulawun, Ru : Ruang, Re : Reventador, Ma : Manam, So Soufrière Hills, Ta : Tavorvur, Ok : Okmok, Ka : Kasatochi, Sa : Sarichev, Me : Merapi, Na : Nabro. Les éruptions tropicales sont notées en rouge. Vi* indique le feu de la forêt Victoria. (adapté d'après Kremser et al., 2016) .....	18
Figure 2.5 : Transport du panache du Tavorvur situé en Papouasie Nouvelle Guinée (-4°N ; 152°E, éruption en août 2006) alors que le panache de la Soufrière (16°N ; -61°E, éruption en mai 2006) est encore présent en stratosphère, pour 4 niveaux d'altitudes exprimés en température potentielle (Kelvin), exprimé en rapport de diffusion d'après les mesures CALIOP zonale. La tropopause est située dans la bande 360-400K, la bande 400-440K représente la basse stratosphère, les bandes 440-480K et 480-520K représentent la moyenne stratosphère. (adapté d'après Vernier 2010) .....	19
Figure 2.6 : Relation entre la masse de soufre injectée par les éruptions et le rayon effectif des particules lors du pic d'injection à 100 hPa. Les symboles représentent la saison de l'éruption (étoile : printemps, triangle : été, diamant : automne, croix : hiver), les couleurs indiquent les latitudes d'éruption (noir : tropicale, bleu : extratropical sud, vert extratropical nord) (adapté d'après Arfeuille et al. 2014) .....	20
Figure 2.7 : Distribution des concentrations de particules à 20 km selon leurs rayons et pour différentes périodes de temps après l'éruption du Pinatubo en 1991 (Jäger et Deshler, 2002) .....	20
Figure 2.8 : Bilan global du soufre atmosphérique selon Sheng et al. (2015). Les flèches pleines représentent les flux nets d'émission de surface, le transport par la tropopause, les puits et les sources physico-chimiques et les transformations microphysiques en Gg de soufre par année. Les flèches en pointillées représentent le flux dans une direction ainsi que le détail des conversions microphysiques et chimiques. Les boîtes représentent les réservoirs des composés exprimés en Gg de soufre. Les données en rouges sont issues du modèle SOCOL-ARE, les données en noires proviennent de SPARC (2006). Les données en vert proviennent du modèle GOCART (Chin et al., 2000). Les données en orange proviennent de Chin et Davis (1995). Les données en bleu représentent les mesures de SAGE II (Arfeuille et al., 2014).....	21
Figure 2.9 : Evolution temporelle des émissions de soufre cumulées par zone géographique entre 1970 et 2005 (Hofmann et al., 2009) .....	22
Figure 2.10 : Evolution temporelle de la concentration d'OCS en stratosphère et troposphère au-dessus de la station de Jungfraujoch (Suisse, 46°N ; 7°E) (adapté d'après SPARC 2006).....	22

Figure 2.11 : Observations faites par microscope électronique à balayage (MEB) de particules carbonées issues de feux de forêts africains. On perçoit la structure très complexe de ces particules organisée en chaînes d'éléments de tailles similaires (Bond et al., 2013).....	23
Figure 2.12 : Distribution zonale de la concentration du carbone élémentaire simulée. Les figures A et B représentent respectivement la distribution verticale de la concentration de black carbon exprimée en particule par cm <sup>3</sup> en fonction de la latitude pour les mois d'hiver boréal et hiver austral. Les figures C et D représente de la même façon la contribution du trafic aérien seulement. (Adapté d'après Hendricks et al., 2004).....	23
Figure 2.13 : Répartition zonale selon l'altitude du pourcentage de l'extinction due à la matière météoritique sur l'extinction stratosphérique totale (sulfate + matière météoritique). A partir de 37 kilomètres environ et aux latitudes moyennes, il est estimé que la moitié de l'extinction provient de la matière météoritique. (Neely et al., 2011).....	25
Figure 2.14 : A gauche, prélèvement réalisé en troposphère au niveau du sol, à droite prélèvement réalisé à 36,2 km d'altitude en mars 1969. Sur les deux mesures, apparaissent des particules biogéniques de type brochosome (Bigg, 2003).....	26
Figure 2.15 : Panel des particules récoltées après des événements d'entrées météoritiques (Courty et Martnez 2015) .....	26
Figure 2.16 : Schématisation de la circulation de Brewer-Dobson et du cycle des particules stratosphériques (SPARC 2006) .....	27
Figure 2.17 : Vitesses de vents zonaux moyens exprimés en m.s <sup>-1</sup> (Holton et al., 1995).....	27
Figure 2.18 : Direction des vents zonaux tropicaux (-10°N ; 10°N) représentant l'oscillation quasi biennale (QBO) ; par convention le vent provenant de l'ouest est noté positif. (Watson 2013) .....	28
Figure 2.19 : Représentation du transport méridien dans les hémisphères d'hiver et d'été (Holton 2004). Schématisation des positions du réservoir tropical, de la zone de surf, du vortex polaire et de l'hémisphère d'été. Les flèches larges et ouvertes représentent le transport à grande échelle, les flèches ondulées représentent le transport guidé par les ondes de différentes natures. Les barres grises verticales au centre représentent les barrières tropicales, la barre verticale grise à gauche représente la barrière dynamique du vortex polaire .....	29
Figure 2.20 : Simulation de la déformation de la zone de surf (zone blanche), influencée par le réservoir tropical (zone grise) et le vortex polaire (zone noire) (Polvani et al., 1995). Les chiffres indiquent le nombre de jours après l'initialisation du modèle.....	29
Figure 2.21 : Estimations du forçage radiatif en 2011 par rapport à 1950 exprimé en W.m <sup>-2</sup> pour les différents contributeurs gazeux et particulaires. Le degré de confiance associé à chaque résultat est qualifié de TE (très élevé) à F (faible) sur la colonne de droite (GIEC, 2013).....	31
Figure 2.22 : Modélisation de la puissance lumineuse surfacique de 1980 à 2020 pour différents scénarii considérant aucun aérosol stratosphérique (courbe verte turquoise), seulement les aérosols stratosphériques hors influence des éruptions majeures (courbe verte claire) et tous les aérosols stratosphériques (courbe noire). La courbe bleue représente la puissance surfacique transmise au sol déduite de mesure satellite et les courbes violettes en trait discontinu différents scénarios d'évolution (adapté d'après Solomon et al. 2011).....	32
Figure 2.23 : Représentation des réactions hétérogènes à l'interface entre une particule liquide et son gaz porteur (Brasseur et Solomon 2005).....	34
Figure 2.24 : Schématisation de la technique de diffusion lumineuse de l'atmosphère par la mesure au limbe. OSIRIS mesure la contribution de la diffusion simple de l'atmosphère ainsi que la diffusion multiple dans les couches de l'atmosphère et de la diffusion de la surface (Albédo de surface). (Adaptée à partir de Bourassa et al., 2008) .....	36
Figure 2.25 : A gauche représentation schématique des différents champs de vision (FOV) des instruments à bord d'OMPS. Nous utilisons dans cette étude l'une des trois fentes dont le volume de mesure est représenté par les 3 rectangles à l'arrière du satellite (Xu et al. 2014). A droite représentation des traces du passage d'OMPS lors de la chute du bolide Chelyabinsk (Gorkavyi et al., 2013) image NASA .....	36

Figure 2.26 : Schématisation du trajet optique des faisceaux lasers de CALIOP (figure adaptée d'après Vernier 2010).....	38
Figure 2.27 : schématisation du principe de la mesure par occultation (adapté d'après SPARC 2006) .....	39
Figure 2.28 : A gauche, photographie du SP2 et de son module d'intégration dans l'avion. A droite, schématisation de la cellule de mesure contenant le laser et les 4 photo-détecteurs (Schwarz et al., 2006) .....	41
Figure 2.29 : Schématisation du système de système de détection COBALD (Brabec 2007). Les deux LED bleue (455 nm) et rouge (870 nm) produisent un flux lumineux conique (env. 4° de demi-angle) dirigé vers le volume d'atmosphère à échantillonner. Le détecteur mesure la quantité de lumière rétrodiffusée qui est une fonction de la concentration moléculaire et particulaire .....	43
Figure 2.30 : Instrument DUSTER (De Angelis 2011). 1) support aluminium, 2) prélèvement, 3) dispositifs de pompages, 4) chambre de collection, 5) valves, 6) capteurs de pression, 7) batteries, 8) modules électroniques.....	44
Figure 2.31 : Localisation des lidars sol NDACC .....	44
Figure 2.32 : Localisation des photomètres du réseau AERONET passés et présents .....	45
Figure 2.33 : Inter-comparaison du profil vertical d'extinction par les aérosols entre 15 et 33 km d'altitude entre SAGEII et deux lidars au sol, en haut à Mauna Loa à Hawaï USA (19°N ; -155°E) et en bas à Hampton dans l'état de Virginie USA (37°N ; -76°E) lors de l'éruption du Pinatubo (adapté d'après SPARC 2006).....	46
Figure 3.1 : Représentation d'une coupe transversale d'un LOAC faisant apparaître le faisceau lumineux émis par la diode laser et diffusé par une particule vers les deux photodiodes .....	50
Figure 3.2 : Réponse de la photodiode 12° en fonction de particules de différents diamètres et de différentes natures (points rouges et verts), comparée à la solution prévue par la théorie de Mie calculée pour le champ de vue de la photodiode 12° et convoluée avec le bruit instrumental (courbe noire). La courbe discontinue bleue est un ajustement linéaire utilisée par l'instrument (adapté d'après Renard et al., 2016a) .....	51
Figure 3.3 : Evolution temporelle de la tension numérisée de la photodiode 12° lors du passage d'une particule de diamètre 5 µm d'un aérosol ambiant (adapté d'après Renard et al., 2016a) .....	51
Figure 3.4 : Grafctet des différentes phases de fonctionnement du LOAC .....	53
Figure 3.6 : Evolution de l'indice de spéciation en fonction du diamètre des particules pour 4 types d'échantillons produits en laboratoire (adapté d'après Renard et al., 2016a).....	54
Figure 3.5 : Exemples de distributions en tailles obtenues lors de campagnes de mesures. A gauche, distribution représentative de particules désertiques. Au centre, distribution représentative d'un aérosol urbain. A droite, distribution représentative d'un nuage de gouttelettes liquides (adapté d'après Renard et al., 2016a) .....	54
Figure 3.7 : Efficacité de captage en fonction du diamètre aérodynamique des particules pour 2 conditions d'angle de prélèvement (trait discontinu : prélèvement parallèle au flux d'air relatif produit par l'ascension du ballon, trait continu prélèvement avec un angle de 30° par rapport au flux d'air). L'efficacité de prélèvement est calculée pour différentes pressions et températures représentative de 5 altitudes représentées par les couleurs et pour une vitesse ascensionnelle de 5 m.s <sup>-1</sup> (adapté d'après Renard et al., 2016a) .....	56
Figure 3.8 : Représentation du résultat d'une inter-comparaison entre un DMPS, un FIDAS et un LOAC (adapté d'après Renard et al., 2016a) .....	57
Figure 3.9 : Comparaison expérimentale d'un TEOM et d'un LOAC en chambre de test LPC2E. Chaque point représente une moyenne de 24h (adapté d'après Renard et al., 2016a).....	58
Figure 3.11 : Comparaison en situation d'air extérieur (Sud de Paris) entre 4 instruments pendant la période du 3 au 13 février 2014 (adapté d'après Renard et al., 2016a) .....	59
Figure 3.10 : Evolution des PM <sub>10</sub> moyenne sur 24 h de 3 TEOM du réseau Airparif et de 2 LOAC (adapté d'après Renard et al., 2016a) .....	60
Figure 3.12 : Cinétique d'éclatement d'un ballon météorologique ayant atteint son plafond vers 35 km, la caméra est positionnée sur la nacelle en direction du ballon, le soleil est sur la droite. Le temps est indiqué en seconde par rapport à l'éclatement (Remerciements K. Foster) .....	61

Figure 3.13 : Photographie d'un lâcher de LOAC sous ballon météorologique présentant les différents éléments constitutifs de la chaîne de vol.....	62
Figure 3.14 : A gauche, photographie quelques instants avant le lâcher d'un LOAC. Au centre, récupération de la nacelle après un vol. A droite, récupération de parachute et du ballon météorologique.....	63
Figure 3.15 : Température moyenne de l'air au-dessus de la France (dans la zone 38 à 50 °N et -6 à 10 °E) pour la période 2013 à 2015 (données ERA-Interim de l'ECMWF) .....	63
Figure 3.16 : Profil de température de l'air (courbes noires) et à différents points (courbes en couleur) dans la nacelle pour deux vols LOAC, les flèches indiquent le sens de la montée du ballon. Figure de gauche, les courbes verte et bleue représentent respectivement la température du fond et du côté des faces internes de la nacelle, tandis que la courbe rouge représente la température de surface des batteries LOAC. A droite, la courbe bleue représente la température du fond de la face interne de la nacelle, la courbe orange représente la température de surface du laser LOAC.....	64
Figure 3.17 : Représentation de la puissance lumineuse en fonction de la température du corps du laser LOAC. La zone grise représente la plage de fonctionnement sous ballon météorologique. La courbe pointillée rouge représente la tendance linéaire de la dépendance la puissance en température.....	65
Figure 3.18 : Dépendance du débit volumique de la pompe LOAC à la température de l'air à basse pression. Les points gris sont les mesures de débit à 0,5 Hz et la ligne noire est la moyenne glissante sur une minute.....	66
Figure 3.19 : Représentation des résultats des tests portant sur l'influence de la pression sur le débit volumique de la pompe de vol sous ballon météorologique LOAC. A gauche variation de la pression et du débit en fonction du temps, la ligne rouge représente la moyenne glissante sur une minute. A droite débit volumique en fonction de la pression.....	67
Figure 3.20 : Flux de neutron en fonction de l'altitude selon le résultat de simulation et de mesures sous ballons (adapté d'après Zanini et al., 2003) .....	68
Figure 3.21 : Représentation de la dépendance du seuil de détection avec la température de l'électronique .....	69
Figure 3.22 : Distribution des concentrations résiduelles moyennes sur 10 minutes par gamme de taille. Les courbes noires représentent les essais effectués sur 16 sessions de mesures pour 13 LOAC différents. La courbe rouge représente la moyenne accompagnée de son incertitude déterminée comme sa dispersion à $1 \sigma$ , les pointillés rouges indiquent les cas où la dispersion est supérieure à la moyenne.....	71
Figure 3.23 : Distribution de la limite de discrimination minimale pour 2 temps d'intégration 1 minute et 10 minutes respectivement en orange et bleu et pour 1 à 3 coups. $10s^{-1}$ (dégradé de couleur) pour un débit de 2 L.min <sup>-1</sup> . La courbe discontinue rouge représente la limite de détection moyenne 10 minutes .....	73
Figure 3.24 : Distribution des limites de détection et de discrimination minimale combinées pour une intégration sur 10 minutes.....	74
Figure 3.25 : Photographie prise lors du lancement double le 22 décembre 2015 depuis Ury (France).....	75
Figure 3.26 : Distance moyenne par kilomètre entre les deux ballons à altitudes équivalentes (figure de gauche), profil vertical de température pour les deux LOAC (figure de droite) .....	76
Figure 3.27 : Comparaison des profils de concentration moyenne par gamme de taille à la résolution 1 minute.....	77
Figure 3.28 : Profils de concentrations cumulées moyennes sur 3 km (représentatif d'une moyenne sur 10 minutes environ) pour les deux LOAC, les incertitudes représentent la dispersion des concentrations sur 1 minute par gamme de 3 km. La ligne pointillée violette représente la limite de détection en concentration sur 10 minutes .....	77
Figure 3.29 : A gauche, concentration cumulée moyenne sur 3 km du LOAC B en fonction de la concentration cumulée du LOAC A, exprimé selon leur logarithme. A droite, même figure en considérant que le LOAC B s'est systématiquement recadré une demi gamme de taille sous la valeur optimale et ce pendant tout le vol. Les lignes vertes représente la régression linéaire, les	

lignes pointillées noires est la droite d'égalité 1:1 et les lignes pointillées violettes les limites de détection en concentration 10 minutes .....	78
Figure 3.30 : La nacelle de vol BSO utilisée pour produire la mesure d'inter-comparaison entre le LOAC et le Jupiter 3. A gauche, la nacelle sur son support de transport jusqu'à la zone de lancement, cette nacelle mesure approximativement 1,5 x 1 x 0,5 m pour une masse d'environ 60 kg. A droite, la même nacelle avec l'emplacement du LOAC (ellipse jaune) et du Jupiter 3 (ellipse verte).....	79
Figure 3.31 : Profils de concentration par gamme de taille en fonction de l'altitude pour le LOAC (à gauche) et le Jupiter 3 (à droite) .....	80
Figure 3.32 : Profils verticaux des concentrations cumulées pour le LOAC et le Jupiter 3 représentant respectivement les concentrations de particules possédant des diamètres supérieures à 0,2 µm et 0,15 µm. Les données LOAC sont moyennées par kilomètre .....	81
Figure 3.33 : Comparaison des distributions en taille obtenues pour le LOAC et le Jupiter 3 par gammes de 5 kilomètres (intégration sur 17 minutes environ). Les incertitudes associées en concentration sont calculées à partir de la dispersion à 1σ des concentrations dans la gamme d'altitude (cette donnée de dispersion est présentée en pointillée lorsque la dispersion est plus grande que la moyenne dans cette gamme d'altitude).....	82
Figure 4.1 : Sites de lancement LOAC pour l'étude de la variabilité des aérosols stratosphériques au-dessus de la France pour la période 2013/2016. 4 sites de lancement sont retenus : pour la campagne ChArMEx : Min pour Minorque en Espagne, IdL pour île du Levant, pour la campagne Voltaire-LOAC AsA pour Aire sur Adour et Ury pour Ury. Les couleurs représentent les trajectoires de montée des ballons météorologiques.....	85
Figure 4.2 : Fréquence des vols LOAC pour les campagnes Voltaire-LOAC et ChArMEx .....	86
Figure 4.3 : Exemples de profils verticaux de concentrations par gamme de taille mesurés par LOAC lors de la campagne Voltaire-LOAC, chaque couleur représente la concentration selon la gamme de taille. La résolution verticale est d'une minute (environ 300 m). Les perturbations et les sursauts sont repérés par les rectangles bleus et oranges respectivement.....	87
Figure 4.4 : Mêmes profils montrés en exemple que la figure précédente, avec le lissage préconisé par J.-B. Renard (voir texte).....	88
Figure 4.5 : Profils verticaux des 95 vols LOAC moyens par minute exprimés en concentration cumulée. La courbe discontinue orange est représentative de la moyenne de concentration cumulée résiduelle sur 1 minute établie en laboratoire. La zone grise représente la variation à 1 σ de la concentration résiduelle. La limite de la zone grise vers 0,8 cm <sup>-3</sup> représente la limite de détection en concentration cumulée sur 1 minute. Chaque numéro est relatif à un vol dans la période mai 2013 à août 2016. Sa couleur noire (prudence), jaune (passable) ou verte (nominal) est fonction du niveau de confiance défini par le niveau de confiance lié au bruit de l'instrument en vol.....	90
Figure 4.6 : Profils verticaux des 95 vols LOAC moyens par minute exprimés en extinctions calculées à 532 nm pour des particules sphériques d'indice de réfraction représentatif de gouttelettes d'acide sulfurique. Chaque numéro est relatif à un vol dans la période mai 2013 à août 2016. Sa couleur noire, jaune ou verte est fonction du niveau de confiance défini par le niveau de confiance lié au bruit de l'instrument en vol.....	91
Figure 4.7 : Evolution temporelle des cas de vols LOAC présentant des sursauts, des perturbations ou aucun des deux. Environ ¼ des vols présentent des sursauts .....	93
Figure 4.8 : A gauche, évolution temporelle de l'altitude des sursauts. A droite, répartition verticale du nombre de sursaut par 2 km (les points sont les occurrences tandis que la ligne pleine est un lissage).....	93
Figure 4.9 : Profils verticaux pour les 95 vols LOAC exprimés en extinction moyenne sur 1 minute (courbes grises). Le critère Pinatubo est représenté en vert pointillé. Les courbes bleues représentent les moyennes de distributions des extinctions moyennes par 3 km (trait plein sans tenir compte du critère Pinatubo, trait pointillé en excluant les valeurs supérieures aux extinctions du Pinatubo). La courbe violette est la médiane des distributions par 3 km. La courbe discontinue rouge indique la moyenne sur 10 minutes des extinctions résiduelles. Les courbes jaunes représentent la dispersion à 1 σ de la moyenne des extinctions résiduelles sur 10 minutes. Le nombre de vols pris	



	en compte pour produire les moyennes et médianes sur 3 km est représenté par la courbe noire à droite.....	94
Figure 4.10 :	Distributions en tailles des concentrations LOAC par tranche de 3 km pour les vols de la période mai 2013 à août 2016. La moyenne et la médiane des concentrations par gamme de taille sont respectivement représentées par les courbes bleue et violette La distribution rouge représente la limite 10 minutes combinée de détection $1 \sigma$ et de discrimination minimale.....	96
Figure 4.11 :	Variabilité temporelle des extinctions moyennes LOAC par gamme de 3 kilomètres. Chaque carré représente la moyenne des extinctions LOAC accompagnée d'une barre d'incertitude représentative des valeurs minimale et maximale mesurées dans la gamme de 3 km. La ligne pointillée verte représente le critère Pinatubo. Les courbes discontinues rouge et orange sont respectivement la moyenne des extinctions résiduelles et sa dispersion à $\pm 1 \sigma$ .....	98
Figure 4.12 :	Variabilité temporelle des extinctions moyennes LOAC par gamme de 3 kilomètres. Chaque carré représente la moyenne des extinctions LOAC accompagnée d'une barre d'incertitude représentative des valeurs minimale et maximale mesurées dans la gamme de 3 km. La ligne pointillée verte représente le critère Pinatubo. Les courbes discontinues rouge et orange sont respectivement la moyenne des extinctions résiduelles et sa dispersion à $\pm 1 \sigma$ Chaque couleur de carré est associée à la note de confiance du vol. La ligne pointillée verte représente le critère Pinatubo. Les courbes discontinues rouges et orange sont respectivement la moyenne des extinctions résiduelles et sa dispersion à $\pm 1 \sigma$ .....	99
Figure 4.13 :	Evolution temporelle des extinctions moyennes par bande de 3 kilomètres pour les données OMPS, WACCM, OSIRIS, LOAC, lidar OHP et lidar CALIOP. Les courbes discontinues rouge et verte représentent respectivement la moyenne des extinctions résiduelles sur 10 minutes et le critère Pinatubo. La zone grise représente la moyenne des extinctions sur 10 minutes résiduelles $\pm 1 \sigma$ .....	103
Figure 4.14 :	A gauche : allures verticales moyennes par bande de 3 kilomètres des extinctions au-dessus de la France pour la période 2013-2015 des 6 valeurs indépendantes. Profil moyen pour tous les vols LOAC (trait plein noir), moyenne en tenant compte du critère Pinatubo (Crit P) (courbe discontinue noire) et médiane (courbe discontinue grise). A droite : allures moyennes par kilomètre des 6 jeux de données représentés individuellement afin de rendre compte de la dispersion des données et la moyenne de l'extinction par bande de 3 kilomètres est reportée sur chaque figure par une ligne noire. Pour LOAC la courbe verte continue et discontinue représente respectivement la moyenne et la médiane 3 km. ....	104
Figure 4.15 :	Allures des dispersions $1 \sigma$ des extinctions moyennes sur 3 km, OMPS en vert, WACCM en orange, OSIRIS, en bleu, OHP en rouge, CALIOP en violet et LOAC en noir. La courbe discontinue noire représente la dispersion de la moyenne 3 km des données LOAC auxquelles est appliqué le critère Pinatubo.....	105
Figure 4.16 :	Profils verticaux des extinctions à 525 nm moyennes de SAGEII pour la période 2000-2005 aux latitudes moyennes et tropicales comparées aux sorties du modèle WACCM avec et sans la contribution des smoke particles (Neely et al., 2011) .....	106
Figure 4.17 :	Profil d'extinction à 1037 nm mesuré par SOPHIE (points noirs) le 20 juin 2008 à 65°S comparé aux simulations de CHEM2D et de WACCM respectivement en courbe pleine et discontinue pour deux compositions de smoke particles différentes représentées par les couleurs bleues et rouges. La courbe pleine orange représente les particules sulfatées simulées (Hervig et al., 2009) .....	107
Figure 4.18 :	Profils verticaux des 9 vols LOAC moyens par minute exprimés en concentration cumulée – données issues du retraitement de novembre 2016. La courbe discontinue orange est représentative de la moyenne de concentration cumulée résiduelle sur 1 minute établie en laboratoire. La zone grise représente la variation à $1 \sigma$ de la concentration résiduelle. La limite de la zone grise vers $0,8 \text{ cm}^{-3}$ représente la limite de détection en concentration cumulée sur 1 minute. Chaque numéro est relatif à un vol dans la période juin 2013 à août 2016.....	109
Figure 4.19 :	Profils verticaux des 95 vols LOAC moyens par minute exprimés en extinctions calculées à 532 nm pour des particules sphériques d'indice de réfraction représentatif de gouttelettes d'acide	

	sulfurique – données issues du retraitement de novembre 2016. Chaque numéro est relatif à un vol dans la période juin 2013 à août 2016.....	110
Figure 4.20 :	Profils verticaux moyen et médian pour les 95 vols LOAC exprimés en extinction moyen sur 3 km. Le critère Pinatubo est représenté en vert pointillé. Les courbes bleues représentent les moyennes de distributions des extinctions moyennes par 3 km (trait plein sans tenir compte du critère Pinatubo, trait pointillé en excluant les valeurs supérieures aux extinctions du Pinatubo). La courbe violette est la médiane des distributions par 3 km. La courbe discontinue rouge indique la moyenne sur 10 minutes des extinctions résiduelles. Les courbes jaunes représentent la dispersion $1 \sigma$ de la moyenne des extinctions résiduelles sur 10 minutes. Les profils gris sont les profils LOAC en extinction 1 minute. Le nombre de vols pris en compte pour produire les moyennes 3 km est représenté par la courbe noire à droite .....	111
Figure 4.21 :	Evolution temporelle des extinctions moyennes par bande de 3 kilomètres pour les données OMPS, WACCM, OSIRIS, LOAC, lidar OHP et lidar CALIOP. Les courbes discontinues rouge et verte représentent respectivement la moyenne des extinctions résiduelles 10 minutes et le critère Pinatubo. La zone grise représente la moyenne des extinctions sur 10 minutes résiduelle $\pm 1 \sigma$ .....	112
Figure 4.22 :	A gauche : allures verticales moyennes par bande de 3 kilomètres des extinctions au-dessus de la France pour la période 2013-2015 des 6 valeurs indépendantes. Profil moyen pour tous les vols LOAC (trait plein noir), moyenne en tenant compte du critère Pinatubo (Crit P) (courbe discontinue noire) et médiane (courbe discontinue grise). A droite : allures moyennes par kilomètre des 6 jeux de données représentés individuellement afin de rendre compte de la dispersion des données et la moyenne de l'extinction par bande de 3 kilomètres est reportée sur chaque figure par une ligne noire. Pour LOAC la courbe verte continue et discontinue représente respectivement la moyenne et la médiane 3 km .....	113
Figure 4.23 :	Profils verticaux des extinctions moyennes sur 3 km des données LOAC en tant compte du critère Pinatubo avant le retraitement de novembre 2016 (courbe pleine noire) et après le retraitement de novembre 2016 (courbe discontinue noire) comparés aux autres données WACCM, OMPS, OSIRIS, CALIOP et OHP. Les barres d'incertitudes sur les données LOAC sont représentées pour les données après le retraitement et pas sur les données avant le retraitement pour plus de lisibilité.....	114
Figure 5.1 :	A gauche, photographie du panache du Holuhraun prise le 22 janvier 2015 à 14 TU. a) panache condensé, b) panache non-condensé, c) nuage glacé de haute altitude. La droite rouge discontinue représente schématiquement la trajectoire verticale du ballon ayant traversé le panache 7 heures après que le cliché a été pris. A droite, représentation des paramètres mesurés lors de l'ascension du ballon : concentration cumulée de particules (de diamètres de 0,2 à 100 $\mu\text{m}$ ) en noir, vitesse verticale du ballon météorologique en rouge, et humidité relative en bleu. 6 zones verticales sont déterminées en fonction de ces paramètres et sont représentées par des rectangles gris afin de faciliter la description du profil (Adaptée d'après Vignelles et al. 2016).....	115
Figure 5.2 :	Profil de typologie par groupe de gammes de taille lors de l'ascension du LOAC au travers du panache volcanique du Holuhraun (groupe de 3 gammes de tailles successives ; adaptée d'après Vignelles et al. 2016).....	116
Figure 5.3 :	Profil de concentration par gamme de taille lors de l'ascension du LOAC au travers du panache volcanique du Holuhraun (résolution 10 secondes ; adaptée d'après Vignelles et al. 2016).....	117
Figure 5.4 :	Données LOAC pour le vol du 19 mai 2015 depuis l'île de la Réunion. A gauche, profil vertical de la concentration cumulée. A droite, distribution des volumes dans la zone d'altitude où se trouve le panache volcanique (Bègue et al., en cours de soumission).....	118
Figure 5.5 :	Coefficient de rétrodiffusion du lidar 355 nm Île de la Réunion le 19 mai 2015 (Bègue et al., en cours de soumission).....	119
Figure 5.6 :	Profils verticaux de la concentration du mode grossier mesuré par LOAC (courbe noire) et du rapport de rétrodiffusion aux longueurs d'ondes 455 et 870 nm mesurés par COBALD (courbe bleue et rouge) lors de la campagne BATALL depuis Bénarès en Inde.....	120

Figure 5.7 : Dépendance verticale et temporelle des paramètres dynamiques au-dessus de la France selon les données ERA-Interim ECMWF (dans la zone de comparaison 38°N ; 50°N et -6°N ; 10°N). En haut, température de l'air. En bas, vitesse du vent zonale .....	121
Figure 5.8 : Vorticité potentielle moyenne au-dessus de la France pour 3 altitudes : A) environ 18 km, B) environ 21 km, C) environ 28 km. Données extraites du modèle MIMOSA.....	122
Figure 5.9 : cartes de PV de l'hémisphère nord représentant la position du vortex polaire pour le 5 janvier 2013, 2014 et 2015 à trois niveaux d'altitudes 550K (18 km), 675K (21 km) et 950K (28 km). Le point jaune représente la position de la France, sa surface est de l'ordre de grandeur de la zone utilisée pour comparer les données.....	123
Figure 5.10 : cartes de PV hémisphère nord représentant la position du vortex polaire pour l'altitude 950K pour les 3 hivers 2013/14, 2014/15 et 2015/16. Le point jaune représente la position de la France, sa surface est de l'ordre de grandeur de la zone utilisée pour comparer les données.....	125
Figure 5.11 : De haut en bas en concordance de temps : A) vent zonal moyen à 28 km environ selon ECMWF, B) vorticité potentielle à environ 28 km selon MIMOSA, C) extinction à 532 nm selon OMPS, D) extinction à 500 nm selon WACCM, E) extinction à 532 nm selon le lidar OHP, F) extinction à 532 nm selon LOAC. Toutes les tendances sont données comme moyenne sur la zone de comparaison déterminée dans le chapitre 4 en moyenne journalière, sauf pour lidar OHP et le LOAC qui représentent des extinctions locales en moyenne mensuelle.....	126
Figure 5.12 : Représentation des vitesses du vent à l'altitude 300 hPa le 27 juillet à 12h00 TU (données opérationnelles ECMWF). Les couleurs représentent les vitesses en m.s <sup>-1</sup> . La zone où les vitesses dépassent 50 m.s <sup>-1</sup> est indiquée par la courbe discontinue jaune à l'ouest de la péninsule ibérique. Les courbes noires représentent les altitudes géopotentielle à 500 hPa. La croix indique le lieu du lâcher du LOAC sous ballon météorologique (Chane Ming et al., 2016).....	127
Figure 5.13 : Représentation des perturbations et de la transformée en ondelettes de Morlet pour la température potentielle (A) et le vent zonal (B) en fonction de l'altitude (adapté d'après Chane Ming et al., 2016) .....	128
Figure 5.14 : Distribution verticale des concentrations par gammes de tailles mesurée par LOAC le 27 juillet 2013 à la résolution 10 secondes .....	128
Figure 5.15 : A gauche, profil de perturbation des concentrations cumulées LOAC sur les gammes de tailles 0,2 à 0,7 µm, à droite spectre de la perturbation révélant une structure vers 2,6 km de longueur d'onde entre 13 et 20 km d'altitude (adapté d'après Chane Ming et al., 2016) .....	129
Figure 5.16 : Rétro-trajectoire des masses d'air échantillonnées par le LOAC le 27 juillet 2013. Chaque courbe de couleur représente la rétro-trajectoire lancée tous les kilomètres en altitude sur la trajectoire de la montée du ballon pour une durée de 10 jours, chaque triangle représente une période de 24 h. On distingue typiquement 3 régions : la troposphère jusqu'à 15 km (noir à bleu) d'origine diverse plutôt outre-Atlantique, la basse stratosphère de 15 à 22 km (turquoise à vert) dont l'origine est de tropicale à latitude moyenne (10° à 40° N) en fonction de l'altitude, puis la moyenne stratosphère au-dessus de 22 km (vert à rouge) dont l'origine zonale, est homogène avec l'altitude (40°N).....	130
Figure 6.1 : Schéma de principe d'un banc de calibration .....	133
Figure 6.2 : Schéma de principe du dilueur TSI 3302A. 1 entrée, 2 filtre haute efficacité, 3 mélange air filtré et aérosol à diluer, 4 sortie, 5 mesure de pression, 6 régulation de la dilution ( <a href="http://www.tsi.com/uploadedFiles/_Site_Root/Products/Literature/Spec_Sheets/3302A_Aerosol_Diluter_A4_5001470_WEB.pdf">http://www.tsi.com/uploadedFiles/_Site_Root/Products/Literature/Spec_Sheets/3302A_Aerosol_Diluter_A4_5001470_WEB.pdf</a> ).....	134
Figure 6.3 : Clichés pris au microscope de la surface du corps du LOAC 77 en regard avec la sortie de la pompe après un vol sous ballon météorologique. A) échelle de taille, le champ de vue est de l'ordre du millimètre, B), C), D), E) et F) observations de particules colorés et de fibres parmi les rejets de la pompe produit par l'érosion du rotor de la pompe (particules plutôt blanches).....	136
Figure 6.4 : En haut, variation de la température de l'air de l'enceinte climatique LPC2E. En bas, valeur absolue du gradient de température. Les indices 1, 2 et 3 correspondent respectivement à des consignes de gradient de température de l'enceinte de l'ordre de 20°C en 1h, 20° en 45 minutes et 20° en 30 minutes. Les zones beiges représente les périodes pendant lesquelles la variation de	

température dans l'enceinte est représentative d'un vol sous ballon météorologique à l'intérieure de la nacelle LOAC ..... 137

Figure 6.5 : Concentration cumulée normalisée à partir de 200 nm (à gauche) et à partir de 4  $\mu\text{m}$  en fonction de la vitesse ascensionnelle du ballon pour les 95 vols de la période mai 2013 à août 2015 sur toute la colonne échantillonnée ..... 138

Figure 6.6 : Résultat d'une analyse par k-moyenne des 73 vols LOAC pour la période mai 2013 à décembre 2016. Les groupes de granulométrie sont représentés en colonne sur la gauche, tandis que leur fréquence d'apparition normalisée suivant l'altitude sont représentées en colonne sur la droite ..... 141

## Bibliographie

- Alvesteffer, W., Eget, L., 1998. A laminar flow element with a linear pressure drop versus volumetric flow - Teledyne.
- Aquila, V., Oman, L.D., Stolarski, R.S., Colarco, P.R., Newman, P.A., 2012. Dispersion of the volcanic sulfate cloud from a Mount Pinatubo-like eruption. *J. Geophys. Res.* 117. doi:10.1029/2011JD016968
- Arfeuille, F., Weisenstein, D., Mack, H., Rozanov, E., Peter, T., Brönnimann, S., 2014. Volcanic forcing for climate modeling: a new microphysics-based data set covering years 1600–present. *Clim. Past* 10, 359–375. doi:10.5194/cp-10-359-2014
- Asimov, I., 2004. Foundation. Bantam Books, New York.
- Bardeen, C.G., Toon, O.B., Jensen, E.J., Marsh, D.R., Harvey, V.L., 2008. Numerical simulations of the three-dimensional distribution of meteoric dust in the mesosphere and upper stratosphere. *J. Geophys. Res.* 113. doi:10.1029/2007JD009515
- Barret, B., Sauvage, B., Bennouna, Y., Le Flochmoen, E., 2016. Upper-tropospheric CO and O3 budget during the Asian summer monsoon. *Atmos Chem Phys* 16, 9129–9147. doi:10.5194/acp-16-9129-2016
- Bauman, J.J., Russell, P.B., Geller, M.A., Hamill, P., 2003. A stratospheric aerosol climatology from SAGE II and CLAES measurements: 2. Results and comparisons, 1984–1999. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 108, 4383. doi:10.1029/2002JD002993
- Baumgardner, D., 2004. Warming of the Arctic lower stratosphere by light absorbing particles. *Geophys. Res. Lett.* 31. doi:10.1029/2003GL018883
- Begue, N., Vignelles, D., Berthet, G., Portafaix, T., Payen, G., Jégou, F., Benchérif, H., Jumelet, J., Vernier, J.-P., Lurton, T., Renard J.-B., Clarrisse, L., Duverger, V., Posny, F., Metzger, J.-M., en cours de soumission, Long-range isentropic transport of stratospheric aerosols over Southern Hemisphere following the Calbuco eruption in April 2015
- Bergman, J.W., Fierli, F., Jensen, E.J., Honomichl, S., Pan, L.L., 2013. Boundary layer sources for the Asian anticyclone: Regional contributions to a vertical conduit: VERTICAL CONDUIT TO ASIAN ANTICYCLONE. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 118, 2560–2575. doi:10.1002/jgrd.50142
- Bertaux, J.L., Hauchecorne, A., Dalaudier, F., Cot, C., Kyrölä, E., Fussen, D., Tamminen, J., Leppelmeier, G.W., Sofieva, V., Hassinen, S., Fanton d'Andon, O., Barrot, G., Mangin, A., Théodore, B., Guirlet, M., Korabely, O., Snoeij, P., Koopman, R., Fraisse, R., 2004. First results on GOMOS/ENVISAT. *Adv. Space Res., Climate Change Processes in the Stratosphere, Earth-Atmosphere-Ocean Systems, and Oceanographic Processes from Satellite Data* 33, 1029–1035. doi:10.1016/j.asr.2003.09.037
- Bertaux, J.L., Mégie, G., Widemann, T., Chassefière, E., Pellinen, R., Kyrola, E., Korpela, S., Simon, P., 1991. Monitoring of ozone trend by stellar occultations: the GOMOS instrument. *Adv. Space Res.* 11, 237–242. doi:10.1016/0273-1177(91)90426-K
- Berthet, G., Renard, J.-B., Brogniez, C., Robert, C., Chartier, M., Pirre, M., 2002. Optical and physical properties of stratospheric aerosols from balloon measurements in the visible and near-infrared domains. 1. Analysis of aerosol extinction spectra from the AMON and SALOMON balloonborne spectrometers. *Appl. Opt.* 41, 7522–7539.
- Bescond, A., Yon, J., Ouf, F.-X., Rozé, C., Coppalle, A., Parent, P., Ferry, D., Laffon, C., 2016. Soot optical properties determined by analyzing extinction spectra in the visible near-UV: Toward an optical speciation according to constituents and structure. *J. Aerosol Sci.* 101, 118–132. doi:10.1016/j.jaerosci.2016.08.001
- Bigg, E.K., 2012. Sources of insoluble inclusions in stratospheric sulfate particles. *Meteorit. Planet. Sci.* 47, 799–805. doi:10.1111/j.1945-5100.2012.01346.x
- Bigg, E.K., 2003. Brochosomes—a tracer for near-surface air. *Atmospheric Res.* 66, 141–144.
- Bingen, C., Fussen, D., Vanhellefont, F., 2004a. A global climatology of stratospheric aerosol size distribution parameters derived from SAGE II data over the period 1984-2000: 2. Reference data: RETRIEVAL AEROSOL SIZE DISTRIBUTION. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 109, n/a-n/a. doi:10.1029/2003JD003511

- Bingen, C., Fussen, D., Vanhellefont, F., 2004b. A global climatology of stratospheric aerosol size distribution parameters derived from SAGE II data over the period 1984–2000: 1. Methodology and climatological observations. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 109, D06201. doi:10.1029/2003JD003518
- BIPM, 2012. Vocabulaire international de métrologie - Concepts fondamentaux et généraux et termes associés (VIM).
- Blake, D.F., Kato, K., 1995. Latitudinal distribution of black carbon soot in the upper troposphere and lower stratosphere. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 100, 7195–7202. doi:10.1029/94JD03118
- Bond, T.C., Doherty, S.J., Fahey, D.W., Forster, P.M., Bernsten, T., DeAngelo, B.J., Flanner, M.G., Ghan, S., Kärcher, B., Koch, D., Kinne, S., Kondo, Y., Quinn, P.K., Sarofim, M.C., Schultz, M.G., Schulz, M., Venkataraman, C., Zhang, H., Zhang, S., Bellouin, N., Guttikunda, S.K., Hopke, P.K., Jacobson, M.Z., Kaiser, J.W., Klimont, Z., Lohmann, U., Schwarz, J.P., Shindell, D., Storelvmo, T., Warren, S.G., Zender, C.S., 2013. Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment: BLACK CARBON IN THE CLIMATE SYSTEM. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 118, 5380–5552. doi:10.1002/jgrd.50171
- Borovička, J., Spurný, P., Brown, P., Wiegert, P., Kalenda, P., Clark, D., Shrbený, L., 2013. The trajectory, structure and origin of the Chelyabinsk asteroidal impactor. *Nature*. doi:10.1038/nature12671
- Bourassa, A.E., Degenstein, D.A., Gattinger, R.L., Llewellyn, E.J., 2007. Stratospheric aerosol retrieval with optical spectrograph and infrared imaging system limb scatter measurements. *J. Geophys. Res.* 112. doi:10.1029/2006JD008079
- Bourassa, A.E., Degenstein, D.A., Llewellyn, E.J., 2008. Retrieval of stratospheric aerosol size information from OSIRIS limb scattered sunlight spectra. *Atmospheric Chem. Phys.* 8, 6375–6380.
- Bourassa, A.E., Degenstein, D.A., Llewellyn, E.J., 2008. SASKTRAN: A spherical geometry radiative transfer code for efficient estimation of limb scattered sunlight. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* 109, 52–73. doi:10.1016/j.jqsrt.2007.07.007
- Bourassa, A.E., Rieger, L.A., Lloyd, N.D., Degenstein, D.A., 2012. Odin-OSIRIS stratospheric aerosol data product and SAGE III intercomparison. *Atmospheric Chem. Phys.* 12, 605–614. doi:10.5194/acp-12-605-2012
- Brabec, M., 2007. Backscatter and Humidity Measurements in Cirrus and Dust Clouds using Balloon Sondes. *Post-Scr.* 1444-383X 8.
- Brabec, M., Wienhold, F.G., Luo, B.P., Vömel, H., Immler, F., Steiner, P., Hausammann, E., Weers, U., Peter, T., 2012. Particle backscatter and relative humidity measured across cirrus clouds and comparison with microphysical cirrus modelling. *Atmospheric Chem. Phys.* 12, 9135–9148. doi:10.5194/acp-12-9135-2012
- Brock, C.A., Schröder, F., Kärcher, B., Petzold, A., Busen, R., Fiebig, M., 2000. Ultrafine particle size distributions measured in aircraft exhaust plumes. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 105, 26555–26567. doi:10.1029/2000JD900360
- Brownlee, D.E., 1985. Cosmic Dust: Collection and Research. *Annu. Rev. Earth Planet. Sci.* 13, 147–173. doi:10.1146/annurev.ea.13.050185.001051
- Butchart, N., 2014. The Brewer-Dobson circulation. *Rev. Geophys.* 52, 157–184. doi:10.1002/2013RG000448
- Cairo, F., Pommereau, J.P., Law, K.S., Schlager, H., Garnier, A., Fierli, F., Ern, M., Streibel, M., Arabas, S., Borrmann, S., Berthelot, J.J., Blom, C., Christensen, T., D'Amato, F., Di Donfrancesco, G., Deshler, T., Diedhiou, A., Durrý, G., Engelsen, O., Goutail, F., Harris, N.R.P., Kerstel, E.R.T., Khaykin, S., Konopka, P., Kylling, A., Larsen, N., Lebel, T., Liu, X., MacKenzie, A.R., Nielsen, J., Oulanowski, A., Parker, D.J., Pelon, J., Polcher, J., Pyle, J.A., Ravegnani, F., Rivière, E.D., Robinson, A.D., Röckmann, T., Schiller, C., Simões, F., Stefanutti, L., Stroh, F., Some, L., Siegmund, P., Sitnikov, N., Vernier, J.P., Volk, C.M., Voigt, C., von Hobe, M., Viciani, S., Yushkov, V., 2010. An introduction to the SCOUT-AMMA stratospheric aircraft, balloons and sondes campaign in West Africa, August 2006: rationale and roadmap. *Atmos Chem Phys* 10, 2237–2256. doi:10.5194/acp-10-2237-2010
- Cammas, J.-P., Brioude, J., Chaboureaud, J.P., Duron, J., Mari, C., Mascart, P., Nédélec, P., Smit, H., Pätz, H.W., Volz-Thomas, A., others, 2009. Injection in the lower stratosphere of biomass fire emissions followed by long-range transport: a MOZAIC case study. *Atmos Chem Phys* 9, 5829–5846.

- Carboni, E., Grainger, R., Walker, J., Dudhia, A., Siddans, R., 2012. A new scheme for sulphur dioxide retrieval from IASI measurements: application to the Eyjafjallajökull eruption of April and May 2010. *Atmos Chem Phys* 12, 11417–11434. doi:10.5194/acp-12-11417-2012
- Carboni, E., Grainger, R.G., Mather, T.A., Pyle, D.M., Thomas, G.E., Siddans, R., Smith, A.J.A., Dudhia, A., Koukouli, M.E., Balis, D., 2016. The vertical distribution of volcanic SO<sub>2</sub> plumes measured by IASI. *Atmos Chem Phys* 16, 4343–4367. doi:10.5194/acp-16-4343-2016
- Carn, S.A., Clarisse, L., Prata, A.J., 2016. Multi-decadal satellite measurements of global volcanic degassing. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 311, 99–134. doi:10.1016/j.jvolgeores.2016.01.002
- Chahine, M.T., 1968. Determination of the Temperature Profile in an Atmosphere from its Outgoing Radiance\*. *J. Opt. Soc. Am.* 58, 1634. doi:10.1364/JOSA.58.001634
- Chane Ming, F., Chen, Z., Roux, F., 2010. Analysis of gravity-waves produced by intense tropical cyclones. *Ann. Geophys.* 28, 531–547. doi:10.5194/angeo-28-531-2010
- Chane Ming, F., Vignelles, D., Jegou, F., Berthet, G., Renard, J.-B., Gheusi, F., Kuleshov, Y., 2016. Gravity-wave effects on tracer gases and stratospheric aerosol concentrations during the 2013 ChArME<sub>x</sub> campaign. *Atmospheric Chem. Phys.* 16, 8023–8042. doi:10.5194/acp-16-8023-2016
- Chazette, P., David, C., Lefrère, J., Godin, S., Pelon, J., Mégie, G., 1995. Comparative lidar study of the optical, geometrical, and dynamical properties of stratospheric post-volcanic aerosols, following the eruptions of El Chichon and Mount Pinatubo. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 100, 23195–23207. doi:10.1029/95JD02268
- Chen, Z., DeLand, M., Bhartia, P.K., 2016. A new algorithm for detecting cloud height using OMPS/LP measurements. *Atmospheric Meas. Tech.* 9, 1239–1246. doi:10.5194/amt-9-1239-2016
- Chin, M., Davis, D.D., 1995. A reanalysis of carbonyl sulfide as a source of stratospheric background sulfur aerosol. *J. Geophys. Res.* 100, 8993. doi:10.1029/95JD00275
- Chin, M., Rood, R.B., Lin, S.-J., Müller, J.-F., Thompson, A.M., 2000. Atmospheric sulfur cycle simulated in the global model GOCART: Model description and global properties. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 105, 24671–24687. doi:10.1029/2000JD900384
- Choi, S.-C., Baik, S.-H., Park, S.-K., Cha, H.-K., Song, I.-K., Kim, D.-H., 2010. The Measurement of the LIDAR Ratio by Using the Rotational Raman LIDAR. *J. Opt. Soc. Korea* 14, 174–177. doi:10.3807/JOSK.2010.14.3.174
- Chu, W.P., 1985. Convergence of Chahine's nonlinear relaxation inversion method used for limb viewing remote sensing. *Appl. Opt.* 24, 445–447.
- Cirisan, A., Luo, B.P., Engel, I., Wienhold, F.G., Sprenger, M., Krieger, U.K., Weers, U., Romanens, G., Levrat, G., Jeannot, P., others, 2014. Balloon-borne match measurements of midlatitude cirrus clouds. *Atmospheric Chem. Phys.* 14, 7341–7365.
- Corte, V.D., Rietmeijer, F.J.M., Rotundi, A., Ferrari, M., Palumbo, P., 2013. Meteoric CaO and carbon smoke particles collected in the upper stratosphere from an unanticipated source. *Tellus B* 65. doi:10.3402/tellusb.v65i0.20174
- Courty, M.-A., Martinez, J.-M., 2015. Terrestrial Carbonaceous Debris Tracing Atmospheric Hypervelocity-Shock Aeroplasma Processes. *Procedia Eng.* 103, 81–88.
- Curtius, J., Weigel, R., Vössing, H.-J., Wernli, H., Werner, A., Volk, C.-M., Konopka, P., Krebsbach, M., Schiller, C., Roiger, A., others, 2005. Observations of meteoric material and implications for aerosol nucleation in the winter Arctic lower stratosphere derived from in situ particle measurements. *Atmospheric Chem. Phys.* 5, 3053–3069.
- Damoah, R., Spichtinger, N., Servranckx, R., Fromm, M., Eloranta, E.W., Razenkov, I.A., James, P., Shulski, M., Forster, C., Stohl, A., 2006. A case study of pyro-convection using transport model and remote sensing data. *Atmos Chem Phys* 6, 173–185. doi:10.5194/acp-6-173-2006
- De Angelis, S., 2011. Characterization of the DUSTER instrument for stratospheric dust collection and Raman analysis of stratospheric samples.
- de Laat, A.T.J., Stein Zweers, D.C., Boers, R., Tuinder, O.N.E., 2012. A solar escalator: Observational evidence of the self-lifting of smoke and aerosols by absorption of solar radiation in the February 2009 Australian Black Saturday plume. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 117, D04204. doi:10.1029/2011JD017016
- Dee, D.P., Uppala, S.M., Simmons, A.J., Berrisford, P., Poli, P., Kobayashi, S., Andrae, U., Balmaseda, M.A., Balsamo, G., Bauer, P., Bechtold, P., Beljaars, A.C.M., van de Berg, L., Bidlot, J., Bormann, N., Delsol, C., Dragani, R., Fuentes, M., Geer, A.J., Haimberger, L., Healy, S.B., Hersbach, H., Hólm, E.V., Isaksen, I., Kållberg, P., Köhler, M., Matricardi, M., McNally, A.P., Monge-Sanz, B.M.,

- Morcrette, J.-J., Park, B.-K., Peubey, C., de Rosnay, P., Tavalato, C., Thépaut, J.-N., Vitart, F., 2011. The ERA-Interim reanalysis: configuration and performance of the data assimilation system. *Q. J. R. Meteorol. Soc.* 137, 553–597. doi:10.1002/qj.828
- DeLand, M., Bhartia, P.K., Xu, P., Zhu, T., 2016. OMPS Limb Profiler Aerosol Extinction Product AER675: Version 0.5 Data Release Notes.
- Denjean, C., Formenti, P., Picquet-Varrault, B., Camredon, M., Pangui, E., Zapf, P., Katrib, Y., Giorio, C., Tapparo, A., Temime-Roussel, B., Monod, A., Aumont, B., Doussin, J.F., 2015. Aging of secondary organic aerosol generated from the ozonolysis of  $\alpha$ -pinene: effects of ozone, light and temperature. *Atmos Chem Phys* 15, 883–897. doi:10.5194/acp-15-883-2015
- Deshler, T., 2008. A review of global stratospheric aerosol: Measurements, importance, life cycle, and local stratospheric aerosol. *Atmospheric Res.* 90, 223–232. doi:10.1016/j.atmosres.2008.03.016
- Deshler, T., Anderson-Sprecher, R., Jäger, H., Barnes, J., Hofmann, D.J., Clemesha, B., Simonich, D., Osborn, M., Grainger, R.G., Godin-Beekmann, S., 2006. Trends in the nonvolcanic component of stratospheric aerosol over the period 1971–2004. *J. Geophys. Res.* 111. doi:10.1029/2005JD006089
- Deshler, T., Hervig, E. M., Hofmann D. J., Rosen J. M., Liley J. B., 2003. Thirty years of in situ stratospheric aerosol size distribution measurements from Laramie, Wyoming (41°N), using balloon-borne instruments. *J. Geophys. Res.* 108. doi:10.1029/2002JD002514
- Diallo, M., Legras, B., Chédin, A., 2012. Age of stratospheric air in the ERA-Interim. *Atmospheric Chem. Phys.* 12, 12133–12154. doi:10.5194/acp-12-12133-2012
- Dorman, L.I., 2013. *Cosmic Rays in the Earth's Atmosphere and Underground*. Springer Science & Business Media.
- Dupuis, T., Delmas, G., 2007. *Métrologie en génie climatique*. Paris; Dunod.
- Durdina, L., Lobo, P., Trueblood, M.B., Black, E.A., Achterberg, S., Hagen, D.E., Brem, B.T., Wang, J., 2016. Response of real-time black carbon mass instruments to mini-CAST soot. *Aerosol Sci. Technol.* 50, 906–918. doi:10.1080/02786826.2016.1204423
- Ebert, M., Weigel, R., Kandler, K., Günther, G., Molleker, S., Groß, J.-U., Vogel, B., Weinbruch, S., Borrmann, S., 2016. Chemical analysis of refractory stratospheric aerosol particles collected within the arctic vortex and inside polar stratospheric clouds. *Atmospheric Chem. Phys. Discuss.* 1–35. doi:10.5194/acp-2016-128
- Elash, B.J., Bourassa, A.E., Loewen, P.R., Lloyd, N.D., Degenstein, D.A., 2016. The Aerosol Limb Imager: acousto-optic imaging of limb-scattered sunlight for stratospheric aerosol profiling. *Atmos Meas Tech* 9, 1261–1277. doi:10.5194/amt-9-1261-2016
- English, J.M., Toon, O.B., Mills, M.J., Yu, F., 2011. Microphysical simulations of new particle formation in the upper troposphere and lower stratosphere. *Atmospheric Chem. Phys.* 11, 9303–9322. doi:10.5194/acp-11-9303-2011
- Ern, M., 2004. Absolute values of gravity wave momentum flux derived from satellite data. *J. Geophys. Res.* 109. doi:10.1029/2004JD004752
- Friberg, J., Martinsson, B.G., Andersson, S.M., Brenninkmeijer, C.A.M., Hermann, M., Velthoven, P.F.J. van, Zahn, A., 2014. Sources of increase in lowermost stratospheric sulphurous and carbonaceous aerosol background concentrations during 1999-2008 derived from CARIBIC flights. *Tellus B* 66. doi:10.3402/tellusb.v66.23428
- Fritts, D.C., Alexander, M.J., 2003. Gravity wave dynamics and effects in the middle atmosphere. *Rev. Geophys.* 41, 1003. doi:10.1029/2001RG000106
- Fromm, M., Lindsey, D.T., Servranckx, R., Yue, G., Trickl, T., Sica, R., Doucet, P., Godin-Beekmann, S., 2010. The Untold Story of Pyrocumulonimbus. *Bull. Am. Meteorol. Soc.* 91, 1193–1209. doi:10.1175/2010BAMS3004.1
- Fromm, M., Tupper, A., Rosenfeld, D., Servranckx, R., McRae, R., 2006. Violent pyro-convective storm devastates Australia's capital and pollutes the stratosphere. *Geophys. Res. Lett.* 33, L05815. doi:10.1029/2005GL025161
- Fromm, M.D., Servranckx, R., 2003. Transport of forest fire smoke above the tropopause by supercell convection: CONVECTION AND SMOKE ABOVE TROPOPAUSE. *Geophys. Res. Lett.* 30, n/a-n/a. doi:10.1029/2002GL016820
- Galle, B., Johansson, M., Rivera, C., Zhang, Y., Kihlman, M., Kern, C., Lehmann, T., Platt, U., Arellano, S., Hidalgo, S., 2010. Network for Observation of Volcanic and Atmospheric Change (NOVAC)—A global network for volcanic gas monitoring: Network layout and instrument description. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 115, D05304. doi:10.1029/2009JD011823



- Gao, R.S., Hall, S.R., Swartz, W.H., Schwarz, J.P., Spackman, J.R., Watts, L.A., Fahey, D.W., Aikin, K.C., Shetter, R.E., Bui, T.P., 2008. Calculations of solar shortwave heating rates due to black carbon and ozone absorption using in situ measurements. *J. Geophys. Res.* 113. doi:10.1029/2007JD009358
- Gao, R.S., Telg, H., McLaughlin, R.J., Ciciora, S.J., Watts, L.A., Richardson, M.S., Schwarz, J.P., Perring, A.E., Thornberry, T.D., Rollins, A.W., Markovic, M.Z., Bates, T.S., Johnson, J.E., Fahey, D.W., 2016. A light-weight, high-sensitivity particle spectrometer for PM<sub>2.5</sub> aerosol measurements. *Aerosol Sci. Technol.* 50, 88–99. doi:10.1080/02786826.2015.1131809
- Garcia, R.R., Marsh, D.R., Kinnison, D.E., Boville, B.A., Sassi, F., 2007. Simulation of secular trends in the middle atmosphere, 1950–2003. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 112, D09301. doi:10.1029/2006JD007485
- Geller, M.A., Alexander, M.J., Love, P.T., Bacmeister, J., Ern, M., Hertzog, A., Manzini, E., Preusse, P., Sato, K., Scaife, A.A., Zhou, T., 2013. A Comparison between Gravity Wave Momentum Fluxes in Observations and Climate Models. *J. Clim.* 26, 6383–6405. doi:10.1175/JCLI-D-12-00545.1
- Gettelman, A., Hoor, P., Pan, L.L., Randel, W.J., Hegglin, M.I., Birner, T., 2011. The extratropical upper troposphere and lower stratosphere. *Rev. Geophys.* 49. doi:10.1029/2011RG000355
- Gheusi, F., Durand, P., Verdier, N., Dulac, F., Attié, J.-L., Commun, P., Barret, B., Basdevant, C., Clenet, A., Derrien, S., Doerenbecher, A., El Amraoui, L., Fontaine, A., Hache, E., Jambert, C., Jaumouillé, E., Meyerfeld, Y., Roblou, L., Tocquer, F., 2016. Adapted ECC ozonesonde for long-duration flights aboard boundary-layer pressurised balloons. *Atmos Meas Tech* 9, 5811–5832. doi:10.5194/amt-9-5811-2016
- Gíslason, S., Stefánsdóttir, G., Pfeffer, M.A., Barsotti, S., Jóhannsson, T., Galeczka, I., Bali, E., Sigmarsson, O., Stefánsson, A., Keller, N.S., Sigurdsson, á., Bergsson, B., Galle, B., Jacobo, V., Arellano, S., Aiuppa, A., Jónasdóttir, E.B., Eiríksdóttir, E.S., Jakobsson, S., Guðfinnsson, G.H., Halldórsson, S.A., Gunnarsson, H., Haddadi, B., Jónsdóttir, I., Thordarson, T., Riishuus, M., Högnadóttir, T., Dürig, T., Pedersen, G.B.M., Höskuldsson, á., Gudmundsson, M.T., 2015. Environmental pressure from the 2014–15 eruption of Bárðarbunga volcano, Iceland. *Geochem. Perspect. Lett.* 84–93. doi:10.7185/geochemlet.1509
- Godin-Beekmann, S., Porteneuve, J., Garnier, A., 2003. Systematic DIAL lidar monitoring of the stratospheric ozone vertical distribution at Observatoire de Haute-Provence (43.92°N, 5.71°E). *J. Environ. Monit.* 5, 57–67. doi:10.1039/b205880d
- Gonzi, S., Palmer, P.I., 2010. Vertical transport of surface fire emissions observed from space. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 115, D02306. doi:10.1029/2009JD012053
- Gorkavýi, N., Rault, D.F., Newman, P.A., da Silva, A.M., Dudorov, A.E., 2013. New stratospheric dust belt due to the Chelyabinsk bolide. *Geophys. Res. Lett.* 40, 4728–4733. doi:10.1002/grl.50788
- Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat, Stocker, T., Qin, D., Plattner, G.-K., 2013. Changements climatiques 2013 les éléments scientifiques: résumé à l'intention des décideurs: rapport du groupe de travail I du GIEC: résumé technique: rapport accepté par le Groupe de travail I du GIEC mais non approuvé dans le détail et foire aux questions: extraits de la contribution du groupe de travail I au cinquième rapport d'évaluation du Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat. Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat, Geneva, Switzerland.
- Hall, T.M., Waugh, D.W., Boering, K.A., Plumb, R.A., 1999. Evaluation of transport in stratospheric models. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 104, 18815–18839. doi:10.1029/1999JD900226
- Hammer, E., Gysel, M., Roberts, G.C., Elias, T., Hofer, J., Hoyle, C.R., Bukowiecki, N., Dupont, J.-C., Burnet, F., Baltensperger, U., Weingartner, E., 2014. Size-dependent particle activation properties in fog during the ParisFog 2012/13 field campaign. *Atmos Chem Phys* 14, 10517–10533. doi:10.5194/acp-14-10517-2014
- Hansen, J.E., Travis, L.D., 1974. Light scattering in planetary atmospheres. *Space Sci. Rev.* 16, 527–610. doi:10.1007/BF00168069
- Haywood, J.M., Jones, A., Clarisse, L., Bourassa, A., Barnes, J., Telford, P., Bellouin, N., Boucher, O., Agnew, P., Clerbaux, C., Coheur, P., Degenstein, D., Braesicke, P., 2010. Observations of the eruption of the Sarychev volcano and simulations using the HadGEM2 climate model. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 115, D21212. doi:10.1029/2010JD014447
- Helsel, D., 2010. Much Ado About Next to Nothing: Incorporating Nondetects in Science. *Ann. Occup. Hyg.* 54, 257–262. doi:10.1093/annhyg/mep092

- Hendricks, J., Kärcher, B., Döpelheuer, A., Feichter, J., Lohmann, U., Baumgardner, D., 2004. Simulating the global atmospheric black carbon cycle: a revisit to the contribution of aircraft emissions. *Atmospheric Chem. Phys.* 4, 2521–2541.
- Hervig, M.E., Gordley, L.L., Deaver, L.E., Siskind, D.E., Stevens, M.H., Russell, J.M., Bailey, S.M., Megner, L., Bardeen, C.G., 2009. First Satellite Observations of Meteoric Smoke in the Middle Atmosphere. *Geophys. Res. Lett.* 36, L18805. doi:10.1029/2009GL039737
- Hillemann, L., Babick, F., Stintz, M., 2015. Measurement of the Dynamic Shape Factor Using APM and SMPS in Parallel. *Procedia Eng.* 102, 1177–1182. doi:10.1016/j.proeng.2015.01.243
- Hofmann, C., Kerkweg, A., Hoor, P., Jöckel, P., 2016. Stratosphere-troposphere exchange in the vicinity of a tropopause fold. *Atmospheric Chem. Phys. Discuss.* 1–26. doi:10.5194/acp-2015-949
- Hofmann, D., Barnes, J., O'Neill, M., Trudeau, M., Neely, R., 2009. Increase in background stratospheric aerosol observed with lidar at Mauna Loa Observatory and Boulder, Colorado: INCREASE IN STRATOSPHERIC AEROSOL. *Geophys. Res. Lett.* 36, n/a-n/a. doi:10.1029/2009GL039008
- Holton, J.R., 2004. An introduction to dynamic meteorology. Elsevier Academic Press, Burlington, MA.
- Holton, J.R., Haynes, P.H., McIntyre, M.E., Douglass, A.R., Rood, R.B., Pfister, L., 1995. Stratosphere-troposphere exchange. *Rev. Geophys.* 33, 403. doi:10.1029/95RG02097
- Hsieh, W.-C., Collins, W.D., Liu, Y., Chiang, J.C.H., Shie, C.-L., Caldeira, K., Cao, L., 2013. Climate response due to carbonaceous aerosols and aerosol-induced SST effects in NCAR community atmospheric model CAM3.5. *Atmospheric Chem. Phys.* 13, 7489–7510. doi:10.5194/acp-13-7489-2013
- Hudson, P.K., Murphy, D.M., Cziczo, D.J., Thomson, D.S., de Gouw, J.A., Warneke, C., Holloway, J., Jost, H.-J., Hübler, G., 2004. Biomass-burning particle measurements: Characteristic composition and chemical processing: BIOMASS-BURNING PARTICLE MEASUREMENTS. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 109, n/a-n/a. doi:10.1029/2003JD004398
- Hulst Van de, H.C., 1957. Light scattering by small particles, Wiley 1st Edn. ed.
- Ilyinskaya, E., Martin, R.S., Oppenheimer, C., 2012. Aerosol formation in basaltic lava fountaining: Eyjafjallajökull volcano, Iceland. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 117, D00U27. doi:10.1029/2011JD016811
- Immler, F., Engelbart, D., Schrems, O., 2005. Fluorescence from atmospheric aerosol detected by a lidar indicates biogenic particles in the lowermost stratosphere. *Atmospheric Chem. Phys.* 5, 345–355.
- Jäger, H., Deshler, T., 2002. Lidar backscatter to extinction, mass and area conversions for stratospheric aerosols based on midlatitude balloonborne size distribution measurements: LIDAR BACKSCATTER TO EXTINCTION. *Geophys. Res. Lett.* 29, 35-1-35-4. doi:10.1029/2002GL015609
- Jaross, G., Bhartia, P.K., Chen, G., Kowitt, M., Haken, M., Chen, Z., Xu, P., Warner, J., Kelly, T., 2014. OMPS Limb Profiler instrument performance assessment: OMPS LIMB PERFORMANCE. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 119, 4399–4412. doi:10.1002/2013JD020482
- Jégou, F., Berthet, G., Brogniez, C., Renard, J.-B., François, P., Haywood, J.M., Jones, A., Bourgeois, Q., Lurton, T., Auriol, F., Godin-Beekmann, S., Guimbaud, C., Krysztofciak, G., Gaubicher, B., Chartier, M., Clarisse, L., Clerbaux, C., Balois, J.Y., Verwaerde, C., Dageron, D., 2013. Stratospheric aerosols from the Sarychev volcano eruption in the 2009 Arctic summer. *Atmospheric Chem. Phys.* 13, 6533–6552. doi:10.5194/acp-13-6533-2013
- Jost, H.-J., Drdla, K., Stohl, A., Pfister, L., Loewenstein, M., Lopez, J.P., Hudson, P.K., Murphy, D.M., Cziczo, D.J., Fromm, M., Bui, T.P., Dean-Day, J., Gerbig, C., Mahoney, M.J., Richard, E.C., Spichtinger, N., Pittman, J.V., Weinstock, E.M., Wilson, J.C., Xueref, I., 2004. In-situ observations of mid-latitude forest fire plumes deep in the stratosphere. *Geophys. Res. Lett.* 31, L11101. doi:10.1029/2003GL019253
- Junge, C.E., Chagnon, C.W., Manson, J.E., 1961. STRATOSPHERIC AEROSOLS. *J. Meteorol.* 18, 81–108. doi:10.1175/1520-0469(1961)018<0081:SA>2.0.CO;2
- Kanakidou, M., Seinfeld, J.H., Pandis, S.N., Barnes, I., Dentener, F.J., Facchini, M.C., Dingenen, R.V., Ervens, B., Nenes, A., Nielsen, C.J., others, 2005. Organic aerosol and global climate modelling: a review. *Atmospheric Chem. Phys.* 5, 1053–1123.
- Kandler, K., 2009. A miniature impactor for aerosol collection with emphasis on single particle analysis, in: European Aerosol Conference.
- Kärcher, B., Möhler, O., DeMott, P.J., Pechtl, S., Yu, F., 2007. Insights into the role of soot aerosols in cirrus cloud formation. *Atmospheric Chem. Phys.* 7, 4203–4227.

- Kaufman, Y.J., 2006. Smoke and Pollution Aerosol Effect on Cloud Cover. *Science* 313, 655–658. doi:10.1126/science.1126232
- Khaykin, S.M., Godin-Beekmann, S., Keckhut, P., Hauchecorne, A., Jumelet, J., Vernier, J.-P., Bourassa, A., Degenstein, D.A., Reiger, L.A., Bingen, C., Vanhellemont, F., Robert, C., DeLand, M., Bhartia, P.K., 2016. Variability and evolution of mid-latitude stratospheric aerosol budget from 22 years of ground-based lidar and satellite observations. *Atmospheric Chem. Phys. Discuss.* 1–22. doi:10.5194/acp-2016-846
- Kirkby, J., Duplissy, J., Sengupta, K., Frege, C., Gordon, H., Williamson, C., Heinritzi, M., Simon, M., Yan, C., Almeida, J., Tröstl, J., Nieminen, T., Ortega, I.K., Wagner, R., Adamov, A., Amorim, A., Bernhammer, A.-K., Bianchi, F., Breitenlechner, M., Brilke, S., Chen, X., Craven, J., Dias, A., Ehrhart, S., Flagan, R.C., Franchin, A., Fuchs, C., Guida, R., Hakala, J., Hoyle, C.R., Jokinen, T., Junninen, H., Kangasluoma, J., Kim, J., Krapf, M., Kürten, A., Laaksonen, A., Lehtipalo, K., Makhmutov, V., Mathot, S., Molteni, U., Onnela, A., Peräkylä, O., Piel, F., Petäjä, T., Praplan, A.P., Pringle, K., Rap, A., Richards, N.A.D., Riiipinen, I., Rissanen, M.P., Rondo, L., Sarnela, N., Schobesberger, S., Scott, C.E., Seinfeld, J.H., Sipilä, M., Steiner, G., Stozhkov, Y., Stratmann, F., Tomé, A., Virtanen, A., Vogel, A.L., Wagner, A.C., Wagner, P.E., Weingartner, E., Wimmer, D., Winkler, P.M., Ye, P., Zhang, X., Hansel, A., Dommen, J., Donahue, N.M., Worsnop, D.R., Baltensperger, U., Kulmala, M., Carslaw, K.S., Curtius, J., 2016. Ion-induced nucleation of pure biogenic particles. *Nature* 533, 521–526. doi:10.1038/nature17953
- Kovilakam, M., Deshler, T., 2015. On the accuracy of stratospheric aerosol extinction derived from in situ size distribution measurements and surface area density derived from remote SAGE II and HALOE extinction measurements: STRATOSPHERIC AEROSOL SURFACE AREAS. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 120, 8426–8447. doi:10.1002/2015JD023303
- Kremser, S., Thomason, L.W., von Hobe, M., Hermann, M., Deshler, T., Timmreck, C., Toohey, M., Stenke, A., Schwarz, J.P., Weigel, R., Fueglistaler, S., Prata, F.J., Vernier, J.-P., Schlager, H., Barnes, J.E., Antuña-Marrero, J.-C., Fairlie, D., Palm, M., Mahieu, E., Notholt, J., Rex, M., Bingen, C., Vanhellemont, F., Bourassa, A., Plane, J.M.C., Klocke, D., Carn, S.A., Clarisse, L., Trickl, T., Neely, R., James, A.D., Rieger, L., Wilson, J.C., Meland, B., 2016. Stratospheric aerosol—Observations, processes, and impact on climate. *Rev. Geophys.* 54, 2015RG000511. doi:10.1002/2015RG000511
- Kristiansen, N.I., Prata, A.J., Stohl, A., Carn, S.A., 2015. Stratospheric volcanic ash emissions from the 13 February 2014 Kelut eruption. *Geophys. Res. Lett.* 42, 2014GL062307. doi:10.1002/2014GL062307
- Lee, C., Martin, R.V., van Donkelaar, A., Lee, H., Dickerson, R.R., Hains, J.C., Krotkov, N., Richter, A., Vinnikov, K., Schwab, J.J., 2011. SO<sub>2</sub> emissions and lifetimes: Estimates from inverse modeling using in situ and global, space-based (SCIAMACHY and OMI) observations. *J. Geophys. Res.* 116. doi:10.1029/2010JD014758
- Lenoble, J., Pruvost, P., 1983. Inference of the Aerosol Ångström Coefficient from SAGE Short-Wavelength Data. *J. Clim. Appl. Meteorol.* 22, 1717–1725. doi:10.1175/1520-0450(1983)022<1717:IOTACF>2.0.CO;2
- Livesey, N.J., Fromm, M.D., Waters, J.W., Manney, G.L., Santee, M.L., Read, W.G., 2004. Enhancements in lower stratospheric CH<sub>3</sub> CN observed by the Upper Atmosphere Research Satellite Microwave Limb Sounder following boreal forest fires: ENHANCED MLS CH<sub>3</sub> CN IN STRATOSPHERE. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 109, n/a-n/a. doi:10.1029/2003JD004055
- Llewellyn, E.J., Lloyd, N.D., Degenstein, D.A., Gattinger, R.L., Petelina, S.V., Bourassa, A.E., Wiensz, J.T., Ivanov, E.V., McDade, I.C., Solheim, B.H., McConnell, J.C., Haley, C.S., von Savigny, C., Sioris, C.E., McLinden, C.A., Griffioen, E., Kaminski, J., Evans, W.F., Puckrin, E., Strong, K., Wehrle, V., Hum, R.H., Kendall, D.J., Matsushita, J., Murtagh, D.P., Brohede, S., Stegman, J., Witt, G., Barnes, G., Payne, W.F., Piché, L., Smith, K., Warshaw, G., Deslauniers, D.-L., Marchand, P., Richardson, E.H., King, R.A., Wevers, I., McCreath, W., Kyrölä, E., Oikarinen, L., Leppelmeier, G.W., Auvinen, H., Mégie, G., Hauchecorne, A., Lefèvre, F., de La Nöe, J., Ricaud, P., Frisk, U., Sjöberg, F., von Schéele, F., Nordh, L., 2004. The OSIRIS instrument on the Odin spacecraft. *Can. J. Phys.* 82, 411–422. doi:10.1139/p04-005
- Love, S.G., Joswiak, D.J., Brownlee, D.E., 1994. Densities of Stratospheric Micrometeorites. *Icarus* 111, 227–236. doi:10.1006/icar.1994.1142

- Lurton, T., Renard, J.-B., Vignelles, D., Jeannot, M., Akiki, R., Mineau, J.-L., Tonnelier, T., 2014. Light scattering at small angles by atmospheric irregular particles: modelling and laboratory measurements. *Atmospheric Meas. Tech.* 7, 931–939. doi:10.5194/amt-7-931-2014
- Mallet, M., Dulac, F., Formenti, P., Nabat, P., Sciare, J., Roberts, G., Pelon, J., Ancellet, G., Tanré, D., Parol, F., Denjean, C., Brogniez, G., di Sarra, A., Alados-Arboledas, L., Arndt, J., Auriol, F., Blarel, L., Bourriane, T., Chazette, P., Chevaillier, S., Claeys, M., D'Anna, B., Derimian, Y., Desboeufs, K., Di Iorio, T., Doussin, J.-F., Durand, P., Féron, A., Freney, E., Gaimoz, C., Goloub, P., Gómez-Amo, J.L., Granados-Muñoz, M.J., Grand, N., Hamonou, E., Jankowiak, I., Jeannot, M., Léon, J.-F., Maillé, M., Mailler, S., Meloni, D., Menut, L., Momboisse, G., Nicolas, J., Podvin, T., Pont, V., Rea, G., Renard, J.-B., Roblou, L., Schepanski, K., Schwarzenboeck, A., Sellegri, K., Sicard, M., Solmon, F., Somot, S., Torres, B., Totems, J., Triquet, S., Verdier, N., Verwaerde, C., Waquet, F., Wenger, J., Zapf, P., 2016. Overview of the Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment/Aerosol Direct Radiative Forcing on the Mediterranean Climate (ChArMEx/ADRMED) summer 2013 campaign. *Atmospheric Chem. Phys.* 16, 455–504. doi:10.5194/acp-16-455-2016
- Manney, G.L., Lawrence, Z.D., Santee, M.L., Livesey, N.J., Lambert, A., Pitts, M.C., 2015. Polar processing in a split vortex: Arctic ozone loss in early winter 2012/2013. *Atmospheric Chem. Phys.* 15, 5381–5403. doi:10.5194/acp-15-5381-2015
- Marengo, F., Johnson, B., Turnbull, K., Newman, S., Haywood, J., Webster, H., Ricketts, H., 2011. Airborne lidar observations of the 2010 Eyjafjallajökull volcanic ash plume. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 116, D00U05. doi:10.1029/2011JD016396
- Marsh, D.R., Mills, M.J., Kinnison, D.E., Lamarque, J.-F., Calvo, N., Polvani, L.M., 2013. Climate Change from 1850 to 2005 Simulated in CESM1(WACCM). *J. Clim.* 26, 7372–7391. doi:10.1175/JCLI-D-12-00558.1
- McCormick, M.P., Thomason, L.W., Trepte, C.R., 1995. Atmospheric effects of the Mt Pinatubo eruption. *Nature* 373, 399–404. doi:10.1038/373399a0
- Messenger, S., Nakamura-Messenger, K., Keller, L.P., Clemett, S.J., 2015. Pristine stratospheric collection of interplanetary dust on an oil-free polyurethane foam substrate. *Meteorit. Planet. Sci.* 50, 1468–1485. doi:10.1111/maps.12473
- Mohler, O., Nink, A., Saathoff, H., Schaefers, S., Schnaiter, M., Schock, W., Schurath, U., 2001. The Karlsruhe aerosol chamber facility AIDA: Technical description and first results of homogeneous and heterogeneous ice nucleation experiments. *CERN Eur. Organ. Nucl. Res.-Rep.-CERN* 163–168.
- Morwal, S.B., Maheskumar, R.S., Padma Kumari, B., Kulkarni, J.R., Goswami, B.N., 2012. Cloud microphysical properties over Indian monsoon regions during CAIPEEX-2009. *J. Atmospheric Sol.-Terr. Phys.* 81–82, 76–85. doi:10.1016/j.jastp.2012.04.010
- Murad, E. (Ed.), 2002. *Meteors in the earth's atmosphere: meteoroids and cosmic dust and their interactions with the earth's upper atmosphere.* Cambridge Univ. Press, Cambridge.
- Murad, E., Roth, C., 2004. Evaporation of high speed sporadic meteors. *Atmospheric Chem. Phys.* 4, 737–740.
- Murphy, D.M., Froyd, K.D., Schwarz, J.P., Wilson, J.C., 2014. Observations of the chemical composition of stratospheric aerosol particles: The Composition of Stratospheric Particles. *Q. J. R. Meteorol. Soc.* 140, 1269–1278. doi:10.1002/qj.2213
- Murphy, D.M., Thomson, D.S., 1995. Laser Ionization Mass Spectroscopy of Single Aerosol Particles. *Aerosol Sci. Technol.* 22, 237–249. doi:10.1080/02786829408959743
- Murtagh, D., Frisk, U., Merino, F., Ridal, M., Jonsson, A., Stegman, J., Witt, G., Eriksson, P., Jiménez, C., Megie, G., Noë, J. de la, Ricaud, P., Baron, P., Pardo, J.R., Hauchcorne, A., Llewellyn, E.J., Degenstein, D.A., Gattinger, R.L., Lloyd, N.D., Evans, W.F., McDade, I.C., Haley, C.S., Sioris, C., Savigny, C. von, Solheim, B.H., McConnell, J.C., Strong, K., Richardson, E.H., Leppelmeier, G.W., Kyrölä, E., Auvinen, H., Oikarinen, L., 2002. An overview of the Odin atmospheric mission. *Can. J. Phys.* 80, 309–319. doi:10.1139/p01-157
- Neely, R.R., English, J.M., Toon, O.B., Solomon, S., Mills, M., Thayer, J.P., 2011. Implications of extinction due to meteoritic smoke in the upper stratosphere: EXTINCTION DUE TO METEORITIC SMOKE. *Geophys. Res. Lett.* 38, n/a-n/a. doi:10.1029/2011GL049865
- Neely, R.R., Toon, O.B., Solomon, S., Vernier, J.-P., Alvarez, C., English, J.M., Rosenlof, K.H., Mills, M.J., Bardeen, C.G., Daniel, J.S., Thayer, J.P., 2013. Recent anthropogenic increases in SO<sub>2</sub> from Asia

- have minimal impact on stratospheric aerosol: IMPACT OF ASIAN SO<sub>2</sub> ON THE STRATOSPHERE. *Geophys. Res. Lett.* 40, 999–1004. doi:10.1002/grl.50263
- Niemeier, U., Timmreck, C., Graf, H.-F., Kinne, S., Rast, S., Self, S., 2009. Initial fate of fine ash and sulfur from large volcanic eruptions. *Atmospheric Chem. Phys.* 9, 9043–9057.
- Nilsson, E.D., Pirjola, L., Kulmala, M., 2000. The effect of atmospheric waves on aerosol nucleation and size distribution. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 105, 19917–19926. doi:10.1029/1999JD901102
- North, G.R., Zhang, F., 2015. *Encyclopedia of atmospheric sciences*. Elsevier, Amsterdam [u.a.]
- O'Neill, N., Eck, T., 2008. Spectral Deconvolution Algorithm (SDA) Technical memo Norm O'Neill, Tom Eck, Alexander Smirnov, Brent Holben.
- Ouf, F.X., Yon, J., Ausset, P., Coppalle, A., Maillé, M., 2010. Influence of Sampling and Storage Protocol on Fractal Morphology of Soot Studied by Transmission Electron Microscopy. *Aerosol Sci. Technol.* 44, 1005–1017. doi:10.1080/02786826.2010.507228
- Palumbo, P., Della Corte, V., Rotundi, A., Ciucci, A., Aronica, A., Brucato, J.R., Colangeli, L., Esposito, F., Mazzotta Epifani, E., Mennella, V., others, 2008. DUSTER. Aerosol collection in the stratosphere. *Mem. Della Soc. Astron. Ital.* 79, 853.
- Penner, J.E., Quaas, J., Storelvmo, T., Takemura, T., Boucher, O., Guo, H., Kirkevåg, A., Kristjánsson, J.E., Selund, Ø., 2006. Model intercomparison of indirect aerosol effects. *Atmospheric Chem. Phys.* 6, 3391–3405.
- Pitari, G., Rizi, V., 1993. An Estimate of the Chemical and Radiative Perturbation of Stratospheric Ozone Following the Eruption of Mt. Pinatubo. *J. Atmospheric Sci.* 50, 3260–3276. doi:10.1175/1520-0469(1993)050<3260:AEOTCA>2.0.CO;2
- Plane, J.M.C., 2012. Cosmic dust in the earth's atmosphere. *Chem. Soc. Rev.* 41, 6507. doi:10.1039/c2cs35132c
- Plougonven, R., Zhang, F., 2014. Internal gravity waves from atmospheric jets and fronts. *Rev. Geophys.* 52, 33–76. doi:10.1002/2012RG000419
- Plumb, R.A., 2002. Stratospheric Transport. *J. Meteorol. Soc. Jpn. Ser II* 80, 793–809. doi:10.2151/jmsj.80.793
- Plumb, R.A., Bell, R.C., 1982. A model of the quasi-biennial oscillation on an equatorial beta-plane. *Q. J. R. Meteorol. Soc.* 108, 335–352. doi:10.1002/qj.49710845604
- Polvani, L.M., Waugh, D.W., Plumb, R.A., 1995. On the Subtropical Edge of the Stratospheric Surf Zone. *J. Atmospheric Sci.* 52, 1288–1309.
- Popova, O.P., Jenniskens, P., Emel'yanenko, V., Kartashova, A., Biryukov, E., Khaibrakhmanov, S., Shuvalov, V., Rybnov, Y., Dudorov, A., Grokhovskiy, V.I., Badyukov, D.D., Yin, Q.-Z., Gural, P.S., Albers, J., Granvik, M., Evers, L.G., Kuiper, J., Kharlamov, V., Solovyov, A., Rusakov, Y.S., Korotkiy, S., Serdyuk, I., Korochantsev, A.V., Larionov, M.Y., Glazachev, D., Mayer, A.E., Gisler, G., Gladkovskiy, S.V., Wimpenny, J., Sanborn, M.E., Yamakawa, A., Verosub, K.L., Rowland, D.J., Roeske, S., Botto, N.W., Friedrich, J.M., Zolensky, M.E., Le, L., Ross, D., Ziegler, K., Nakamura, T., Ahn, I., Lee, J.I., Zhou, Q., Li, X.-H., Li, Q.-L., Liu, Y., Tang, G.-Q., Hiroi, T., Sears, D., Weinstein, I.A., Vokhmintsev, A.S., Ishchenko, A.V., Schmitt-Kopplin, P., Hertkorn, N., Nagao, K., Haba, M.K., Komatsu, M., Mikouchi, T., (the Chelyabinsk Airburst Consortium), 2013. Chelyabinsk Airburst, Damage Assessment, Meteorite Recovery, and Characterization. *Science* 342, 1069–1073. doi:10.1126/science.1242642
- Portafaix, T., Morel, B., Bencherif, H., Baldy, S., Godin-Beekmann, S., Hauchecorne, A., 2003. Fine-scale study of a thick stratospheric ozone lamina at the edge of the southern subtropical barrier. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 108, 4196. doi:10.1029/2002JD002741
- Prata, A.J., Dezitter, F., Davies, I., Weber, K., Birnfeld, M., Moriano, D., Bernardo, C., Vogel, A., Prata, G.S., Mather, T.A., Thomas, H.E., Cammas, J., Weber, M., 2016. Artificial cloud test confirms volcanic ash detection using infrared spectral imaging. *Sci. Rep.* 6. doi:10.1038/srep25620
- Pueschel, R.F., Blake, D.F., Snetsinger, K.G., Hansen, A.D.A., Verma, S., Kato, K., 1992. Black carbon (soot) aerosol in the lower stratosphere and upper troposphere. *Geophys. Res. Lett.* 19, 1659–1662. doi:10.1029/92GL01801
- Ramachandran, S., Jayaraman, A., 2003. Balloon-borne study of the upper tropospheric and stratospheric aerosols over a tropical station in India. *Tellus B* 55, 820–836.
- Ramanathan, V., 2001. Aerosols, Climate, and the Hydrological Cycle. *Science* 294, 2119–2124. doi:10.1126/science.1064034

- Randel, W.J., Holton, J.R., Alexander, M.J., Hirota, I., Horinouchi, T., Jones, D.B.A., Kinnersley, J.S., Marquardt, C., Sato, K., Takahashi, M., 2001. The quasi-biennial oscillation. *Rev Geophys* 39, 1520–0469.
- Rapp, M., Strelnikova, I., Gumbel, J., 2007. Meteoric smoke particles: Evidence from rocket and radar techniques. *Adv. Space Res.* 40, 809–817. doi:10.1016/j.asr.2006.11.021
- Renard, J.-B., Berthet, G., Brogniez, C., Catoire, V., Fussen, D., Goutail, F., Oelhaf, H., Pommereau, J.-P., Roscoe, H.K., Wetzell, G., Chartier, M., Robert, C., Balois, J.-Y., Verwaerde, C., Auriol, F., François, P., Gaubicher, B., Wursteisen, P., 2008a. Validation of GOMOS-Envisat vertical profiles of O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, NO<sub>3</sub>, and aerosol extinction using balloon-borne instruments and analysis of the retrievals. *J. Geophys. Res. Space Phys.* 113, A02302. doi:10.1029/2007JA012345
- Renard, J.-B., Berthet, G., Robert, C., Chartier, M., Pirre, M., Brogniez, C., Herman, M., Verwaerde, C., Balois, J.-Y., Ovarlez, J., Ovarlez, H., Crespin, J., Deshler, T., 2002. Optical and physical properties of stratospheric aerosols from balloon measurements in the visible and near-infrared domains. II. Comparison of extinction, reflectance, polarization, and counting measurements. *Appl. Opt.* 41, 7540–7549.
- Renard, J.-B., Berthet, G., Salazar, V., Catoire, V., Tagger, M., Gaubicher, B., Robert, C., 2010. In situ detection of aerosol layers in the middle stratosphere. *Geophys. Res. Lett.* 37, L20803. doi:10.1029/2010GL044307
- Renard, J.-B., Brogniez, C., Berthet, G., Bourgeois, Q., Gaubicher, B., Chartier, M., Balois, J.-Y., Verwaerde, C., Auriol, F., François, P., Daugeron, D., Engrand, C., 2008b. Vertical distribution of the different types of aerosols in the stratosphere: Detection of solid particles and analysis of their spatial variability. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 113, D21303. doi:10.1029/2008JD010150
- Renard, J.-B., Dulac, F., Berthet, G., Lurton, T., Vignelles, D., Jégou, F., Tonnelier, T., Jeannot, M., Couté, B., Akiki, R., Verdier, N., Mallet, M., Gensdarmes, F., Charpentier, P., Mesmin, S., Duverger, V., Dupont, J.-C., Elias, T., Crenn, V., Sciare, J., Zieger, P., Salter, M., Roberts, T., Giacomoni, J., Gobbi, M., Hamonou, E., Olafsson, H., Dagsson-Waldhauserova, P., Camy-Peyret, C., Mazel, C., Décamps, T., Piringer, M., Surcin, J., Daugeron, D., 2016. LOAC: a small aerosol optical counter/sizer for ground-based and balloon measurements of the size distribution and nature of atmospheric particles – Part 1: Principle of measurements and instrument evaluation. *Atmospheric Meas. Tech.* 9, 1721–1742. doi:10.5194/amt-9-1721-2016
- Renard, J.-B., Dulac, F., Berthet, G., Lurton, T., Vignelles, D., Jégou, F., Tonnelier, T., Jeannot, M., Couté, B., Akiki, R., Verdier, N., Mallet, M., Gensdarmes, F., Charpentier, P., Mesmin, S., Duverger, V., Dupont, J.-C., Elias, T., Crenn, V., Sciare, J., Zieger, P., Salter, M., Roberts, T., Giacomoni, J., Gobbi, M., Hamonou, E., Olafsson, H., Dagsson-Waldhauserova, P., Camy-Peyret, C., Mazel, C., Décamps, T., Piringer, M., Surcin, J., Daugeron, D., 2016. LOAC: a small aerosol optical counter/sizer for ground-based and balloon measurements of the size distribution and nature of atmospheric particles – Part 2: First results from balloon and unmanned aerial vehicle flights. *Atmos Meas Tech* 9, 3673–3686. doi:10.5194/amt-9-3673-2016
- Renard, J.-B., Tripathi, S.N., Michael, M., Rawal, A., Berthet, G., Fullekrug, M., Harrison, R.G., Robert, C., Tagger, M., Gaubicher, B., 2013. In situ detection of electrified aerosols in the upper troposphere and stratosphere. *Atmospheric Chem. Phys.* 13, 11187–11194. doi:10.5194/acp-13-11187-2013
- Renoux, A., Boulaud, D., 1998. *Les aérosols: physique et métrologie*. Tec & Doc Lavoisier.
- Rieger, L.A., Bourassa, A.E., Degenstein, D.A., 2014. Odin–OSIRIS detection of the Chelyabinsk meteor. *Atmospheric Meas. Tech.* 7, 777–780. doi:10.5194/amt-7-777-2014
- Rivière, E.D., Huret, N., G.-Taupin, F., Renard, J.-B., Pirre, M., Eckermann, S.D., Larsen, N., Deshler, T., Lefèvre, F., Payan, S., Camy-Peyret, C., 2000. Role of lee waves in the formation of solid polar stratospheric clouds: Case studies from February 1997. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 105, 6845–6853. doi:10.1029/1999JD900908
- Roberts, T.J., Braban, C.F., Oppenheimer, C., Martin, R.S., Freshwater, R.A., Dawson, D.H., Griffiths, P.T., Cox, R.A., Saffell, J.R., Jones, R.L., 2012. Electrochemical sensing of volcanic gases. *Chem. Geol.* 332–333, 74–91. doi:10.1016/j.chemgeo.2012.08.027
- Roberts, T.J., Martin, R.S., Jourdain, L., 2014. Reactive bromine chemistry in Mount Etna’s volcanic plume: the influence of total Br, high-temperature processing, aerosol loading and plume–air mixing. *Atmos Chem Phys* 14, 11201–11219. doi:10.5194/acp-14-11201-2014
- Robock, A., 2000. Volcanic eruptions and climate. *Rev. Geophys.* 38, 191–219.
- Rochas, M., 2002. Il y a un siècle. Le contexte scientifique de la surprenante découverte de la stratosphère.

- Rohatschek, H., 1996. Levitation of stratospheric and mesospheric aerosols by gravito-photophoresis. *J. Aerosol Sci.* 27, 467–475. doi:10.1016/0021-8502(95)00556-0
- Rouessac, F., Rouessac, A., Cruché, D., Duverger-Arfulso, C., Martel, A., Férey, G., Ourisson, G., 2009. *Analyse chimique méthodes et techniques instrumentales: cours et exercices corrigés*. Dunod, Paris.
- Russell, P.B., Livingston, J.M., Pueschel, R.F., Bauman, J.J., Pollack, J.B., Brooks, S.L., Hamill, P., Thomason, L.W., Stowe, L.L., Deshler, T., Dutton, E.G., Bergstrom, R.W., 1996. Global to microscale evolution of the Pinatubo volcanic aerosol derived from diverse measurements and analyses. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 101, 18745–18763. doi:10.1029/96JD01162
- Salazar, V., 2010. *Etude des propriétés physiques des aérosols de la moyenne et haute atmosphère à partir d'une nouvelle analyse des observations du GOMOS-ENVISAT pour la période 2002-2006*. Orléans.
- Salter, M.E., Nilsson, E.D., Butcher, A., Bilde, M., 2014. On the seawater temperature dependence of the sea spray aerosol generated by a continuous plunging jet. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 119, 9052–9072. doi:10.1002/2013JD021376
- Salter, M.E., Zieger, P., Acosta Navarro, J.C., Grythe, H., Kirkevåg, A., Rosati, B., Riipinen, I., Nilsson, E.D., 2015. An empirically derived inorganic sea spray source function incorporating sea surface temperature. *Atmospheric Chem. Phys.* 15, 11047–11066. doi:10.5194/acp-15-11047-2015
- Sander, S.P., Friedl, R.R., 2011. *Chemical kinetics and photochemical data for use in atmospheric studies*.
- Schuster, G.L., Dubovik, O., Holben, B.N., 2006. Angstrom exponent and bimodal aerosol size distributions. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 111, D07207. doi:10.1029/2005JD006328
- Schwarz, J.P., Gao, R.S., Fahey, D.W., Thomson, D.S., Watts, L.A., Wilson, J.C., Reeves, J.M., Darbeheshti, M., Baumgardner, D.G., Kok, G.L., Chung, S.H., Schulz, M., Hendricks, J., Lauer, A., Kärcher, B., Slowik, J.G., Rosenlof, K.H., Thompson, T.L., Langford, A.O., Loewenstein, M., Aikin, K.C., 2006. Single-particle measurements of midlatitude black carbon and light-scattering aerosols from the boundary layer to the lower stratosphere. *J. Geophys. Res.* 111. doi:10.1029/2006JD007076
- Schwarz, J.P., Spackman, J.R., Fahey, D.W., Gao, R.S., Lohmann, U., Stier, P., Watts, L.A., Thomson, D.S., Lack, D.A., Pfister, L., Mahoney, M.J., Baumgardner, D., Wilson, J.C., Reeves, J.M., 2008. Coatings and their enhancement of black carbon light absorption in the tropical atmosphere. *J. Geophys. Res.* 113. doi:10.1029/2007JD009042
- Scollo, S., Prestifilippo, M., Pecora, E., Corradini, S., Merucci, L., Spata, G., Coltelli, M., 2014. Eruption column height estimation of the 2011-2013 Etna lava fountains. *Ann. Geophys.* doi:10.4401/ag-6396
- Seftor, C.J., Jaross, G., Kowitt, M., Haken, M., Li, J., Flynn, L.E., 2014. Postlaunch performance of the Suomi National Polar-orbiting Partnership Ozone Mapping and Profiler Suite (OMPS) nadir sensors: Performance of SNPP OMPS nadir sensors. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 119, 4413–4428. doi:10.1002/2013JD020472
- Seinfeld, J.H., Pandis, S.N., 2006. *Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change*, 2nd ed. ed. J. Wiley, Hoboken, N.J.
- Sheng, J.-X., Weisenstein, D.K., Luo, B.-P., Rozanov, E., Stenke, A., Anet, J., Bingemer, H., Peter, T., 2015. Global atmospheric sulfur budget under volcanically quiescent conditions: Aerosol-chemistry-climate model predictions and validation. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 120, 256–276. doi:10.1002/2014JD021985
- Sheridan, P.J., Brock, C.A., Wilson, J.C., 1994. Aerosol particles in the upper troposphere and lower stratosphere: Elemental composition and morphology of individual particles in northern midlatitudes. *Geophys. Res. Lett.* 21, 2587–2590. doi:10.1029/94GL01387
- Slingo, J., Palmer, T., 2011. Uncertainty in weather and climate prediction. *Philos. Trans. R. Soc. Math. Phys. Eng. Sci.* 369, 4751–4767. doi:10.1098/rsta.2011.0161
- Slowik, J.G., Cross, E.S., Han, J.-H., Kolucki, J., Davidovits, P., Williams, L.R., Onasch, T.B., Jayne, J.T., Kolb, C.E., Worsnop, D.R., 2007. Measurements of Morphology Changes of Fractal Soot Particles using Coating and Denuding Experiments: Implications for Optical Absorption and Atmospheric Lifetime. *Aerosol Sci. Technol.* 41, 734–750. doi:10.1080/02786820701432632
- Solomon, S., 1999. Stratospheric ozone depletion: A review of concepts and history. *Rev. Geophys.* 37, 275–316. doi:10.1029/1999RG900008
- Solomon, S., Daniel, J.S., Neely, R.R., Vernier, J.-P., Dutton, E.G., Thomason, L.W., 2011. The Persistently Variable “Background” Stratospheric Aerosol Layer and Global Climate Change. *Science* 333, 866–870. doi:10.1126/science.1206027

- SPARC, 2006. Assessment of Stratospheric Aerosol Properties (ASAP) SPARC Report No.4, WCRP-124, WMO/TD-No. 1295.
- Steele, H.M., Hamill, P., 1981. Effects of temperature and humidity on the growth and optical properties of sulphuric acid—water droplets in the stratosphere. *J. Aerosol Sci.* 12, 517–528. doi:10.1016/0021-8502(81)90054-9
- Stephens, M., Turner, N., Sandberg, J., 2003. Particle identification by laser-induced incandescence in a solid-state laser cavity. *Appl. Opt.* 42, 3726–3736.
- Stohl, A., Hittenberger, M., Wotawa, G., 1998. Validation of the Lagrangian particle dispersion model FLEXPART against large-scale tracer experiment data. *Atmos. Environ.* 32, 4245–4264.
- Stolzenburg, M.R., McMurry, P.H., 1991. An Ultrafine Aerosol Condensation Nucleus Counter. *Aerosol Sci. Technol.* 14, 48–65. doi:10.1080/02786829108959470
- Stommel, H.M., Stommel, E., 1983. *Volcano weather: the story of 1816, the year without a summer.* Seven Seas Press, Newport, R.I.
- Stothers, R.B., 2001. A chronology of annual mean effective radii of stratospheric aerosols from volcanic eruptions during the twentieth century as derived from ground-based spectral extinction measurements. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 106, 32043–32049. doi:10.1029/2001JD000414
- Stothers, R.B., 1984. The Great Tambora Eruption in 1815 and Its Aftermath. *Science* 224, 1191–1198. doi:10.1126/science.224.4654.1191
- Strawa, A.W., Drdla, K., Ferry, G.V., Verma, S., Pueschel, R.F., Yasuda, M., Salawitch, R.J., Gao, R.S., Howard, S.D., Bui, P.T., Loewenstein, M., Elkins, J.W., Perkins, K.K., Cohen, R., 1999. Carbonaceous aerosol (soot) measured in the lower stratosphere during POLARIS and its role in stratospheric photochemistry. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 104, 26753–26766. doi:10.1029/1999JD900453
- Tavakoli, F., Olfert, J.S., 2013. An Instrument for the Classification of Aerosols by Particle Relaxation Time: Theoretical Models of the Aerodynamic Aerosol Classifier. *Aerosol Sci. Technol.* 47, 916–926. doi:10.1080/02786826.2013.802761
- Textor, C., 2003. Injection of gases into the stratosphere by explosive volcanic eruptions. *J. Geophys. Res.* 108. doi:10.1029/2002JD002987
- Thomason, L., Peter, T., 2006. SPARC Assessment of Stratospheric Aerosol Properties (ASAP). SPARC Office.
- Thomason, L.W., Moore, J.R., Pitts, M.C., Zawodny, J.M., Chiou, E.W., 2010. An evaluation of the SAGE III version 4 aerosol extinction coefficient and water vapor data products. *Atmospheric Chem. Phys.* 10, 2159–2173.
- Thomason, L.W., Poole, L.R., Deshler, T., 1997. A global climatology of stratospheric aerosol surface area density deduced from Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II measurements: 1984–1994. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 102, 8967–8976. doi:10.1029/96JD02962
- Thomson, D.S., Schein, M.E., Murphy, D.M., 2000. Particle Analysis by Laser Mass Spectrometry WB-57F Instrument Overview. *Aerosol Sci. Technol.* 33, 153–169. doi:10.1080/027868200410903
- Toon, O.B., Turco, R.P., Westphal, D., Malone, R., Liu, M., 1988. A Multidimensional Model for Aerosols: Description of Computational Analogs. *J. Atmospheric Sci.* 45, 2123–2144. doi:10.1175/1520-0469(1988)045<2123:AMMFAD>2.0.CO;2
- Trepte, C.R., Hitchman, M.H., 1992. Tropical stratospheric circulation deduced from satellite aerosol data. *Nature* 355, 626–628. doi:10.1038/355626a0
- Vernier, J.-P., 2010. Les aérosols et le transport dans la haute troposphère et la stratosphère tropicale à partir des mesures du lidar spatial CALIPSO. Université de Versailles-Saint Quentin en Yvelines.
- Vernier, J.-P., Fairlie, T.D., Deshler, T., Natarajan, M., Knepp, T., Foster, K., Wienhold, F.G., Bedka, K., Thomason, L., Trepte, C., 2016. In situ and space-based observations of the Kelud volcanic plume: The persistence of ash in the lower stratosphere. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 2016JD025344. doi:10.1002/2016JD025344
- Vernier, J.-P., Fairlie, T.D., Natarajan, M., Wienhold, F.G., Bian, J., Martinsson, B.G., Crumeyrolle, S., Thomason, L.W., Bedka, K.M., 2015a. Increase in upper tropospheric and lower stratospheric aerosol levels and its potential connection with Asian pollution. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 120, 2014JD022372. doi:10.1002/2014JD022372
- Vernier, J.-P., Fairlie, T.D., Natarajan, M., Wienhold, F.G., Bian, J., Martinsson, B.G., Crumeyrolle, S., Thomason, L.W., Bedka, K.M., 2015b. Increase in upper tropospheric and lower stratospheric



- aerosol levels and its potential connection with Asian pollution: ATAL nature and origin. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 120, 1608–1619. doi:10.1002/2014JD022372
- Vernier, J.-P., Pommereau, J.P., Garnier, A., Pelon, J., Larsen, N., Nielsen, J., Christensen, T., Cairo, F., Thomason, L.W., Leblanc, T., McDermid, I.S., 2009. Tropical stratospheric aerosol layer from CALIPSO lidar observations. *J. Geophys. Res.* 114. doi:10.1029/2009JD011946
- Vernier, J.-P., Thomason, L.W., Kar, J., 2011a. CALIPSO detection of an Asian tropopause aerosol layer. *Geophys. Res. Lett.* 38, L07804. doi:10.1029/2010GL046614
- Vernier, J.-P., Thomason, L.W., Pommereau, J.-P., Bourassa, A., Pelon, J., Garnier, A., Hauchecorne, A., Blanot, L., Trepte, C., Degenstein, D., Vargas, F., 2011b. Major influence of tropical volcanic eruptions on the stratospheric aerosol layer during the last decade. *Geophys. Res. Lett.* 38, L12807. doi:10.1029/2011GL047563
- Vignelles, D., Roberts, T.J., Carboni, E., Ilyinskaya, E., Pfeiffer, M., Dagsson Waldhauserova, P., Schmidt, A., Berthet, G., Jegou, F., Renard, J.-B., Ólafsson, H., Bergsson, B., Yeo, R., Fannar Reynisson, N., Grainger, R.G., Galle, B., Conde, V., Arellano, S., Lurton, T., Coute, B., Duverger, V., 2016. Balloon-borne measurement of the aerosol size distribution from an Icelandic flood basalt eruption. *Earth Planet. Sci. Lett.* 453, 252–259. doi:10.1016/j.epsl.2016.08.027
- von Savigny, C., Ernst, F., Rozanov, A., Hommel, R., Eichmann, K.-U., Rozanov, V., Burrows, J.P., Thomason, L.W., 2015. Improved stratospheric aerosol extinction profiles from SCIAMACHY: validation and sample results. *Atmospheric Meas. Tech.* 8, 5223–5235. doi:10.5194/amt-8-5223-2015
- Wang, J., Doussin, J.F., Perrier, S., Perraudin, E., Katrib, Y., Pangu, E., Picquet-Varrault, B., 2011. Design of a new multi-phase experimental simulation chamber for atmospheric photochemistry, aerosol and cloud chemistry research. *Atmos Meas Tech* 4, 2465–2494. doi:10.5194/amt-4-2465-2011
- Warner, J., 1969. The Microstructure of Cumulus Cloud. Part I. General Features of the Droplet Spectrum. *J. Atmospheric Sci.* 26, 1049–1059. doi:10.1175/1520-0469(1969)026<1049:TMOCPP>2.0.CO;2
- Watanabe, K., 1958. Ultraviolet Absorption Processes in the Upper Atmosphere, in: *Advances in Geophysics*. Elsevier, pp. 153–221.
- Watson, P.A.G., 2013. The influence of the quasi-biennial oscillation on the stratospheric polar vortices (Ph.D.). University of Oxford.
- Waugh, D., Hall, T., 2002. Age of Stratospheric Air: Theory, Observations, and Models. *Rev. Geophys.* 40, 1010. doi:10.1029/2000RG000101
- Waugh, D.W., Polvani, L.M., 2010. Stratospheric polar vortices, in: Polvani, L.M., Sobel, A.H., Waugh, D.W. (Eds.), *Geophysical Monograph Series*. American Geophysical Union, Washington, D. C., pp. 43–57.
- Weigel, R., Volk, C.M., Kandler, K., Hösen, E., Günther, G., Vogel, B., Groß, J.-U., Khaykin, S., Belyaev, G.V., Borrmann, S., 2014. Enhancements of the refractory submicron aerosol fraction in the Arctic polar vortex: feature or exception? *Atmos Chem Phys* 14, 12319–12342. doi:10.5194/acp-14-12319-2014
- WIGOS Report, 2013. GCOS Reference Upper-Air Network.
- Wilson, J.C., Hyun, J.H., Blackshear, E.D., 1983. The function and response of an improved stratospheric condensation nucleus counter. *J. Geophys. Res. Oceans* 88, 6781–6785. doi:10.1029/JC088iC11p06781
- Winker, D.M., Pelon, J., Coakley, J.A., Ackerman, S.A., Charlson, R.J., Colarco, P.R., Flamant, P., Fu, Q., Hoff, R.M., Kittaka, C., Kubar, T.L., Le Treut, H., McCormick, M.P., Mégie, G., Poole, L., Powell, K., Trepte, C., Vaughan, M.A., Wielicki, B.A., 2010. The CALIPSO Mission: A Global 3D View of Aerosols and Clouds. *Bull. Am. Meteorol. Soc.* 91, 1211–1229. doi:10.1175/2010BAMS3009.1
- Winker, D.M., Tackett, J.L., Getzewich, B.J., Liu, Z., Vaughan, M.A., Rogers, R.R., 2013. The global 3-D distribution of tropospheric aerosols as characterized by CALIOP. *Atmospheric Chem. Phys.* 13, 3345–3361. doi:10.5194/acp-13-3345-2013
- Witschger, O., 1996. Étude théorique et expérimentale des facteurs physiques d'échantillonnage des polluants particulaires: application aux capteurs à fente annulaire.
- Xu, P.Q., Bhartia, P.K., Jaross, G.R., DeLand, M.T., Larsen, J.C., Fleig, A., Kahn, D., Zhu, T., Chen, Z., Gorkavyyi, N., Warner, J., Linda, M., Chen, H., Kowitt, M., Haken, M., Hall, P., 2014. Release 2 data products from the Ozone Mapping and Profiler Suite (OMPS) Limb Profiler, in: Comerón, A., Kassianov, E.I., Schäfer, K., Picard, R.H., Stein, K., Gonglewski, J.D. (Eds.), . p. 92420K. doi:10.1117/12.2067320

Zanini, A., Ongaro, C., Durisi, E., Visca, L., DeAgostini, S., Fasolo, F., Pelliccioni, M., Saavedra, O., 2003. Differential Neutron Flux in Atmosphere at Various Geophysical Conditions, in: International Cosmic Ray Conference. p. 4291.

## **Damien VIGNELLES**

### **Caractérisation des performances du nouveau mini compteur de particules LOAC embarqué sous ballon météorologique :**

application à l'étude de la variabilité spatiale et temporelle des aérosols de la haute troposphère et de la stratosphère

#### Résumé :

L'étude des aérosols stratosphériques est importante pour comprendre le bilan radiatif terrestre. A l'heure actuelle, notre représentation des différents types de particules stratosphériques et leurs répartitions spatiale et temporelle n'est pas complète.

Au cours de cette thèse, nous tentons de montrer que la mesure de la concentration en particules sous ballon météorologique au moyen d'un nouveau mini compteur de particules, le LOAC, pourrait permettre de rendre compte de la possible variabilité locale du contenu en aérosols stratosphériques dans la gamme de taille 0,2 à 100  $\mu\text{m}$  en diamètre. La première partie de ce travail consiste à caractériser plus précisément les performances du LOAC sous ballon météorologique appliqué à la mesure en stratosphère. La seconde partie propose une analyse comparée du contenu en aérosols stratosphériques obtenu par LOAC, à partir de lâchers de ballons en France régulièrement depuis 3 ans et plus ponctuellement à l'étranger dans des situations particulières (volcan, mousson), et par d'autres types de données (Observations spatiales, lidar sol et simulation globale). Nous montrons alors que l'instrument possède une limite de détection rendant difficile la mesure des particules submicroniques lors de période de fond en moyenne stratosphère pour des concentrations de l'ordre d'une particule par  $\text{cm}^3$ . Dans sa version actuelle, le LOAC permet de documenter les panaches volcaniques en troposphère ainsi qu'en basse stratosphère. En perspective, nous proposons des directions pour la calibration et l'analyse des futures données d'une nouvelle génération de l'instrument en développement.

### **Characterisation of the capabilities of the new balloon-borne miniature particulate counter LOAC:**

application to the study of spatial and temporal variability of aerosols in the upper troposphere and stratosphere

#### Abstract:

The study of the stratospheric aerosols is important to our understanding of the terrestrial radiative budget. Our current comprehension of the different types of stratospheric particles and their spatial and temporal distribution is incomplete.

In the present study, we try to show that measuring particle concentrations by the means of a new balloon-borne miniature particle counter, the LOAC, may allow us to determine the local variability in stratospheric aerosols in the size range 0.2 – 100  $\mu\text{m}$  in diameter. In that respect, the PhD thesis consists of a first phase of a more accurate characterisation of the LOAC's performances under balloon-borne measurement. A second phase consists of comparative analysis of stratospheric aerosol content based on a LOAC dataset obtained during a continuous campaign of balloon launches in France, along with some occasional flights abroad under particular circumstances (volcanic eruption, monsoon). Thus we show that the LOAC has a detection limit that restricts the measurement of submicronic particles in volcanic quiescent periods for concentrations lower than typically 1 particle per  $\text{cm}^3$ . In its current version, the LOAC allows us to characterise aerosols in volcanic plumes in the troposphere and lower stratosphere. And, further, we propose directions concerning possible calibration and analysis strategies for the future data from the next generation of the LOAC currently in development.

**LPC2E - 3A, avenue de la recherche scientifique  
45071 Orléans cedex 2**