



**Campagne LIDAR INTERREG III $\mu$   
Strasbourg 2003**

**RAPPORT FINAL**

Laboratoire Central de Surveillance de la  
Qualité de l'Air

Convention 115/2003

*Emeric FREJAFON*

*Unité Qualité de l'Air – Direction des Risques Chroniques*

Décembre 2003

# CAMPAGNE LIDAR INTERREG III $\mu$ STRASBOURG 2003

## RAPPORT FINAL

### LABORATOIRE CENTRAL DE SURVEILLANCE DE LA QUALITE DE L'AIR

Convention 115/2003 financée par la Direction des Préventions des  
Pollutions et des Risques (DPPR)

**DECEMBRE 2003**

personnes ayant participé à l'étude

Emeric FREJAFON, Amandine FIEVET, Fabrice NICOLAS-GUIZON

Ce document comporte 54 pages (hors couverture).

	<b>Rédaction</b>	<b>Vérification</b>	<b>Approbation</b>
<b>NOM</b>	Emeric FREJAFON	Rémi PERRET	Martine RAMEL
<b>Qualité</b>	Ingénieur Unité AIRE	Responsable Unité AIRE	Responsable LCSQA/INERIS
<b>Visa</b>			

## TABLE DES MATIERES

<b>TABLE DES MATIÈRES</b>	<b>2</b>
<b>RÉSUMÉ</b>	<b>4</b>
<b>SYNTHÈSE GÉNÉRALE</b>	<b>5</b>
<b>INTRODUCTION</b>	<b>9</b>
<b>1. CADRE DE L'ÉTUDE ET OBJECTIFS :</b>	<b>10</b>
<b>2. GLOSSAIRE</b>	<b>10</b>
<b>3. MISE EN PLACE DE LA CAMPAGNE</b>	<b>11</b>
3.1 CADRE ET OBJECTIFS DE LA CAMPAGNE	11
3.2 LOCALISATION DES SITES DE MESURES	12
3.3 INSTRUMENT UTILISÉ ET MISE EN PLACE DU SITE	14
3.4 DESCRIPTION DE L'INSTRUMENT	14
3.4.1 L'ÉQUATION LIDAR	15
3.4.2 LE PROFILER D'OZONE ELIGHT	17
3.5 CONTRAINTES LIÉES À L'INSTALLATION DU LIDAR PROFILER O <sub>3</sub>	19
<b>4. TAUX DE FONCTIONNEMENT</b>	<b>20</b>
4.1 FONCTIONNEMENT DU PROFILER O <sub>3</sub>	20
4.1.1 DYSFONCTIONNEMENTS RENCONTRÉS	20
4.2 TAUX DE DONNÉES O <sub>3</sub> ET VALIDATION DES MESURES	21
<b>5. RÉSULTATS OZONE ET AÉROSOLS</b>	<b>22</b>
5.1 DESCRIPTION DES RÉSULTATS OBTENUS	22
5.2 ÉTUDE DÉTAILLÉE DES MESURES LIDAR	22
5.2.1 COMPARAISON DES 3 PROFILS VERTICAUX DE CONCENTRATION EN OZONE	23
5.2.2 COUPLAGE LIDAR-ANALYSEURS, COMPARAISON DES MESURES	25
5.2.3 COUPLAGE LIDAR-ANALYSEUR POUR LE 31 MAI 2003 (INFLUENCE DU RAYONNEMENT SUR LA DYNAMIQUE VERTICALE)	27
5.2.4 ÉTUDE DU 2 JUIN 2003 (INFLUENCE D'UN ORAGE DE CHALEUR)	31

<b>5.3</b>	<b>INFLUENCE DE LA COUCHE LIMITE SUR LA CONCENTRATION EN OZONE</b>	<b>32</b>
5.3.1	CYCLE DIURNE DE L'OZONE, JOURNÉE DU 15 JUIN 2003	33
5.3.2	ESSAIS DE QUANTIFICATION DES AÉROSOLS ATMOSPHÉRIQUES PAR LIDAR	34
<b>6.</b>	<b>CONCLUSION GÉNÉRALE</b>	<b>36</b>
<b>7.</b>	<b>LISTE DES ANNEXES</b>	<b>39</b>
<b><u>ANNEXE A : PARTENAIRES DE LA CAMPAGNE DE MESURE INTERREG III<sub>μ</sub></u></b>		<b>40</b>
<b><u>ANNEXE B : LES MOYENS MIS EN ŒUVRE LORS DE LA CAMPAGNE INTERREG III<sub>μ</sub></u></b>		<b>42</b>
<b><u>ANNEXE C : INTERACTION ÉLASTIQUE DE LA LUMIÈRE AVEC LA MATIÈRE : LA DIFFUSION RAYLEIGH</u></b>		<b>46</b>
<b><u>ANNEXE D : INTERACTION ÉLASTIQUE DE LA LUMIÈRE AVEC LA MATIÈRE : LA DIFFUSION MIE</u></b>		<b>48</b>
<b><u>ANNEXE E : LA MÉTHODE D'INVERSION DE KLETT</u></b>		<b>50</b>
<b><u>ANNEXE F : EXEMPLES DES RÉSULTATS LIDAR AU FORMAT TEXTE ET BMP</u></b>		<b>54</b>

## RESUME

Nous avons participé à la campagne INTERREG III $\mu$  du 12 mai au 15 juin 2003 sur la région de Strasbourg, en mettant à disposition un LIDAR profiler d'ozone vertical. Outre la fourniture de données en continue durant l'ensemble de la période de mesure, cette campagne a permis de confirmer le rendu opérationnel de ces nouveaux LIDAR qui autorisent des mesures autonomes sur de longues périodes. En effet, cet instrument a fonctionné en continu avec une excellente disponibilité des mesures durant 3 semaines de campagne intensive, fournissant des profils verticaux du sol à la troposphère libre de concentration en ozone et d'extinction atmosphérique, avec une intégration spatiale d'environ 50 m et une intégration temporelle de 10 minutes.

La mise en comparaison des données LIDAR avec des analyseurs ponctuels a permis de démontrer l'adéquation entre les concentration d'ozone lorsque les points de mesure considérés sont issus de couches identiques, situation délicate à réaliser du fait de leur non-colocalisation spatiale. Par ailleurs, le couplage entre des données LIDAR et des mesures ponctuelles a permis de mettre en évidence leur complémentarité dans la compréhension de la stratification atmosphérique et sa dynamique spatio-temporelle.

Ainsi, les résultats obtenus ont permis de montrer l'influence des échanges verticaux atmosphériques dans l'apparition d'un épisode de pollution à l'ozone mais également l'effet d'un panache urbain sur une zone rurale sous le vent.

Enfin, une première évaluation de caractérisation des aérosols a été réalisée, permettant de définir la répartition verticale de charge en aérosols et ses propriétés microphysiques associées.

## SYNTHESE GENERALE

L'INERIS, dans le cadre de sa mission d'assistance auprès des AASQA, avait programmé la réalisation d'une campagne LIDAR en partenariat avec une association agréée de surveillance de la qualité de l'air, avec pour objectif principal, de démontrer la faisabilité d'une surveillance en continu de la concentration en ozone du sol à la troposphère libre comme outil de paramétrage et instrument de validation de modèles tridimensionnels.

Après enquête auprès des AASQA et en concertation avec le MEDD et l'ADEME, il a été décidé de participer à la campagne INTERREG IIIμ coordonnée par l'ASPA.

Le projet INTERREG III est la poursuite d'un programme engagé depuis plusieurs années sur la connaissance des effets transfrontières et leur modélisation. Dans ce cadre, il s'agissait de construire une base de données tridimensionnelles devant servir d'outils de paramétrage et d'instrument de validation d'un modèle photochimique spécifique du domaine d'étude. En effet, l'utilisation de données de pollution et de météo issues de campagnes réalisées dans d'autres zones géographiques n'aurait pas répondu au contexte local et les données doivent permettre :

- de vérifier le comportement des modèles appliqués lors de la campagne,
- de valider, après optimisation des modèles, les résultats obtenus pendant la POI (Période d'Observation Intensive),
- de concevoir des scénarios alternatifs (réduction des émissions...).

La campagne INTERREG IIIμ, intitulée « Système commun d'évaluation et d'information sur la qualité de l'air dans l'espace du Rhin supérieur », a été organisée par l'ASPA (Association pour la Surveillance et l'étude de la Pollution Atmosphérique en Alsace).

Réalisée du 19 mai au 16 juin 2003, elle a regroupé 30 équipes françaises et allemandes et a permis de constituer une base de données pour la zone du Rhin supérieur. Ce projet a été le fruit d'une collaboration technique entre les structures de surveillance de Bade Wurtemberg (UMEG), de Bâle (LHA) et d'Alsace (ASPA), où les financements ont été assurés par ces trois structures de surveillance, par le concours de l'Union Européenne, celui de l'ADEME et enfin la Région Alsace.

L'INERIS est intervenu en instrumentant un des différents sites de mesures, d'un LIDAR Ozone fonctionnant en continu durant ce mois de campagne. L'intervention effectuée et les résultats obtenus lors de cette campagne devaient fournir également un retour d'expérience important sur la qualité des données escomptées et sur la faisabilité d'une surveillance en continu de la structure atmosphérique et sa dynamique.

N'ayant pas pu livrer le nouveau LIDAR de l'INERIS dans les temps, le constructeur ELIGHT LASER SYSTEM a fourni un PROFILER vertical d'Ozone pour les besoins de cette campagne. Il s'agit d'un LIDAR vertical centré sur la mesure de l'O<sub>3</sub> à trois longueurs d'onde, qui fournit également une information qualitative des aérosols présents au travers de l'extinction atmosphérique. Cet appareil devait initialement fonctionner en continu durant les différentes POI, mais nous avons néanmoins évalué son fonctionnement sur l'ensemble de la campagne de mesure, à savoir du 19 mai au 16 juin 2003.



LIDAR Profiler d'Ozone vertical mis à disposition de l'INERIS pour la campagne INTERREG

Tous les résultats obtenus durant cette campagne ont été incérés dans la base de données INTERREG. Ainsi, pour chaque journée, sont disponibles les profils verticaux quotidiens suivants :

- de concentration en ozone brute. Il s'agit des profils verticaux bruts, donc sans aucune interpolation verticale ou temporelle.
- de concentration en ozone avec des interpolations verticale de 100 m et temporelle de 10 minutes,
- des écarts-types instrumentaux associés à la concentration en ozone ci-dessus, exprimés en  $\mu\text{g.m}^{-3}$  réels,
- de l'extinction atmosphérique à 284 ou 304 nm, exprimés en  $\text{km}^{-1}$  qui traduit la visibilité et fournit un suivi de la dynamique de la couche limite atmosphérique,
- de rétro-diffusion atmosphérique, exprimée en mV et traduisant l'écho renvoyé par les différentes couches atmosphériques.

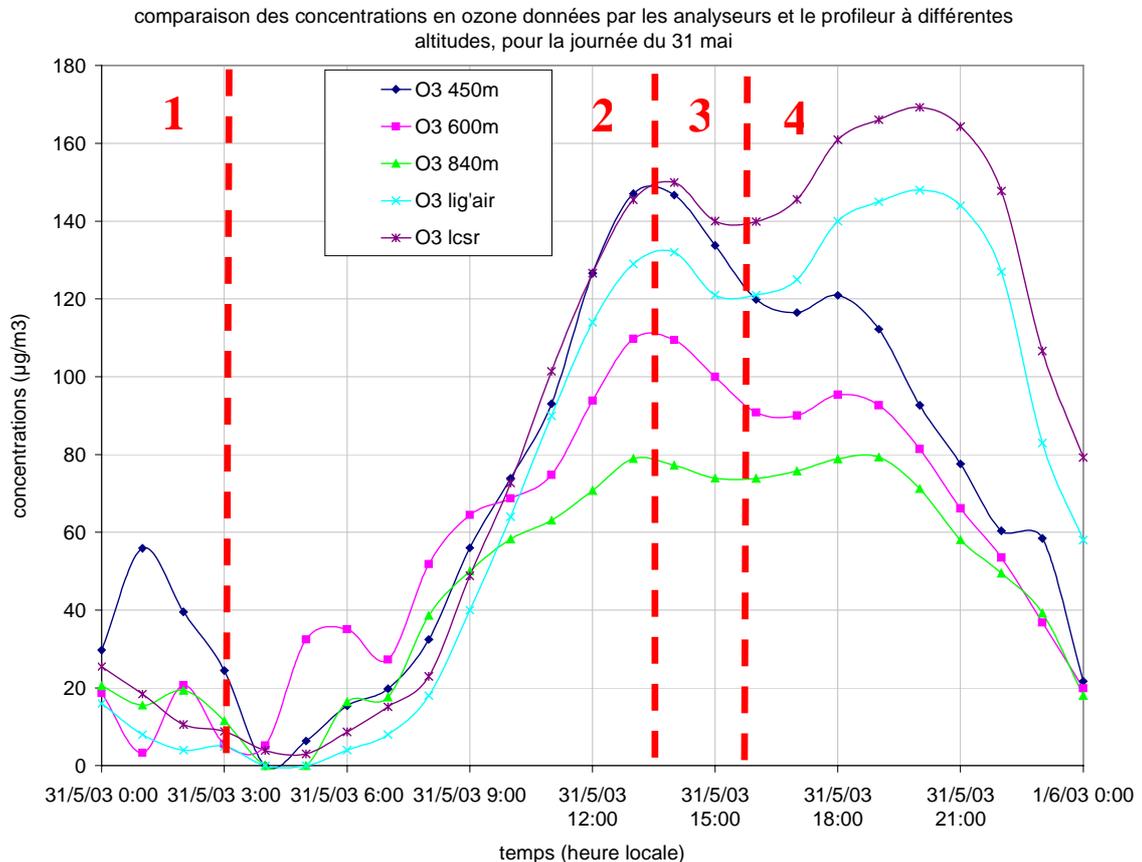
Ainsi, pour chaque journée, nous disposons des 5 fichiers textes décrits ci-dessus ainsi que des 5 images correspondantes, au format BMP.

S'agissant du tout premier PROFILER d'Ozone de cette technologie, nous avons néanmoins constaté quelques dysfonctionnements, comme c'est généralement le cas sur un appareil de technologie innovante. Néanmoins, nous avons pu obtenir un taux de données utilisables d'environ 80 % sur l'ensemble de la campagne de mesure (1 mois).

Nous avons ainsi constaté des effets de condensation sur les parties optiques (donc froides), notamment en début de matinée. Nous étions, en effet, situés sur une zone très humide, avec un taux d'humidité relative très souvent proche de 100 %. Or, pour un tel taux d'humidité, un phénomène de condensation se crée sur toutes les parties froides de l'instrument et notamment l'optique du laser. Ce problème a été responsable d'environ 80 % des pertes de données constatées.

D'une manière générale, le taux de mesures exploitables, c'est-à-dire celles fournissant un profil vertical de concentration et son incertitude, a été d'environ 80 % pour la période du 29 mai au 15 juin, incluant les deux périodes intensives de mesures programmées par l'ASPA. Nous avons donc confirmé le caractère autonome de cet instrument une fois résolus les quelques dysfonctionnements initiaux. En revanche, la portée de cet instrument, dans sa configuration initiale, n'a pas permis des mesures au-dessous de 300 m ainsi qu'au-dessus de 2000 m d'altitude.

Bien que la base de données soit en cours de construction et que les mesures obtenues par les différentes équipes présentes soient en cours de traitement, nous avons obtenu quelques résultats préliminaires en comparant les données LIDAR avec des analyseurs ponctuels installés sur le site de mesures. Nous avons ainsi confirmé la qualité des données LIDAR, bien que cette comparaison reste délicate à effectuer du fait de la non colocalisation des mesures, notamment en atmosphère stratifiée.



Couplage LIDAR-Analyseur, pour la journée du 31 mai 2003, INTERREG, site de Rossfeld

Ainsi, l'exemple ci-dessus permet de montrer la complémentarité entre des mesures issues du LIDAR et des analyseurs, dans la compréhension de la dynamique de l'ozone :

- Zone 1 : homogénéité verticale de l'atmosphère en période nocturne, avec des concentrations au sol identiques à celles obtenues à 800 m d'altitude. Ce résultat obtenu en zone rurale, donc sans émission locale de NO, permet de définir les niveaux de fonds présents ce jour sur le domaine.
- Zone 2 : très bonne adéquation entre les données au sol et celles en altitude lorsque les phénomènes convectifs se mettent en place et engendre une relative homogénéité verticale de la concentration, pour des altitudes à l'intérieure la couche limite atmosphérique. L'étude des écarts entre les données au sol et celles obtenues en altitude permet également de quantifier la stratification verticale présente et l'étendue spatiale de ces échanges verticaux. En effet, on observe une diminution constante de la concentration avec l'altitude, qui permet alors de quantifier l'impact vertical des mouvements convectifs présents durant cette période.
- Zone 3 : apparition d'un écart entre les concentrations au sol et celles obtenues à basse altitude, consécutif à un passage nuageux limitant les effets convectifs.

- Zone 4 : stabilisation de la stratification atmosphérique avec la persistance d'une photochimie au sol durant quelques heures, qui ne peut être réalisée à plus haute altitude faute de précurseurs portés par ces effets convectifs.

Ainsi, cet exemple choisi, compte tenu de la complexité des phénomènes présents durant cette journée, permet de confirmer l'apport essentiel du couplage LIDAR-Analyseur dans la compréhension de la dynamique de l'ozone et des échanges verticaux.

Les caractéristiques de l'appareil ont également permis d'obtenir 3 profils verticaux quotidiens de concentration en ozone. Leur mise en comparaison a permis de montrer l'influence du réglage de l'unité de réception sur la mesure, ainsi que l'influence de fortes variations spatiales en aérosols sur la concentration en ozone. Ainsi, nous avons pu montrer qu'une incertitude importante (20 %) peut être présente sur la concentration en ozone mesurée au niveau de la hauteur de la couche limite. Connaître la concentration en aérosols permettrait alors de réduire cette incertitude. Néanmoins, cette caractérisation par LIDAR des aérosols reste très délicate à réaliser et nécessite des outils LIDAR spécifiques. Nous avons néanmoins obtenu, en utilisant cet instrument et sur la base d'algorithmes développés dans le cadre de nos programmes de recherche, une première évaluation de la charge en aérosols présente sur le site. L'objectif était de montrer que cet instrument permettait de fournir une première évaluation de la répartition verticale du paramètre microphysique des aérosols présents (hydroscopie, taille, composition chimique, phase) ainsi que le profil vertical de charge en aérosols.

On a alors obtenu les résultats suivants :

- il n'existe pas un unique paramètre microphysique  $G(z_0)$  caractérisant l'aérosol atmosphérique, mais il en existe un propre à chaque couche,
- l'atmosphère libre est très peu chargée en particules car moins de 4 % de la rétrodiffusion enregistrée par LIDAR sont issues des particules,
- à proximité immédiate du sol, l'action des particules est aussi importante que celle des molécules car le rapport de rétrodiffusion total  $R(z)$  devient proche de 2.

Ainsi, on observe par exemple des couches atmosphériques caractérisées par des paramètres microphysiques différents et notamment une diminution avec l'altitude de ce paramètre. Or, de nombreuses études ont montré qu'un paramètre microphysique de l'ordre de 15-16 est caractéristique d'un aérosol urbain, tandis qu'un paramètre de l'ordre de 19 peut traduire des particules plus grosses ou plus humides. Cet exemple permet alors de montrer qu'il existe une stratification verticale des aérosols, avec des particules humides en dessous de 200 m et des particules de types urbaines au-dessus de 400-500 m.

De même, on constate que lorsque l'altitude augmente, le paramètre microphysique diminue. Or des valeurs élevées de ce coefficient correspondent à des particules de gros diamètre, ce qui signifie que le diamètre moyen des aérosols décroît avec l'altitude.

Il s'agit, là encore, de résultats préliminaires qui devront être couplés avec d'autres instruments et notamment l'avion METAIR, dans le cadre de ce programme INTERREG. Néanmoins, cette campagne de mesures a permis de démontrer le rendu opérationnel des LIDAR gaz et leur apport essentiel dans la documentation de la basse troposphère lorsqu'ils sont couplés à des analyseurs ponctuels.

## INTRODUCTION

L'INERIS, dans le cadre de sa mission d'assistance auprès des AASQA, avait programmé la réalisation d'une campagne LIDAR en partenariat avec une association agréée de surveillance de la qualité de l'air, avec pour objectif principal, de démontrer la faisabilité d'une surveillance en continue de la concentration en ozone du sol à la troposphère libre comme outil de paramétrage et instrument de validation de modèles tridimensionnels.

Dans ce cadre, nous détaillerons dans un premier temps la campagne de mesure réalisée en partenariat avec l'ASPA, mais également l'outil LIDAR utilisé, à savoir son principe de mesure et ses caractéristiques associées. Puis, nous analyserons en détail le taux de fonctionnement de ce LIDAR ainsi que son rendu opérationnel.

Nous analyserons ensuite de manière détaillée la comparaison de données LIDAR avec des analyseurs ponctuels installés sur le site. Cela nous permettra de qualifier les conditions météorologique et dynamique nécessaires à une adéquation entre des mesures au sol et en altitude, mais également l'intérêt d'un couplage LIDAR-Analyseurs dans la compréhension de la dynamique atmosphérique. Nous détaillerons notamment, au travers de l'étude de deux journées particulières, l'influence de la dynamique ou du rayonnement sur la dynamique de l'Ozone et sa répartition verticale.

Enfin, nous fournirons une première évaluation de la répartition verticale de la charge en aérosols atmosphériques ainsi que des paramètres microphysiques associés.

## 1. CADRE DE L'ETUDE ET OBJECTIFS :

---

L'INERIS, dans le cadre de sa mission d'assistance auprès des AASQA, avait programmé la réalisation d'une campagne LIDAR en partenariat avec une association agréée de surveillance de la qualité de l'air, avec pour objectif principal, de démontrer la faisabilité d'une surveillance en continue de la concentration en ozone du sol à la troposphère libre comme outil de paramétrage et instrument de validation de modèles tridimensionnels.

## 2. GLOSSAIRE

---

LIDAR : « Light Detection And Ranging ». Analyse résolue dans l'espace et le temps par technique optique. Ce principe permet ainsi de localiser une masse d'air sur des distances de plusieurs kilomètres, avec une précision maximale de 7,5 m dans le cas du LIDAR de l'INERIS.

DIAL : « Differential Absorption LIDAR ». Mesurage de la concentration par une analyse différentielle entre deux longueurs d'ondes caractéristiques du polluant gazeux à quantifier. En choisissant une longueur d'onde réagissant fortement avec le polluant à détecter (forte absorption) on peut remonter à sa concentration en supprimant l'action de l'atmosphère, ce qui constitue de ce fait une analyse différentielle.

Section efficace d'absorption : elle traduit l'absorption d'un rayonnement incident par une molécule et peut varier très fortement d'une longueur d'onde à une autre. Dans la technique DIAL, on recherchera une longueur d'onde qui correspond à une section efficace d'absorption importante (forte absorption). Elle est exprimée en  $\text{cm}^2$  et traduit de manière imagée, la « surface absorbante » vue par la longueur d'onde. L'extinction de la longueur d'onde ( $\alpha * L$ ) est alors fonction de cette section efficace ( $\sigma$ ), du nombre de molécules par  $\text{m}^3$  ( $N$  ou  $C/\text{Mmol}$ ) et de la longueur du milieu absorbant ( $L$ ). Une équation aux dimensions permet alors de montrer que la concentration en molécules absorbantes est exprimée en nombre par  $\text{m}^3$  ou masse par  $\text{m}^3$ , soit donc en  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  réel :

$$\alpha * L = \sigma * C/\text{Mmol}/N_{\text{av}} * L, \text{ nombre sans dimension donc } [C] = [M.L^{-3}] = \mu\text{g}.\text{m}^{-3}$$

Concentrations en ppbV et  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  : compte tenu du principe LIDAR-DIAL et de la définition de la section efficace d'absorption, le résultat est exprimé en  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  réel (masse du polluant gazeux par  $\text{m}^3$ ), que l'on peut ensuite convertir en ppbV (rapport entre le nombre de molécules de polluants et le nombre total de molécules : en particules par billion) en connaissant le nombre total  $N_0$  de molécules par  $\text{m}^3$  ou, ce qui revient au même, les profils verticaux de température et de pression.

Couche limite atmosphérique : stratification verticale délimitant la troposphère ayant un impact régional, de la troposphère libre ayant un impact global. Sa hauteur évolue au cours de la journée en fonction des phénomènes dynamiques tels que la convection ou le forçage synoptique.

Extinction atmosphérique : exprimée en  $\text{km}^{-1}$ , elle traduit la visibilité atmosphérique à une longueur d'onde donnée, c'est à dire le taux d'extinction de la lumière lors de sa propagation dans l'air. Ainsi, plus l'atmosphère est chargée, plus l'extinction atmosphérique est importante et donc plus la visibilité est réduite. L'extinction atmosphérique devenant faible lorsque l'on sort de la couche limite atmosphérique, il s'agit donc également d'un indicateur sur sa hauteur et sa dynamique.

Profil LIDAR vertical : mesure de la concentration en ozone, exprimée en  $\mu\text{g.m}^{-3}$  réel, en fonction de l'altitude. Les données sont donc exprimées en altitude par rapport au sol.

Évolution temporelle : moyenne glissante horaire ou ¼ horaire de l'ensemble des profils verticaux effectués. Elle permet de visualiser la dynamique atmosphérique et l'évolution temporelle des stratifications atmosphériques.

### **3. MISE EN PLACE DE LA CAMPAGNE**

---

#### *3.1 CADRE ET OBJECTIFS DE LA CAMPAGNE*

Le projet INTERREG III est la poursuite d'un programme engagé depuis plusieurs années sur la connaissance des effets transfrontières et leur modélisation. Dans ce cadre, il s'agissait de construire une base de données tridimensionnelle devant servir d'outils de paramétrage et d'instrument de validation d'un modèle photochimique spécifique du domaine d'étude. En effet, l'utilisation de données de pollution et de météo issues de campagnes réalisées dans d'autres zones géographiques n'aurait pas répondu au contexte local, elles doivent permettre :

- de vérifier le comportement des modèles appliqués lors de la campagne,
- de valider, après optimisation des modèles, les résultats obtenus pendant la POI (Période d'Observation Intensive),
- de concevoir des scénarios alternatifs (réduction des émissions...).

La campagne INTERREG III, intitulée « Système commun d'évaluation et d'information sur la qualité de l'air dans l'espace du Rhin supérieur », a été organisée par l'ASPA (Association pour la Surveillance et l'étude de la Pollution Atmosphérique en Alsace).

Réalisée du 19 mai au 16 juin 2003, elle a regroupé 30 équipes (annexe A) et a permis de constituer une base de données pour la zone du Rhin supérieur. Ce projet a été le fruit d'une collaboration technique entre les structures de surveillance de Bade Wurtemberg (UMEG), de Bâle (LHA) et d'Alsace (ASPA), où les financements ont été assurés par ces trois structures de surveillance, par le concours de l'Union Européenne, celui de l'ADEME et enfin la Région Alsace.

L'INERIS est intervenu, dans le cadre de sa mission d'assistance aux AASQA, en instrumentant un des différents sites de mesures, d'un LIDAR Ozone fonctionnant en continu durant ce mois de campagne. Ce rapport détaille l'intervention effectuée, les résultats obtenus, mais fournit également un retour d'expérience important sur la qualité des données escomptées et sur la faisabilité d'une surveillance en continu de la structure atmosphérique et sa dynamique.

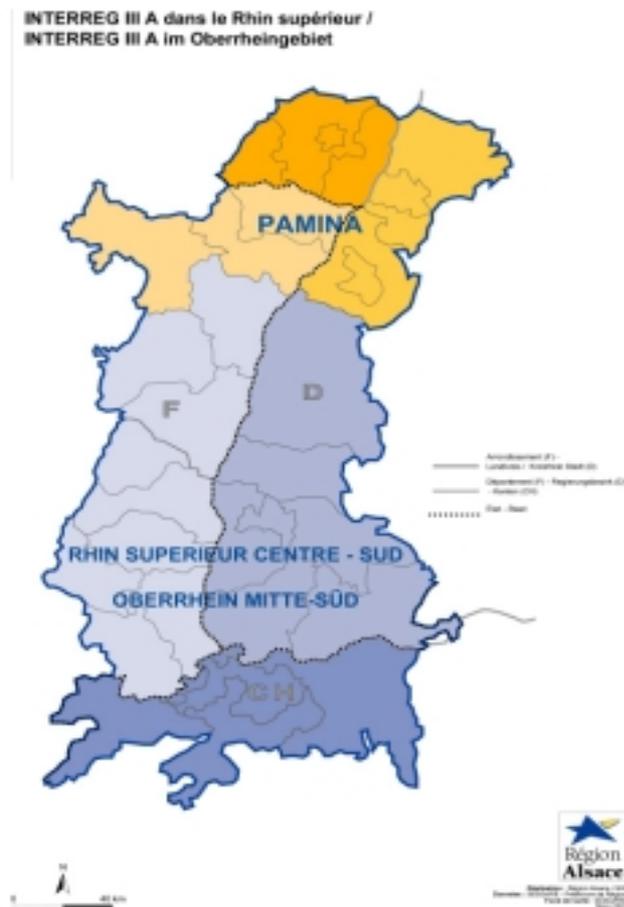


Figure 1 : Domaine d'étude du programme INTERREG III : Rhin Supérieur Centre-Sud et PAMINA (Palatinat du Sud, Mittlerer Oberrhein, Nord-Alsace); Source ASPA.

### 3.2 LOCALISATION DES SITES DE MESURES

Pour couvrir la zone du Rhin supérieur, le domaine de modélisation représente 216 km x 144 km avec une résolution de 4 km x 4 km. Le choix de la localisation des sites de mesure a été effectué au regard de trois objectifs :

- déterminer les mécanismes physiques et chimiques mis en jeu (pollution de fond et transport de masses d'air polluées),
- contrôler l'évolution spatiale de la pollution de fond,
- effectuer des mesures tridimensionnelles avec des moyens aéroportés (uniquement pendant les POI) et les deux LIDAR des sites Nord et Sud, effectuant des profils verticaux de concentration d'ozone, afin d'évaluer des éventuels échanges verticaux.

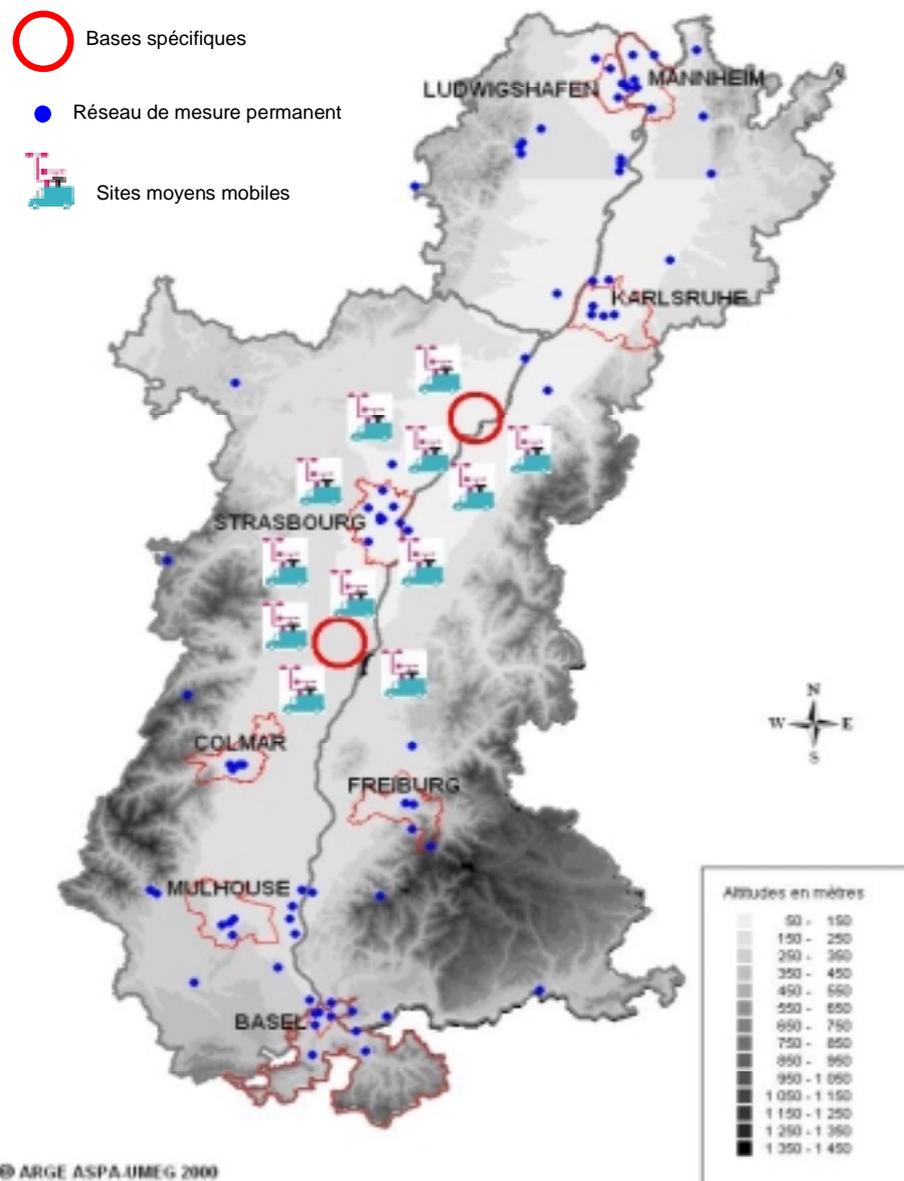
Pour ce faire, deux bases ont été équipées de moyens lourds (annexe B) : au Nord et au Sud de Strasbourg, visant à construire deux situations typiques :

1. Vent Nord-Est :

- Site Nord : pollution avant Strasbourg (correspond à la pollution de fond et celle venant de Karlsruhe),
- Site Sud : pollution après Strasbourg (correspond à la pollution de fond, de Karlsruhe, de Strasbourg et les réactions dans les panaches).

2. Vent Sud-Ouest :

- Site Nord : effet direct de Strasbourg,
- Site Sud : correspond globalement à la pollution de fond française.



*Figure 2 : Instrumentation du domaine d'étude, campagne été 2003, source ASPA*

### 3.3 INSTRUMENT UTILISE ET MISE EN PLACE DU SITE

N'ayant pas pu livrer à l'INERIS son nouveau LIDAR dans les temps, le constructeur ELIGHT LASER SYSTEM a fourni un PROFILER vertical d'Ozone pour les besoins de cette campagne. Il s'agit d'un LIDAR vertical centré sur la mesure de l'O<sub>3</sub> à trois longueurs d'onde, qui fournit également une information qualitative des aérosols présents au travers de l'extinction atmosphérique. L'appareil ne devait initialement fonctionner en continu que durant les deux POI de trois jours programmées, mais nous avons évalué son fonctionnement sur l'ensemble de la campagne de mesure, à savoir du 19 mai au 16 juin 2003.

Ce LIDAR a été livré le 12 mai 2003 dans les locaux de l'ASPA, pour une installation qui s'est effectuée le 15 mai sur le site des moyens lourds de « Rossfeld » au Sud de Strasbourg. Il a été renvoyé le 19 juin 2003 chez ELIGHT LASER SYSTEM.

### 3.4 DESCRIPTION DE L'INSTRUMENT



*Figure 3 : vue du LIDAR PROFILER D'Ozone vertical utilisé*

L'utilisation des LIDAR pour l'étude de l'atmosphère a connu un grand développement au cours des deux dernières décennies. La possibilité de sonder à distance les paramètres physiques (sans perturbation du milieu), tels que la densité, la température, le vent, ainsi que la concentration de nombreux constituants de l'atmosphère a ouvert leur domaine d'application à l'étude de l'environnement qu'il soit proche ou lointain. Cette technique peut être mise à profit dans la surveillance de sites, la détection de polluants dans l'atmosphère et le contrôle en continu à l'émission ou l'imission. Dans ce contexte, les techniques LIDAR, en particulier le LIDAR DIAL, présente des avantages qui justifient leur développement actuel, tels que :

- la capacité de détection à distance de polluants à l'état de traces, associée à une localisation précise allant jusqu'à plusieurs kilomètres de distance,

- une quantification précise de la dynamique atmosphérique et notamment des échanges verticaux, paramètres essentiels à la compréhension des pics de pollution constatés au sol.

Dans notre cas, l'intérêt du LIDAR est de fournir des éléments de paramétrage et de validation des modèles utilisés lors de la campagne, et notamment dans la prise en compte des échanges verticaux, prépondérants dans la compréhension de la dynamique atmosphérique et de son impact sur la qualité de l'air.

### 3.4.1 L'équation LIDAR

Le LIDAR appartient à la famille des DAR, tels que le SODAR ou le RADAR, dont la caractéristique principale est l'analyse résolue dans l'espace et le temps.

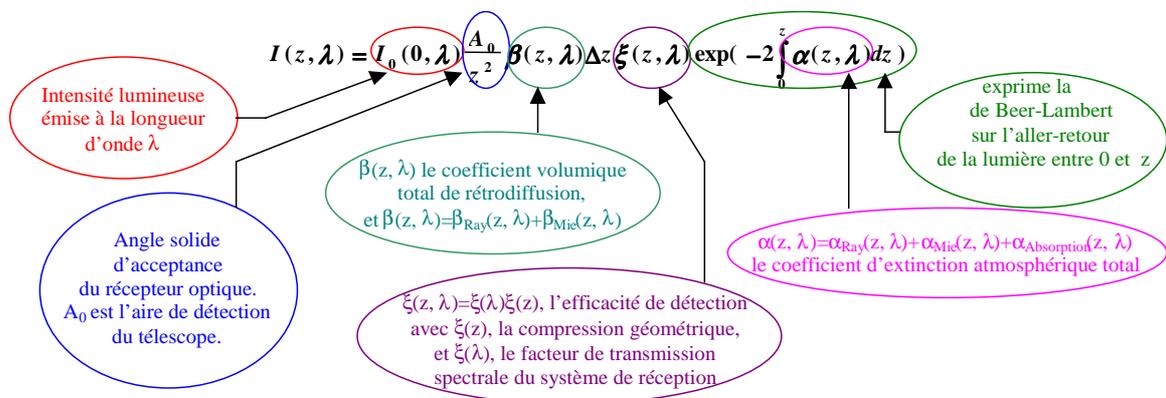
Dans notre cas, la technique LIDAR consiste à envoyer une brève impulsion laser dans l'atmosphère et à détecter et analyser la lumière rétrodiffusée en fonction du temps par les molécules et les particules présentes sur son trajet.

En effet, tout signal reçu à un temps  $t$  provient d'une distance  $z$  donnée, connaissant la vitesse de propagation de la lumière dans un milieu (ici l'atmosphère) :

$$z = \frac{c \cdot t}{2}$$

où le facteur  $\frac{1}{2}$  correspond à l'aller-retour de la lumière avant d'être enregistrée.

Finalement, un signal lidar correspond à l'acquisition  $I(z, \lambda)$ , en fonction du temps et pour une longueur d'onde donnée, d'un signal rétrodiffusé par les différentes couches atmosphériques, et peut être résumé par l'équation suivante :



Ce signal est collecté par un télescope, qui possède donc un champ de vision. La compression géométrique correspond alors à la probabilité qu'un rayon issu de la distance  $z$  atteigne le détecteur, c'est-à-dire le recouvrement entre les champs de vision de l'émetteur (laser) et du récepteur (télescope). Elle vient du fait que le télescope a un certain angle solide de détection qui est différent de l'angle de divergence du faisceau laser. En d'autres termes, le télescope est « aveugle » tant que son angle solide n'a pas coupé celui du laser.

Concrètement, cela implique une distance minimale de mesure, qui est dans notre cas d'environ 200 m.

Finalement, le signal  $I(z, \lambda)$  dépend de 2 paramètres caractéristiques :

- les paramètres liés au système LIDAR lui-même : l'intensité émise, la divergence du laser et l'angle de vision du télescope, l'efficacité du détecteur.

- les paramètres liés à l'atmosphère : l'extinction de la lumière émise en fonction de la distance et le coefficient de rétrodiffusion des particules et des molécules présentes sur le trajet du laser.

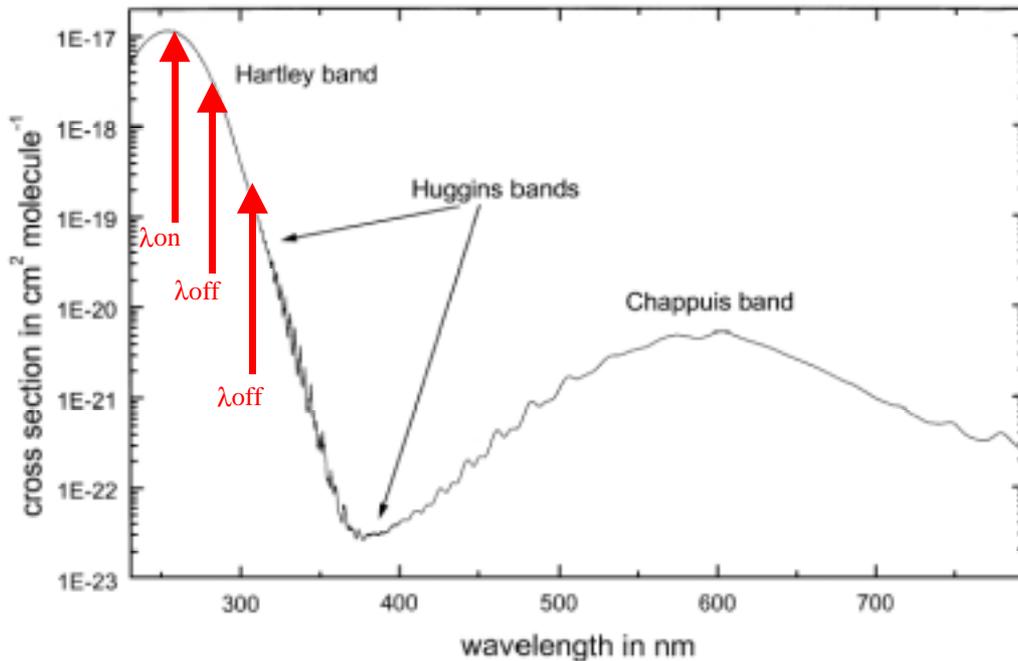
Cette équation nous permet de quantifier l'extinction atmosphérique et donc par exemple la visibilité, mais ne permet pas de connaître la concentration en Ozone présente. Pour ce faire, nous devons utiliser plusieurs longueurs d'ondes différentes, qui seront caractéristiques de l'atmosphère et du polluant à mesurer. L'idée consiste donc à envoyer dans l'atmosphère plusieurs longueurs d'onde dont une spécifique du polluant à mesurer et une autre représentant la contribution de l'atmosphère (référence) : c'est ce que l'on appelle la technique DIAL.

Le DIAL (Differential Absorption Lidar) utilise deux longueurs d'onde laser voisines pour mesurer l'ozone :

- l'une, appelée  $\lambda_{ON}$ , est fortement absorbée par le polluant cible (l'ozone),
- l'autre, appelée  $\lambda_{OFF}$ , l'est moins et sert de référence.

Le choix des longueurs d'onde dépend du constituant à mesurer : pour la mesure d'ozone, les longueurs d'onde utilisées se situent dans l'ultraviolet, et plus précisément dans le domaine entre 260 et 310 nm où l'ozone est fortement absorbée (bande de Hartley). Le choix de la longueur d'onde est optimisé en fonction :

- de la sensibilité désirée sur la mesure,
- de la technologie laser utilisé et notamment de son accordabilité dans l'UV,
- de la présence d'éventuels interférents gazeux ou particuliers.



*Figure 4 : Sections efficace d'absorption de l'ozone*

La comparaison des signaux rétrodiffusés à une distance  $z$  pour chacune des longueurs d'ondes fournit alors une information quantitative sur la concentration de la substance chimique dans la zone balayée par le laser.

En effet, pour  $\lambda_{ON}$  ou  $\lambda_{OFF}$ , l'équation LIDAR peut s'écrire :

$$I(z, \lambda_{ON}) = I_0(0, \lambda_{ON}) \frac{A_0}{z^2} \beta(z, \lambda_{ON}) \Delta z \xi(z, \lambda_{ON}) \exp\left(-2 \int_0^z \alpha(z, \lambda_{ON}) dz\right)$$

En divisant l'équation précédente pour les longueurs d'onde  $\lambda_{ON}$  et  $\lambda_{OFF}$  on simplifie une grande partie des variables qui ne dépendent pas ou très faiblement de la longueur d'onde ( $A_0, \Delta z, \xi(z)$  et  $\beta(z)$ ), on obtient l'équation suivante :

$$\frac{I(z, \lambda_{ON})}{I(z, \lambda_{OFF})} = \frac{I_0(0, \lambda_{ON})}{I_0(0, \lambda_{OFF})} \frac{\exp(-2 \int_0^z \alpha(z, \lambda_{ON}) dz)}{\exp(-2 \int_0^z \alpha(z, \lambda_{OFF}) dz)}$$

En effectuant le logarithme de ce rapport et en dérivant ce résultat par rapport à z, on obtient la densité de molécules d'ozone N(z) :

$$N(z) = -\frac{1}{2\Delta\sigma} \frac{d}{dR} \ln \left[ \frac{I(z, \lambda_{ON})}{I(z, \lambda_{OFF})} \right]$$

où  $\Delta\sigma = \sigma(\lambda_{ON}) - \sigma(\lambda_{OFF})$  sont fournies par le spectre des sections efficaces de l'ozone. Si on la multiplie par la masse molaire M, on obtient alors la concentration C(z) :

$$C(z) = -\frac{M}{2\Delta\sigma} \frac{d}{dR} \ln \left[ \frac{I(z, \lambda_{ON})}{I(z, \lambda_{OFF})} \right] \text{ exprimée en } \mu\text{g.m}^{-3} \text{ réel, pour le polluant considéré.}$$

L'enjeu de la technique LIDAR est alors de posséder ces différentes longueurs d'onde.

### 3.4.2 Le profiler d'ozone ELIGHT

Dans notre cas, le laser utilisé est un YAG dopé Nd<sup>3+</sup> (Quantel Brilliant) émettant à 1 064 nm, donc dans l'IR. Ce laser est également pourvu de deux générateurs d'harmonique, composés de cristaux non linéaires, qui permettent successivement de doubler (SHG) puis de quadrupler la fréquence (FHG), et ainsi de passer de la longueur d'onde  $\lambda = 1\ 064$  nm (fondamentale) à  $\lambda = 266$  nm. Nous obtenons alors notre première longueur d'onde.

Pour obtenir la ou les suivantes, nécessaires à l'obtention de la concentration d'ozone, nous utilisons alors une cellule de Raman contenant de l'azote. Cela nous permet d'obtenir trois longueurs d'ondes en simultanée : 266, 284 et 304 nm.

En effet, la diffusion Raman est une diffusion inélastique, c'est-à-dire qu'une partie de l'énergie du photon incident est transmise à la molécule comme énergie vibratoire lors de la collision, et ainsi le photon sortant de la cellule a une énergie différente par rapport à celui qui entre. Celle-ci est soit plus faible, dans le cas de la diffusion Stokes, soit plus forte, dans le cas de la diffusion anti-Stokes. Comme il existe plusieurs niveaux d'énergie vibratoire, il y a donc plusieurs raies Raman.

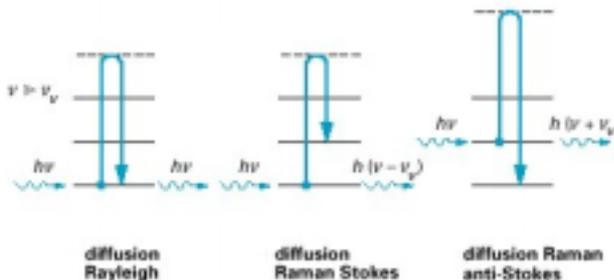


Figure 5 : description des principes Rayleigh et Raman

Cette cellule de Raman permet alors d'obtenir deux longueurs d'ondes supplémentaires de celle incidente. Nous obtenons ainsi 3 longueurs d'ondes simultanées, soit la capacité d'accéder à trois couples DIAL et donc trois mesures de la concentration en ozone : (266-284), (266-304) et (284-304).

Après son passage dans la cellule Raman (figure 9), le faisceau est ensuite réfléchi par les miroirs 5 à 7 qui font partie avec la lentille d'un télescope permettant au faisceau émis d'être étendu à un diamètre de 10 cm et d'être ainsi en complète sécurité oculaire. Le faisceau émis par le profiler possède finalement une énergie d'environ 3 mJ sur un diamètre de 10 cm, permettant ainsi une mesure jusqu'à une altitude d'environ 2 000 m.

Le signal rétrodiffusé est ensuite collecté par un télescope puis renvoyé vers le système de détection, comprenant un réseau et un photomultiplicateur pour chaque longueur d'onde. Le courant de sortie des photomultiplicateurs est alors envoyé vers le convertisseur analogique numérique à 3 canaux (partie acquisition) puis à un ordinateur pour le traitement des données.

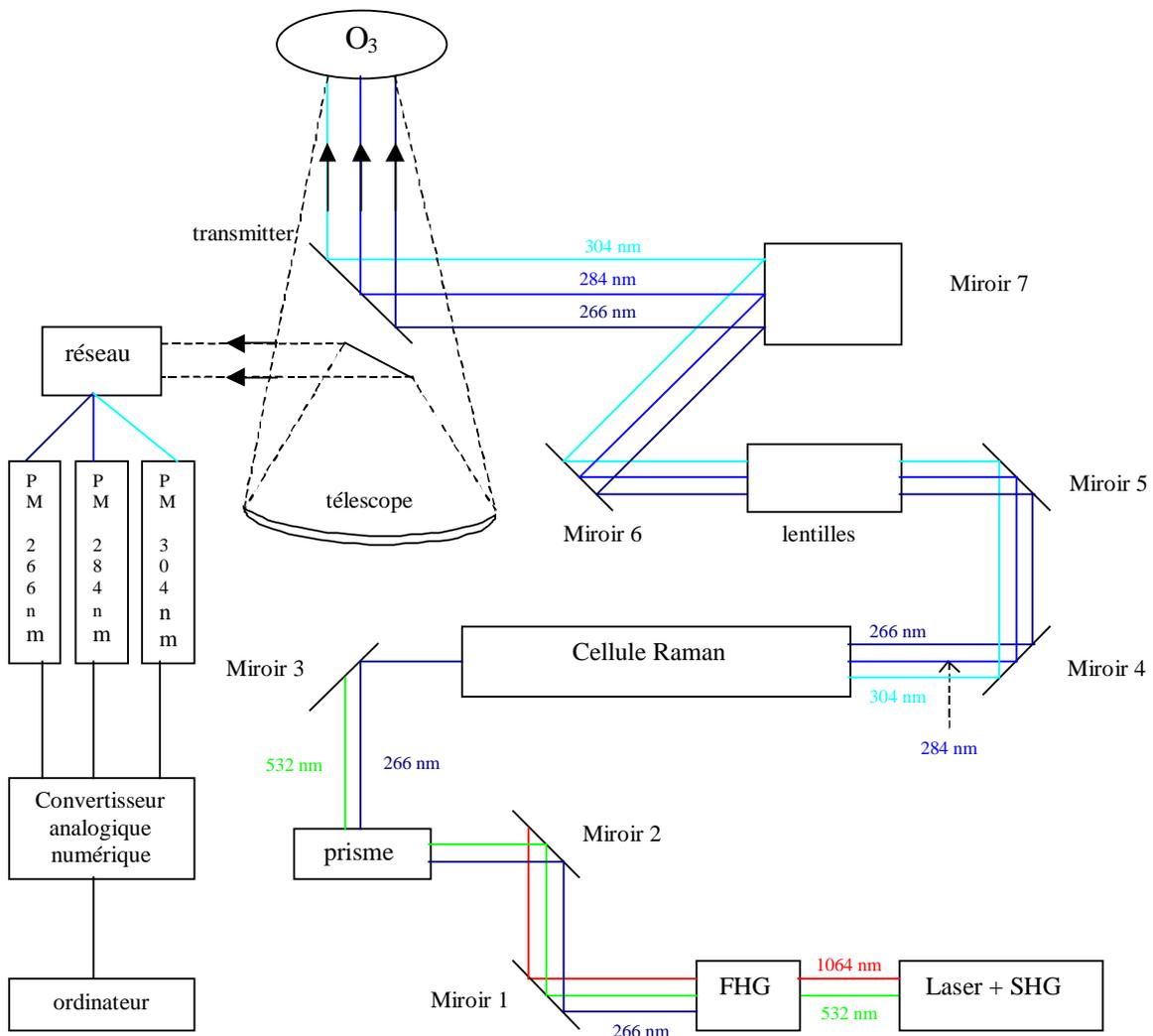


Figure 6 : description du LIDAR Profiler d'Ozone

Enfin, la partie traitement a été réalisée à partir du programme ELIGHT, qui permet d'obtenir, à partir du signal rétrodiffusé, une carte spatiotemporelle quotidienne de la concentration en ozone (brute et/ou avec une interpolation spatiale et temporelle), ainsi que l'extinction atmosphérique due aux aérosols.

Cependant, nous devons dans un premier temps enregistrer le signal puis le numériser. Pour ce faire, le photomultiplicateur transforme les photons en courant électrique, converti en tension par le CAN (Convertisseur Analyseur Numérique). Cette valeur de tension est ensuite introduite dans le programme pour obtenir un nombre entier selon la formule :

$$\text{entier} = \frac{\text{signal [mV]} * \text{nombre de shot} * 4096}{\text{seuil max de détection [100 mV]}}$$

où  $4096 = 2^{12}$  car l'acquisition est effectuée en 12 bits.

Le traitement de l'information est ensuite effectué en optimisant la précision de la mesure. Pour ce faire, deux types d'intégration sont effectuées :

- une intégration spatiale, par moyenne glissante, que l'on fixera à 1h afin d'uniformiser notre format de données avec celui issu des laboratoires mobiles des AASQA,
- une intégration spatiale verticale dont la distance est optimisée en chaque point de manière à minimiser l'incertitude de mesure. En effet, compte tenu de l'évolution du rapport signal/bruit avec l'altitude, l'intégration spatiale sera plus grande en haute altitude que proche du sol. D'une manière générale, les fichiers de résultats fournissent en chaque point l'intégration spatiale effectuée, qui est de l'ordre de 100 m du sol à 1000 m d'altitude, puis d'environ 200 m à 1 500 m d'altitude.

Finalement, cet instrument est très différent de ceux que nous avons utilisé auparavant dans le cadre du LCSQA. Ce choix technologique a été effectué afin d'accéder à un système stable et robuste, permettant de garantir des mesures en continu durant plusieurs jours à plusieurs semaines. En effet il utilise, d'une part, une source laser très stable et sans maintenance particulière si ce n'est le changement de la lampe à impulsion tous les 15 jours. Il utilise, d'autre part, une cellule de gaz scellée comme outils de génération des longueurs d'ondes supplémentaires. Cette cellule ne nécessitent pas de maintenance particulière.

En revanche, ce choix technologique ne permet pas d'accéder à des impulsions laser intenses et la portée de ce système ne peut donc pas être supérieure à 2 000 m. Au vu de ces caractéristiques, on s'attend donc à un LIDAR autonome, permettant la mesure de la concentration en Ozone de trois manières différentes, fournissant une information quantitative de 200 m à 2000 m d'altitude.

### 3.5 CONTRAINTES LIEES A L'INSTALLATION DU LIDAR PROFILER O<sub>3</sub>

Cet instrument ne nécessite pas de contraintes particulières autres que la fourniture :

- une servitude électrique 220V, 16A,
- une servitude téléphonique pour le contrôle à distance.

Pour des raisons évidentes de sécurité et compte tenu du coût d'un tel instrument, nous avons choisi de délimiter un périmètre de sécurité autour de l'appareil afin d'éviter tout éventuel incident. En effet, bien que ce système soit en complète sécurité oculaire, nous avons jugé préférable de limiter les possibilités de contact direct avec l'émission laser ou du moins d'en informer les personnes à proximité.

Par ailleurs, nous avons regretté qu'une surveillance nocturne du site n'ait pas été effectuée, compte tenu du coût important des instruments présents et sachant que certaines installations pouvaient présenter des risques.



*Figure 7 : aperçu de l'instrumentation du site de mesure de Rossfeld*

## 4. TAUX DE FONCTIONNEMENT

Le Profiler a effectué des mesures d'ozone en continu (jour et nuit) du 19 mai au 16 juin sur le site Sud (base de Rossfeld).

### 4.1 FONCTIONNEMENT DU PROFILER O<sub>3</sub>

#### 4.1.1 Dysfonctionnements rencontrés

S'agissant du tout premier PROFILER d'Ozone de cette technologie, nous avons constaté quelques dysfonctionnements, comme généralement le cas sur un appareil de technologie innovante.

##### 4.1.1.1 Effets de condensation, compte tenu de la configuration du site

Nous avons constaté très rapidement des effets de condensation sur les parties optiques (donc froides), notamment en début de matinée. Nous étions, en effet, situés sur une zone très humide, avec un taux d'humidité relative très souvent proche de 100 % (situé à proximité du Rhin, en zone inondable, avec une nappe phréatique très peu en profondeur).

Or, pour un tel taux d'humidité, un phénomène de condensation se crée sur toutes les parties froides de l'instrument et notamment l'optique du laser. Cela a entraîné un taux important de perte de données le matin et en soirée. Pour y remédier, nous avons dû utiliser une grosse quantité de déshumidificateurs. Sans pour autant parvenir à supprimer tout effet de condensation, cela a permis de limiter le taux de perte de données. Ce problème a été responsable d'environ 80 % des pertes de données.

Durant les réunions préparatoires, nous avons à plusieurs reprises souligné l'importance des effets de l'humidité sur la qualité des mesures. Les contraintes d'installation et de définition du site, n'ont hélas pas permis de s'affranchir de cette contrainte.

#### 4.1.1.2 Dysfonctionnement du logiciel de traitement et d'analyse

Nous avons effectué un premier traitement des données et nous avons constaté que les concentrations obtenues semblaient aberrantes entre 0h et 2h, entre 22h et 24h et enfin pour des distances proches de 2 000 m d'altitude : concentrations largement inférieures à celles escomptées. Cela nous a permis de mettre en évidence un dysfonctionnement du logiciel de traitement. En effet, les intégrations spatiales et temporelles prenaient en compte des points qui n'existent pas entraînant une sous-estimation de la concentration pour les points considérés. Nous avons donc effectué un second traitement de données, une fois ce problème informatique résolu.

#### 4.1.1.3 Défaut d'alignement du laser

Lors de son installation sur site et compte tenu de la configuration du site (absence de route carrossable jusqu'au point de mesure), il a été nécessaire d'utiliser un véhicule peu adapté au transport de ce type d'appareil, mais apte à évoluer dans un champ : camion frigorifique équipé d'un plateau arrière de levage car un transpalette ne permettait pas d'accéder au site. Cela a entraîné un léger désalignement de l'optique du système qui a nécessité une intervention du constructeur. La perte de données a été faible et ne concernait que les mesures obtenues pour des altitudes inférieures à 600 m.

## 4.2 TAUX DE DONNEES O<sub>3</sub> ET VALIDATION DES MESURES

Le taux de fonctionnement du LIDAR a permis de définir un taux de données pour l'ensemble de la campagne. Il correspond au taux de mesures exploitables, c'est à dire celles fournissant un profil vertical de concentration et son incertitude.

Sur l'ensemble de la campagne de mesures (1 mois) le taux de données utilisable à été d'environ 80 %.

Par ailleurs, sur cette période de mesures du 19 mai au 16 juin 2003, deux périodes intensives de mesures ont été définies, compte tenu de leur probabilité à être associées à des épisodes de pollution à l'ozone. Ces périodes ont été définies sur la base des résultats de modèles prédictifs à J-2 et J-1. Dans la pratique, nous avons constaté que des mesures effectuées hors POI, ont également été très proches des seuils d'information de la population. Cela renforce la pertinence d'un suivi en continu sur des périodes longues, permettant de garantir la caractérisation d'un épisode de pollution en s'affranchissant de toute dépendance prévisionniste.

Les périodes intensives d'observation retenues ont été les suivantes :

- POI N°1 : du mardi 3 juin 0h au jeudi 5 juin 24h où nous avons eu un taux de données utilisable très proche de 100 %.
- POI N°2 : du mardi 10 juin 0h au jeudi 12 juin 24h où nous avons obtenu un taux de données de l'ordre de 75 %, principalement dû à des effets de condensation sur les parties froides de l'appareil.

Il correspond au pourcentage maximum obtenu en associant ces 3 couples de longueurs d'ondes. Il s'agit donc du % d'obtention d'au minimum une mesure de l'ozone, sur les 3 possible. Il a été obtenu en utilisant des données horaires, basée sur une moyenne glissante (interpolation linéaire)

Nous avons constaté que ce taux de données est fonction du couple considéré car il dépend très fortement de la puissance laser émise. Or, l'impulsion émise à 304 nm est environ 10 fois plus faible que celle émise à 266 nm : toute légère condensation sur l'optique aura donc un effet bien plus important à la longueur d'onde de 304 nm.

## **5. RESULTATS OZONE ET AEROSOLS**

---

### *5.1 DESCRIPTION DES RESULTATS OBTENUS*

Tous les résultats obtenus durant cette campagne ont été insérés dans la base de données INTERREG. Ainsi, pour chaque journée, sont disponibles les profils verticaux quotidiens suivants :

- de concentration en ozone brute. Il s'agit des profils verticaux bruts, donc sans aucune interpolation verticale ou temporelle,
- de concentration en ozone avec des interpolations verticale de 100 m et temporelle de 1 heure,
- des écarts-types instrumentaux associés à la concentration en ozone ci-dessus, exprimés en  $\mu\text{g.m}^{-3}$  réels,
- de l'extinction atmosphérique à 284 ou 304 nm, exprimés en  $\text{km}^{-1}$ ,
- de rétrodiffusion atmosphérique, exprimée en mV et traduisant l'écho renvoyé par les différentes couches atmosphériques,
- de contraste de rétrodiffusion, traduisant la variation de cet écho en longueur d'onde.

Ainsi, pour chaque journée, nous disposons des 6 fichiers textes décrits ci-dessus ainsi que des 6 images correspondantes, au format BMP.

Des exemples de fichiers au format texte et BMP sont fournis en annexe F de ce document.

### *5.2 ÉTUDE DÉTAILLÉE DES MESURES LIDAR*

Il est apparu important, dans la mesure où les résultats obtenus par le LIDAR seront associés à ceux obtenus par d'autres techniques de mesures, d'effectuer un contrôle qualité approfondi des données fournies par le LIDAR durant l'ensemble de la campagne de mesure. Pour ce faire, nous avons étudié la sensibilité sur la mesure de la concentration, en fonction du couple de longueur d'onde considéré. Cela nous a ensuite permis de comparer les mesures LIDAR obtenues, avec celles fournies par des analyseurs ponctuels au sol.

### 5.2.1 comparaison des 3 profils verticaux de concentration en Ozone

On a vu précédemment que le profiler d’ozone utilisait 3 longueurs d’ondes en simultan , permettant ainsi d’obtenir 3 profils verticaux de concentration en ozone. On a donc effectu  un traitement LIDAR pour les 3 couples DIAL possibles (266-284 nm), (266-304 nm) et enfin (284-304 nm). Cela nous a permis d’obtenir simultan ment 3 profils verticaux de concentration en ozone. Les 3 figures ci-dessous montrent les 3 profils verticaux obtenus ainsi que les incertitudes associ es, pour la journ e du 15 juin 2003.

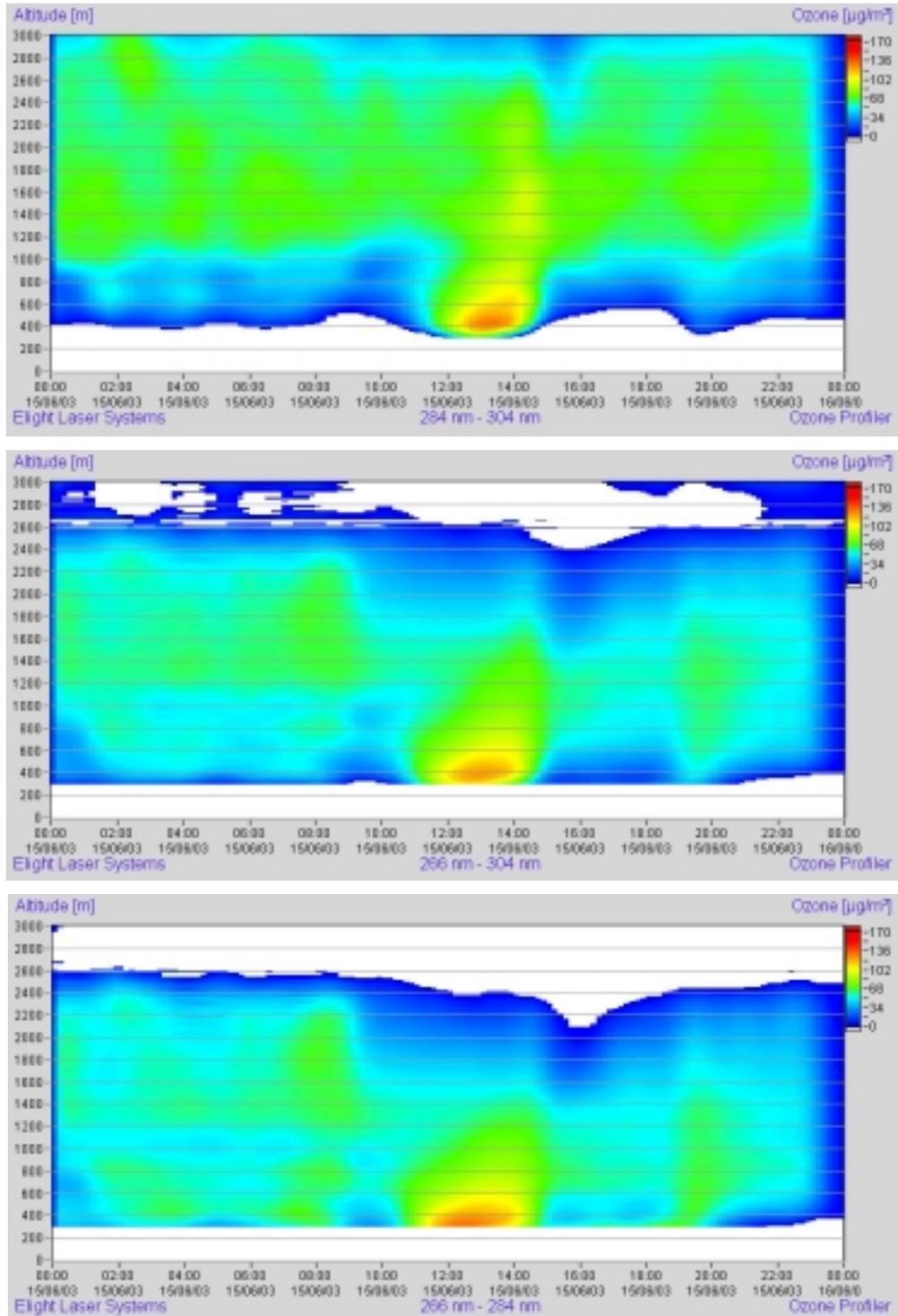
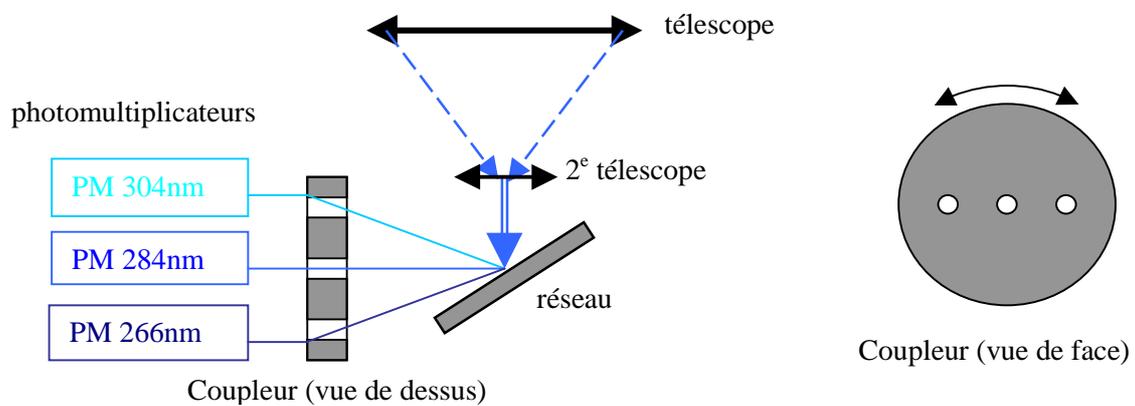


Figure 8 : Concentrations en ozone pour les 3 couples consid r s, le 15 juin 2003

De l'exemple ci-dessus, on peut constater que les concentrations d'ozone peuvent être différentes, notamment entre 2h et 8h du matin, ainsi que pendant l'épisode de pollution (vers 14h) où ces différences sont particulièrement marquées. De nombreuses études indiquent que la présence d'aérosols est une source d'interférences, introduisant un offset positif dans la concentration d'ozone et certains algorithmes<sup>1</sup> permettent de diminuer cette erreur, sans pour autant la supprimer complètement.

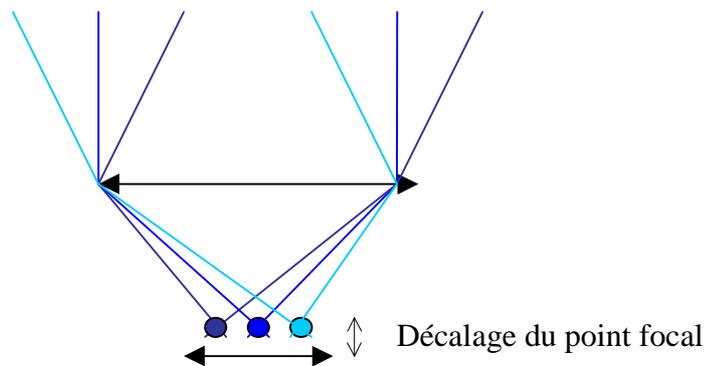
Toutefois, pour cet exemple du 15 juin, les écarts entre le couple 284-304 nm et les deux autres, qui avoisinent par endroits  $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$  ne peut s'expliquer uniquement par la présence d'aérosols. Il semble que cela provienne également d'un dysfonctionnement de l'unité de réception, induisant alors une source d'erreur à basse altitude. En effet, la position des détecteurs gouverne le champ de vue du télescope  $A_0/z^2$  et la compression géométrique  $\xi(z)$ . Un désalignement entre les différents signaux induit alors des erreurs, notamment sur les 600 premiers mètres.

En effet, le télescope peut être représenté comme une lentille convergente focalisant le signal rétrodiffusé sur l'entrée d'un réseau dont la fonction est de séparer les différentes longueurs d'onde reçues. Un coupleur est alors inséré après le réseau, afin de collecter les 3 longueurs d'ondes émises.



*Figure 9 : Description de l'unité de sélection en longueur d'onde*

Ainsi, le coupleur permettant la différenciation des 3 longueurs d'ondes, peut se déplacer horizontalement et faire une rotation dans l'axe du réseau. Dans ce cas, le signal rétrodiffusé effectue un angle par rapport à l'axe du télescope et la compression géométrique  $\xi(z)$  devient différente pour les trois longueurs d'onde, induisant alors une erreur sur la concentration en ozone, comme le montre la figure ci-dessous.



<sup>1</sup> F. Immler, « a new algorithm for simultaneous ozone and aerosol retrieval from tropospheric DIAL measurements », Applied Physics B 76, pp 593-596, (2003).

Finalement, en comparant les écarts relatifs sur les concentrations données par les différents couples pour la journée du 15 juin, on constate que l'écart entre les couples 284-304 nm et 266-304 nm est au minimum de 20 % de 1 000 à 2 200 mètres (avant 6h), et de 1 000 à 1 500 mètres (après 6h), et passe brusquement à 50 % en dehors de ces zones.

De même, l'écart entre les couples 266-304 nm et 266-284 nm est de l'ordre de 10 % entre 800 et 2200 mètres avant 9h, et de 800 à 1 500 mètres après, et de 20 % environ en dehors de ces tranches d'altitude. Cet écart constaté sur les concentrations d'ozone obtenues à faible altitude, pourrait être issu d'un mauvais positionnement du coupleur, comme décrit ci-dessus. Le constructeur a d'ailleurs modifié la géométrie de l'unité de réception depuis, afin de limiter l'influence du positionnement du coupleur sur la mesure d'ozone.

Néanmoins, cet écart ne peut pas être uniquement lié au positionnement du coupleur. En effet, on constate qu'il évolue fortement avec la journée et qu'il semble être lié à la hauteur de la couche limite, caractérisant la séparation entre des couches fortement (au-dessous) et faiblement (au-dessus) chargées en aérosols. Or, les aérosols jouent un rôle plus important sur le couple 284-304 nm car l'ozone est moins absorbée dans cette bande que dans la bande 266-284 nm : la longueur d'onde 304 nm est 30 fois moins absorbée par l'ozone que la 266 nm.

De ce fait, pour la zone spectrale 266-284 nm qui est fortement absorbée, on pourra minimiser l'importance des aérosols jusqu'à 1 500 mètres, les signaux étant bruités au-delà, et donc confirmer la qualité des données jusqu'à cette altitude. Pour la journée du 15 juin, on peut donc découper la carte spatio-temporelle d'ozone en deux domaines :

- du sol à 1 500 mètres, on utilise les valeurs de concentrations données par le couple 266-284 nm qui minimise l'interférence des aérosols,
- de 1 500 à 3 000 m d'altitude, on utilise les valeurs du couple 284-304 nm, moins bruitées sur cette partie car moins absorbées par l'ozone, mais en considérant qu'il subsiste une incertitude sur la concentration par la présence d'aérosols.

Nous reviendrons plus en détail dans les paragraphes suivants, sur l'influence des aérosols sur la mesure de l'ozone, et plus particulièrement au niveau de la zone atmosphérique correspondant très exactement à la hauteur de la couche limite. Néanmoins, nous retiendrons que d'une manière générale, la mise en comparaison des concentrations d'ozone obtenues par les trois couples de longueurs d'onde, a permis de mettre en évidence l'influence du coupleur et des aérosols sur la mesure et qu'une optimisation de la qualité des mesures pouvait être envisagée en utilisant les mesures obtenues par chacun de ces couples, en fonction de l'altitude considérée.

## 5.2.2 Couplage LIDAR-Analyseurs, comparaison des mesures

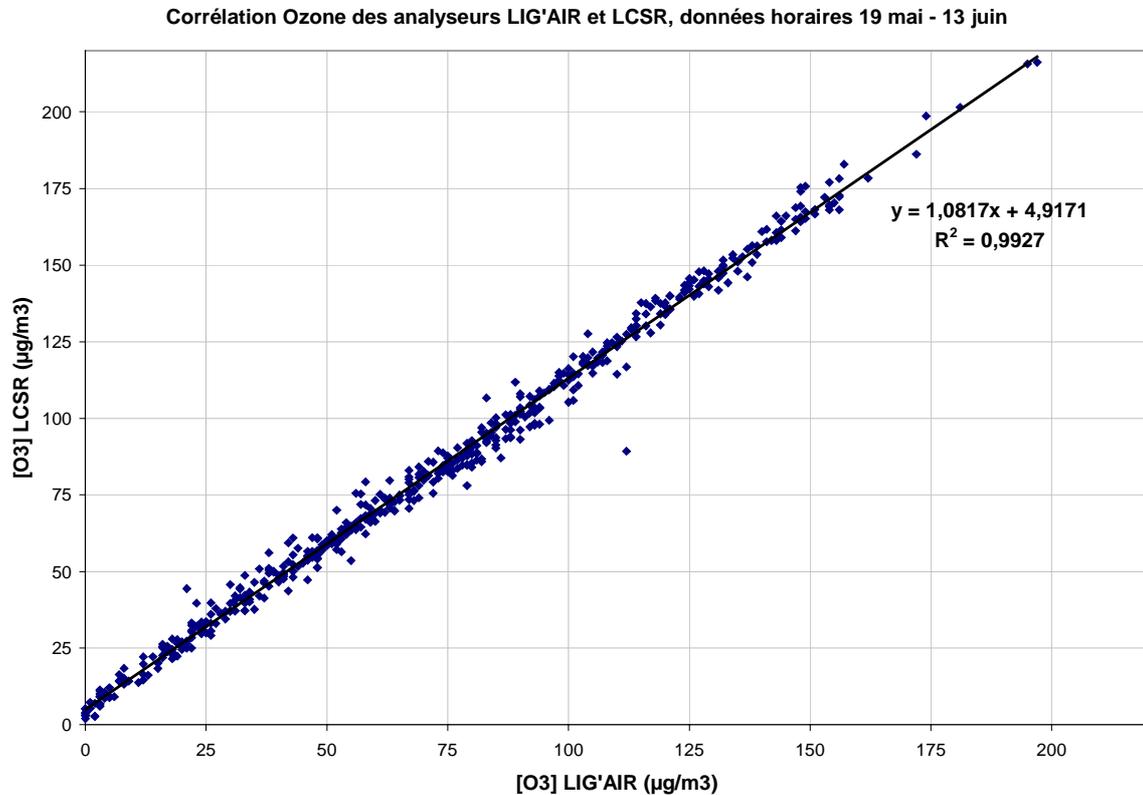
Cette comparaison avait pour objectif de relier les valeurs d'Ozone au sol, données par les analyseurs, avec celles fournies en altitude par le profiler, pour ensuite tracer la répartition spatio-temporelle de l'ozone du sol jusqu'à 2 000 mètres environ.

Cette comparaison LIDAR-Analyseur a été effectuée pour la journée du 31 mai 2003, caractérisée par une dynamique photochimique importante ayant conduit à une augmentation régulière des concentrations avec une concentration maximum de  $160 \mu\text{g}/\text{m}^3$  dans l'après-midi.

### 5.2.2.1 Contrôle des résultats obtenus par les analyseurs au sol

Les deux analyseurs d'Ozone (LIG' AIR et le LCSR) présents sur le site de mesure durant cette campagne, ont fonctionné en continu durant le mois de mesure. Néanmoins, ils n'étaient pas positionnés et configurés de manière identique. Ainsi, l'analyseur du réseau

LIG' AIR était installé dans un laboratoire mobile climatisé avec une tête de prélèvement située sur le toit de ce dernier, soit à environ 3 m du sol et donc une ligne d'échantillonnage courte (2 m). En revanche, l'analyseur d'ozone du laboratoire de recherche LCSR était situé dans un algeco non climatisé avec une tête de prélèvement située au sommet de l'échafaudage, soit à plus de 7 m du sol et une ligne d'échantillonnage longue (10 m).



*Figure 10 : Corrélation entre les Analyseurs d'Ozone de LIG' AIR et du LCSR*

On obtient une corrélation de 1.08 entre les deux appareils ainsi qu'un offset du LCSR de 5 µg/m<sup>3</sup> par rapport à LIG' AIR :

$$LCSR = 1.08 * LIG' AIR + 4.95 \text{ avec } R^2=0.993$$

Or, ces deux instruments ont été calibrés préalablement à la campagne, au niveau de l'appareil lui-même, donc sans inclure la ligne d'échantillonnage.

L'analyseur O<sub>3</sub> du LCSR a été calibré par le constructeur en début de campagne. Malheureusement, il n'a pas été vérifié en fin de campagne. On ne peut donc dire s'il est resté stable durant l'étude ou si une dérive est apparue.

Le compte rendu des deux calibrages effectués avant et après la campagne de mesure sur l'analyseur O<sub>3</sub> LIG' AIR sont les suivants :

LIG' AIR	Calibrages		Écarts / début de campagne	
	Linéarité	Offset	Linéarité (%)	Dérive (% 100ppb)
Appareil O <sub>3</sub>				
13/05 Control	0,99	0	+ 5 %	0
12/06 calibrage	1,04	0		

On observe donc une très légère dérive de linéarité sur l'analyseur LIG'AIR. EN revanche aucun biais n'est apparu sur l'instrument en cours de campagne, l'offset étant resté nul pour les deux calibrages.

Ces deux appareils devaient donc, en toute rigueur, indiquer des mesures semblables lors de cette campagne de mesure, à 5% près.

Or, la comparaison de ces mesures a montré un offset entre les deux instruments de  $5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  et un écart de linéarité de 8 %.

Cet écart sur les mesures pourrait avoir plusieurs origines. L'emplacement de la prise d'air d'un analyseur peut influencer sur la qualité de la mesure. En effet, en comparant les résultats obtenus avec les analyseurs LIG'AIR et LCSR, on peut constater qu'il existe un offset de  $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$  sur les valeurs de concentration. Or ces deux analyseurs n'étaient pas situés à plus de 10 mètres l'un de l'autre, mais les prises d'airs étaient à des altitudes différentes (environ 3 mètres pour LIG'AIR et supérieure à 7 mètres pour LCSR). Or, pour une altitude allant jusqu'à 3- 5 mètres, la masse d'air subit l'action du sol par frottement, et une petite couche convective apparaît dans les premiers mètres au-dessus du sol (couche de surface), où les polluants sont brassés et les masses d'air homogénéisées.

De même, les vitesses de dépôts présentent sur le site, dont la caractéristique est de diminuer fortement avec l'altitude, pouvaient entraîner une sous-estimation des mesures LIG'AIR par rapport aux mesures LCSR. Cela pourrait alors expliquer pour partie cet écart de 8 % entre les deux instruments. Néanmoins, la vitesse de dépôt est également un phénomène diurne (forte de jours, faible la nuit) qui dépend aussi de la vitesse du vent. Il est donc surprenant que cet écart ne possède pas de cycle diurne. Il est également possible que le taux d'humidité entraîne un décalage de linéarité sur l'un des analyseurs. Une comparaison des mesures d'ozone avec la variation d'humidité relative en fonction du temps permettrait de le confirmer. En effet, certains analyseurs peuvent être très sensibles à toute variation d'humidité, comme le montre le rapport LCSQA 2003 sur l'évaluation des analyseurs d'ozone.

Néanmoins, cette incertitude générée par la mise en comparaison des deux instruments, reste très inférieure aux limites européennes fixées à 15%, compte tenu des concentrations d'ozone présentes sur le site durant cette campagne.

### 5.2.3 Couplage LIDAR-Analyseur pour le 31 mai 2003 (influence du rayonnement sur la dynamique verticale)

La comparaison entre des mesures LIDAR et des analyseurs ponctuels installés au sol est, d'une manière générale, délicate à réaliser. En effet, compte tenu des principes de mesures associés, il n'y a pas de colocalisation des mesures. Cette comparaison doit alors faire ressortir des similitudes lorsque l'atmosphère est homogène, mais également de grosses disparités lorsque cette dernière possède une hétérogénéité horizontale ou une stratification verticale.

La comparaison des mesures LIDAR avec des analyseurs nous a alors permis de mieux comprendre l'influence du rayonnement ou des conditions météorologiques sur la stratification verticale.

On s'est intéressé notamment à la journée du 31 mai 2003, qui possédait les caractéristiques suivantes :

- dynamique importante sur la concentration d'Ozone (taux de formation élevé) jusqu'à 15h
- passage nuageux entre 15h et 16h, ayant engendré une stratification verticale de l'atmosphère

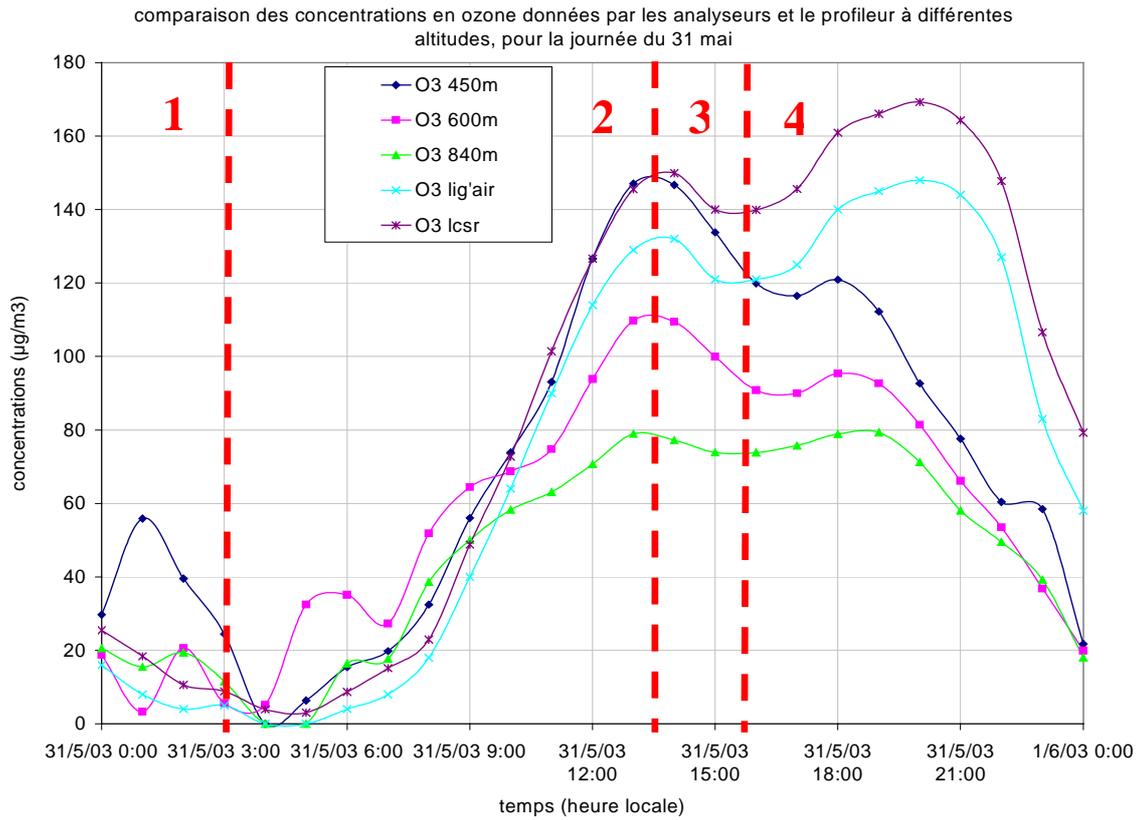


Figure 11 : Couplage LIDAR-Analyseur, pour la journée du 31 mai 2003

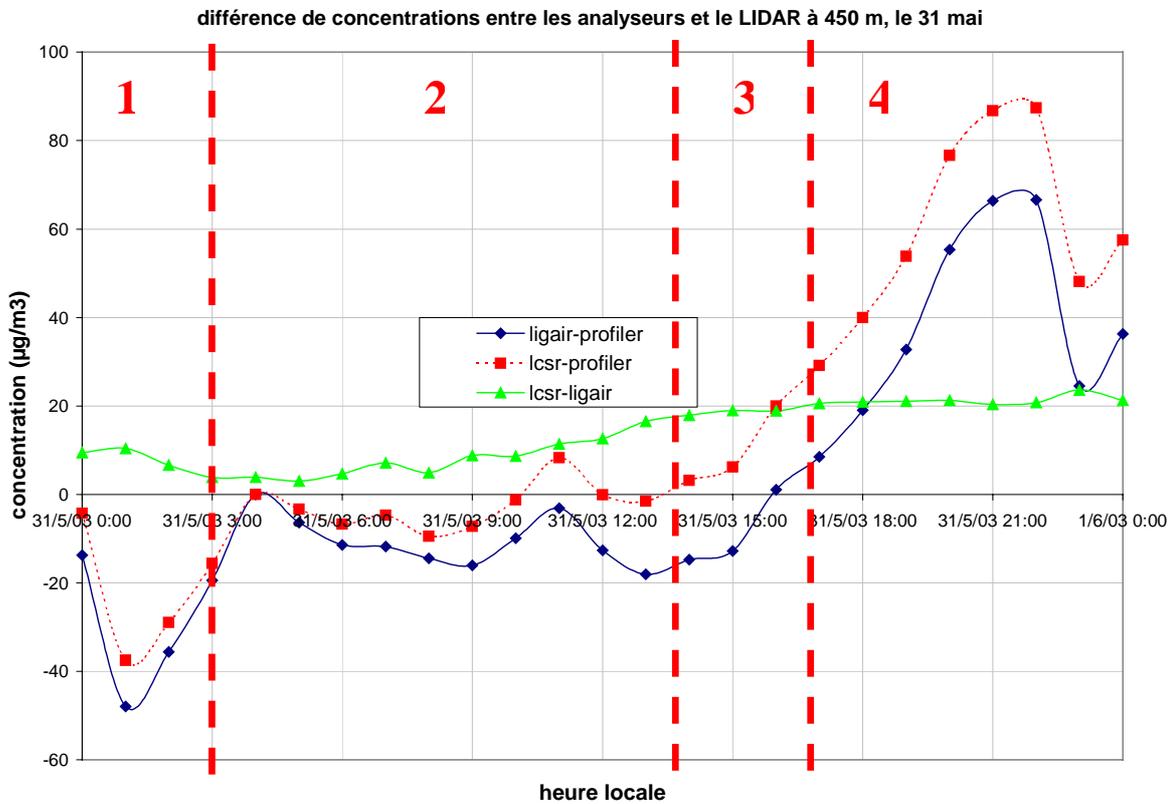


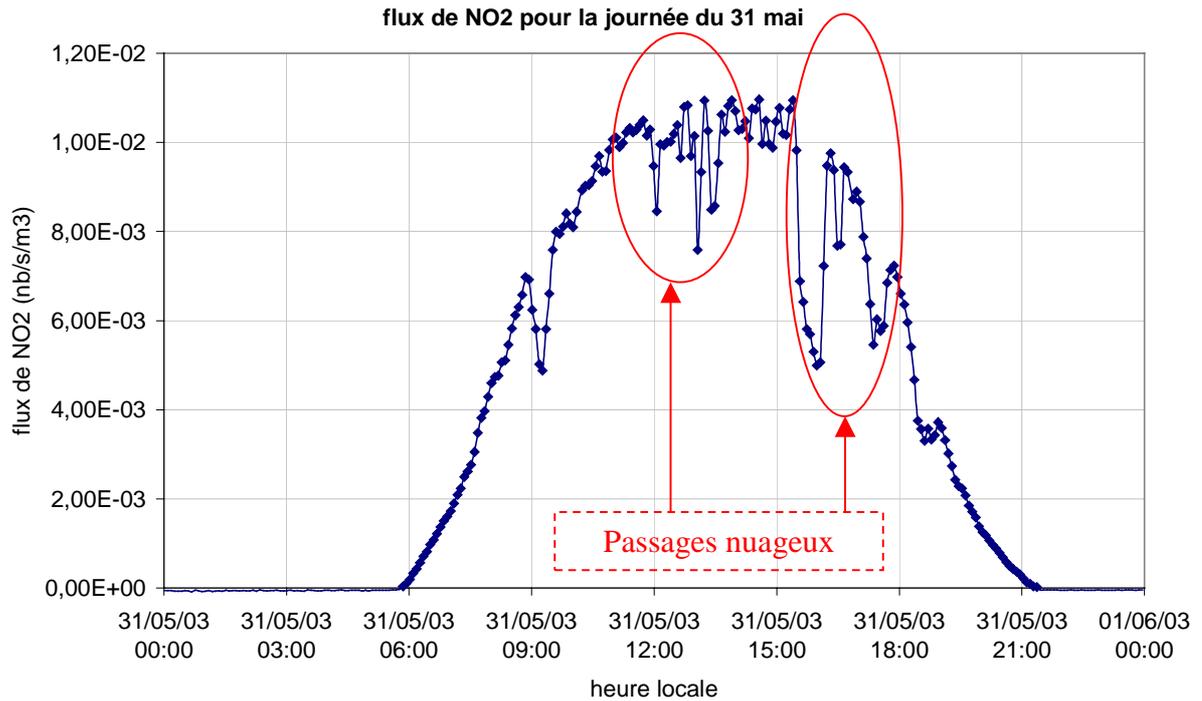
Figure 12 : Etude des écarts entre les mesures d' $\text{O}_3$  au sol et par LIDAR à 450 m

Les deux figures précédentes permettent de mettre en évidence la complémentarité entre des mesures LIDAR et des mesures au sol, dans la compréhension de la dynamique de l'ozone :

Zone 1 : on observe, dans cette zone, que les données au sol sont proches de celles obtenues en altitude, excepté pour la mesure LIDAR obtenue à 450 m. En comparant avec le profil vertical d'extinction, on constate que la couche limite est descendue vers 1h jusqu'à environ 500 mètres. Or, comme nous l'avons vu précédemment, les valeurs des concentrations sont obtenues par moyennes dynamiques. A 450 mètres, la moyenne est faite entre 360 et 540 mètres, donc située sur la zone de transition correspondant à la couche limite atmosphérique. L'écart constaté sur la valeur à 450 m correspond donc ici à une interférence due aux aérosols. La charge en aérosols sous la couche limite a été quantifiée avec l'algorithme de Klett décrit dans le paragraphe suivant : le calcul du coefficient de rétrodiffusion  $R(z)$  entre 400 et 500 mètres est de l'ordre de 2, permettant de conclure que la contribution aux effets optiques présente dans cette couche est autant due aux molécules qu'aux aérosols. Finalement, cette zone possède donc une homogénéité verticale de la concentration en Ozone en période nocturne, avec des concentrations au sol identiques à celles obtenues à 800 m d'altitude donc au-dessus de la couche limite atmosphérique. Ce résultat obtenu en zone rurale, donc sans émission locale de NO, permet de définir les niveaux de fonds présents ce jour sur l'ensemble du domaine.

Zone 2 : on constate une très bonne adéquation entre les données au sol et celles en altitude lorsque les phénomènes convectifs se mettent en place et engendre une relative homogénéité verticale de la concentration, pour des altitudes à l'intérieure la couche limite atmosphérique. L'étude des écarts entre les données au sol et celles obtenues en altitude permet également de quantifier la stratification verticale présente et l'étendue spatiale de ces échanges verticaux. En effet, on observe une diminution constante de la concentration avec l'altitude, qui permet alors de quantifier l'impact vertical des mouvements convectifs présents durant cette période.

Zone 3 : on constate l'apparition d'un écart entre les concentrations au sol et celles obtenues à basse altitude. Il est consécutif à un passage nuageux limitant les effets convectifs, clairement mis en évidence en analysant l'évolution du  $JNO_2$  durant cette journée (mesures effectuées par le LCSR). On a alors une stabilisation des couches atmosphérique compte tenu du flux radiatif vertical réduit. En effet, le flux de  $NO_2$  (ou  $JNO_2$ ) est un indicateur du nombre de molécules de  $NO_2$  de l'atmosphère, résultant de leurs formations à partir du NO en présence du rayonnement et de leurs destructions en l'absence de rayonnement (passage d'un nuage par exemple). Il renseigne donc sur l'importance de rayonnement dans la journée.



*Figure 13 : Evolution de JNO<sub>2</sub> le 31 mai, montrant deux passages nuageux*

Zone 4 : on observe une stabilisation de la stratification atmosphérique avec la persistance d'une photo-chimie au sol durant quelques heures, qui ne peut être réalisée en altitude faute de précurseurs portés par ces effets convectifs.

Ainsi, cet exemple, choisi compte tenu de la complexité des phénomènes présents durant cette journée, permet de confirmer l'apport essentiel du couplage LIDAR-Analyseur dans la compréhension de la dynamique de l'ozone et des échanges verticaux.

### 5.2.4 Étude du 2 juin 2003 (influence d'un Orage de chaleur)

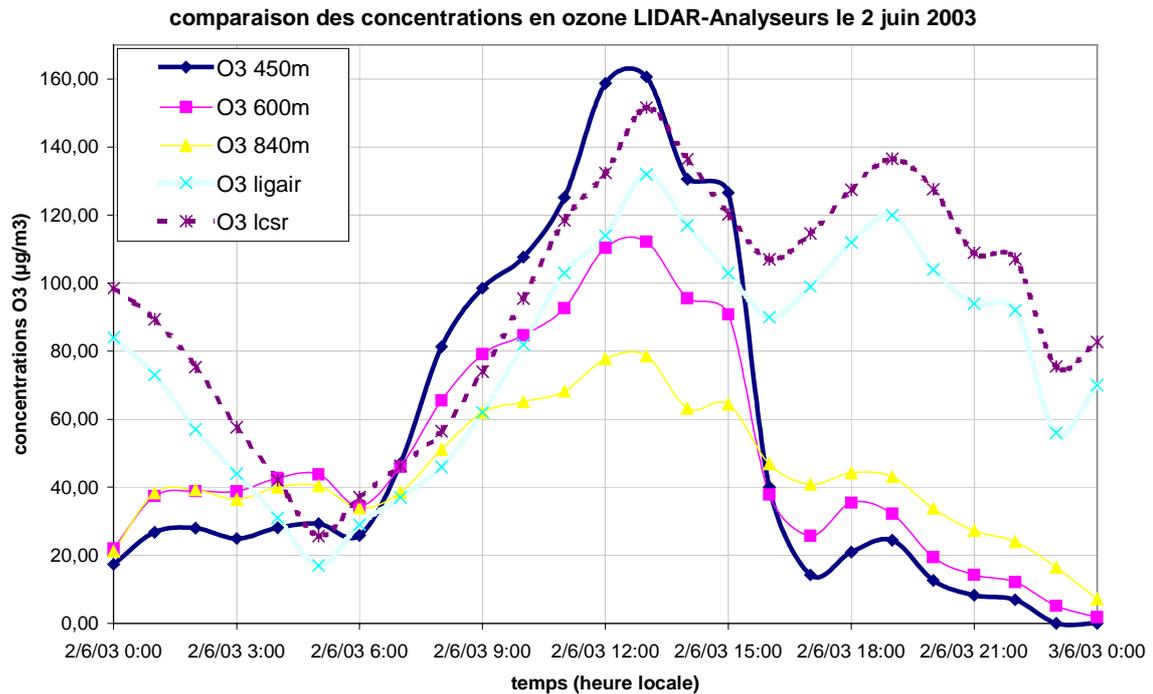


Figure 14 : Couplage LIDAR-Analyseurs le 2 juin 2003 caractérisé par un orage de chaleur en fin d'après midi

De même, nous avons choisi la journée du 2 juin 2003, afin de mettre en évidence l'influence d'un passage orageux sur le profil vertical de concentration en ozone.

Les deux figures ci-après montrent un très bon accord entre les données LIDAR et celles des analyseurs au sol, jusqu'à l'apparition d'un orage de chaleur vers 15h locale :

0h-5h : disparité entre les mesures en altitude et celles au sol, qui est générée par une forte stratification atmosphérique. Les effets de surface et la vitesse de dépôt nocturne tendent à détruire l'ozone au sol, permettant d'obtenir une homogénéité verticale des concentrations vers 5h locale.

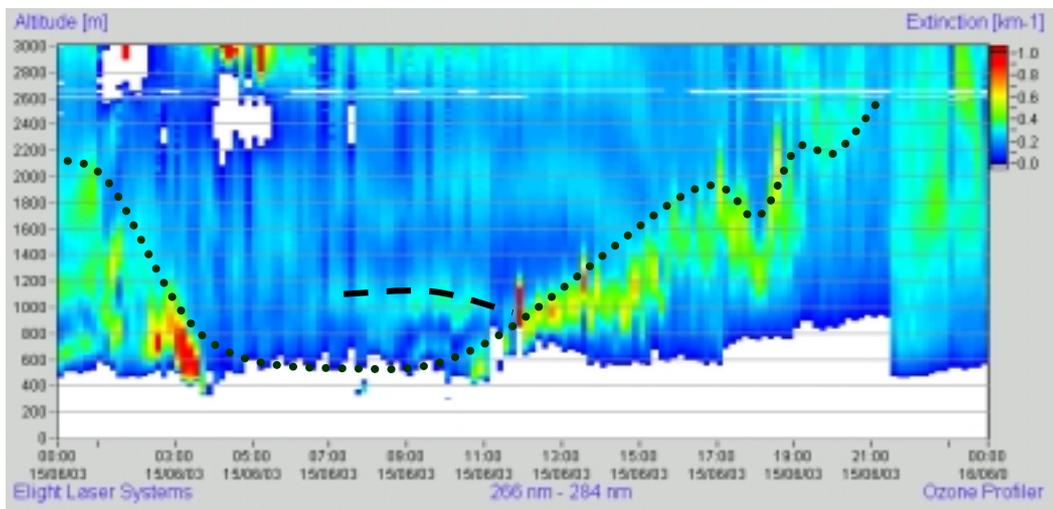
5h-15h : très bon accord entre les mesures au sol et la mesure LIDAR à 450 m démontrant l'homogénéité atmosphérique consécutive à la mise en place des effets convectifs diurnes. On observe, par ailleurs, un effet de dilution verticale caractérisée par un gradient de concentration, notamment de 600 m à 800 m d'altitude.

15h-24h : forte disparité entre les mesures en altitude et celles au sol consécutive au passage d'un orage de chaleur très localisé. Il est logique, dans ce cas, d'avoir une très forte diminution des concentrations en Ozone, comme cela est constaté sur les mesures LIDAR. En revanche, nous n'expliquons pas la présence d'une forte concentration en Ozone au sol, alors que l'orage était important et aurait dû, en toute rigueur, supprimer tous les précurseurs d'Ozone et faciliter sa réduction par des processus de chimie hétérogène. Ici encore, se pose la question de l'influence de fortes variations temporelles d'humidité sur la mesure d'ozone effectuée par les analyseurs ? Néanmoins, il s'agit d'hypothèses très préliminaires, qui nécessitent d'être approfondies en utilisant les mesures en cours de traitement des autres équipes présentes sur le site. En effet, si une forte variation de l'humidité relative a été enregistrée, elle a, en toute vraisemblance, été associée à une variation de température, réduisant ainsi sa variabilité temporelle en concentration absolue.

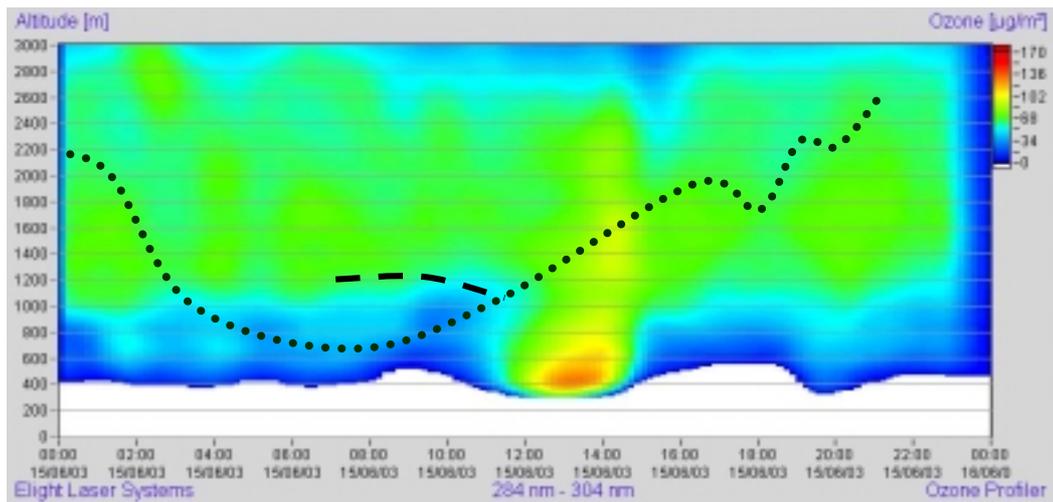
Finalement, cet exemple, nous permet de confirmer le bon accord entre les mesures LIDAR et les mesures au sol, lorsque les couche atmosphériques considérées sont identiques et en absence de fortes variations temporelles du taux d'humidité relative.

### 5.3 INFLUENCE DE LA COUCHE LIMITE SUR LA CONCENTRATION EN OZONE

La hauteur de la couche limite atmosphérique est également un paramètre important car sa connaissance permet de déterminer notamment la hauteur de la couche de mélange, zone ayant un impact régional, qui est une caractéristique fondamentale pour la compréhension de la dynamique atmosphérique et l'apparition de pics de pollution. Dans l'exemple ci-dessous, la couche limite, visible sur le graphe d'extinction, est générée par une inversion de température de l'ordre de 1 °C à cette altitude.



*Figure 15 : Extinction atmosphérique en fonction de l'altitude, le 15 juin où le trait en pointillé correspond à la couche limite atmosphérique.*



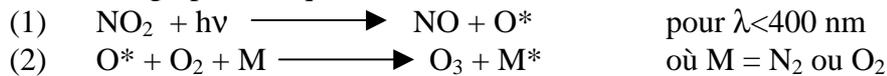
*Figure 16 : Concentration en Ozone, donnée par le couple 284 – 304 nm en fonction de l'altitude pour le 15 juin*

En comparant les graphes d'extinction et d'ozone ci-dessus on a constaté que l'augmentation de la concentration d'ozone de 400 à 1000 mètres l'après-midi est directement liée à la montée de la couche limite représenté par la courbe en pointillés sur les deux figures ci-dessus.

En effet, le rayonnement solaire induit un flux convectif entre le sol et la couche limite, créant une cellule de mélange. Cette cellule, en effectuant un brassage vertical, favorise les processus photochimiques des précurseurs d'ozone.

### 5.3.1 Cycle diurne de l'ozone, journée du 15 juin 2003

D'une manière générale, en absence de COV, il existe schématiquement un équilibre entre  $\text{NO}_2$ ,  $\text{NO}$  et  $\text{O}_3$ , régit par les équations suivantes :



En l'absence de rayonnement solaire, l'ozone est détruit la nuit en présence de  $\text{NO}$  pour reformer du  $\text{NO}_2$ , selon la réaction :



La nuit, la convection négligeable couplée à la présence de réducteurs et à des vitesses de dépôt d'ozone élevées (forte rugosité due au type de surface : arbres, champs...) expliquent les faibles niveaux d'ozone observés au sol pour le 15 juin. Finalement, on doit être en présence d'un fort gradient nocturne pour le polluant Ozone, où se forme en altitude un réservoir d'ozone.

A contrario, lorsque l'ensoleillement est suffisant et que la convection s'est installée (entre 10h et 12h), les couches se mélangent et les concentrations s'homogénéisent. En effet, le  $\text{NO}_2$  formé pendant la nuit va être transporté à des altitudes plus élevées où il est transformé en ozone et l'ozone du réservoir va être ramené au sol par le flux d'air convectif. Cette situation est propice à un épisode de pollution puisqu'on assiste à une accumulation d'ozone, correspondant au réservoir de la veille et de la photochimie du jour. De plus les 2 figures précédentes et notamment le profil vertical d'extinction illustrent très bien cette idée puisqu'il semble y avoir deux couches distinctes avant 10h (vers 700 et 1000 mètres), qui se mélangent ensuite après 10h, heure où l'on assiste à une augmentation de la concentration vers 500 mètres.

En observant le profil vertical de concentration en Ozone pour cette journée, on constate que cette dernière augmente avec le rayonnement solaire, et atteint un maximum entre 12h et 15h, où il est le plus intense. Les réactions (1) et (2) sont limitées par la concentration de  $\text{NO}_2$  et le rayonnement. En effet, plus ces deux facteurs sont importants, plus il y aura de  $\text{NO}$  formé, et donc plus la réaction (3) pourra se faire, ce qui limitera la concentration d'ozone.

De plus, une autre réaction peut avoir lieu en présence de rayonnement : il s'agit de la photodissociation de l'ozone, selon la réaction :



L'atome d'oxygène formé permettra la formation de la molécule  $\text{OH}$ , appelée nettoyeur atmosphérique car cette molécule est une des plus oxydantes, alors que la molécule de

dioxygène excitée, couplée à un alcène, donnera lieu à des produits irritants et cancérigènes.

Ainsi, plus le rayonnement est intense et plus la concentration d'ozone augmente. Toutefois, celle-ci peut être détruite par le NO selon la réaction (3) à proximité plus ou moins immédiate de sources d'émissions.

En milieux urbains, le NO et le NO<sub>2</sub>, principalement rejetés par les transports, les zones industrielles et le chauffage urbain, limitent la concentration d'ozone (1) et tendent à le détruire (3). Toutefois, sous l'effet du vent, il arrive que ceux-ci soient transportés hors des villes, influant sur la concentration d'ozone dans les campagnes.

En milieux ruraux, il n'y a pas ou peu de rejets de NO<sub>x</sub>, donc peu de NO produit par réaction (1). De plus celui-ci est dilué par les flux convectifs. Dans ce cas, l'ozone produit par les villes et entraîné par le vent, se retrouve dans les campagnes sans pouvoir être détruit par le NO, et s'accumule. Cette accumulation est d'autant plus forte qu'il y a présence d'une couche limite, car celle-ci empêche l'ozone de diffuser vers les hautes altitudes. Enfin, en zone rurale, la présence de COV biogéniques (notamment des terpènes...), accentuent encore ce phénomène en favorisant la production d'ozone, tout en limitant ses possibilités de destruction.

Finalement, le site de Rossfeld, à 30 km au Sud de Strasbourg devrait permettre de vérifier l'augmentation de concentration d'ozone en zone rurale. Néanmoins, cette confirmation demande un couplage des données LIDAR avec les émissions de COV biogéniques et les valeurs de NO<sub>x</sub>. Un programme de recherche engagé par l'INERIS est actuellement en cours sur ce sujet, dont l'objectif principal est de quantifier l'influence des émissions biogéniques sur le taux de production d'ozone. Des analyses de COV en zone rurale ont été effectuées durant cette campagne INTERREG, qui devraient très prochainement être couplées aux mesures LIDAR d'Ozone et de hauteur de couche limite ainsi qu'aux mesures de NO<sub>x</sub> enregistrées sur l'ensemble du domaine d'étude.

### 5.3.2 Essais de quantification des aérosols atmosphériques par LIDAR

Nous avons vu que de fortes variations spatiales de la concentration en aérosols peuvent influencer la concentration d'ozone par LIDAR, donc au niveau de la hauteur de la couche limite. Connaître le profil vertical de concentration en aérosols permettrait alors de réduire l'interférence de ces derniers sur la concentration d'ozone. Néanmoins cette tâche est très délicate à réaliser. En effet, si deux molécules d'ozone possèdent des réponses optiques identiques, il n'en est pas de même pour deux particules en apparence identiques : la signature optique d'une particule ne dépend pas uniquement de sa composition chimique (suie, silice, nitrates...), mais également de sa forme (sphérique, paillette), de sa taille (diamètre optique), de sa phase (liquide, solide) et de sa structure (pleine, composée d'interstices, mais aussi sèche ou recouverte d'eau).

De nombreuses études sont en cours, visant à effectuer une caractérisation par LIDAR des aérosols. Néanmoins, aucun instrument opérationnel n'existe réellement. En revanche, les recherches en cours ont permis d'obtenir de premiers résultats prometteurs. Ainsi, sur la base de l'instrument LIDAR présent lors de cette campagne INTERREG, il est possible d'obtenir une première évaluation de la charge en aérosols présente. Pour ce faire, nous avons effectué un essai de caractérisation des aérosols par LIDAR, en utilisant les algorithmes développés dans nos programmes de recherches. L'objectif était de montrer que cet instrument permettait de fournir une première évaluation de la répartition verticale du paramètre microphysique des aérosols présents.

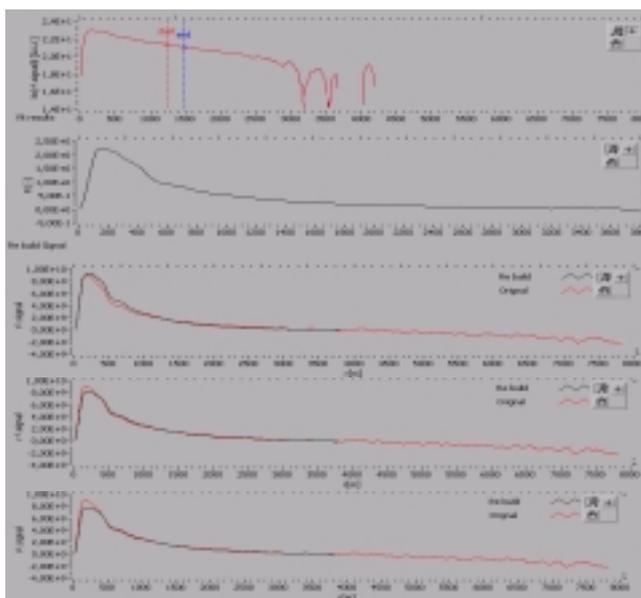
L'instrument utilisé devait permettre de préciser les éventuelles variations avec l'altitude de  $G(z)$ , paramètre traduisant les propriétés microphysiques des particules où toute variation de  $G(z)$  pouvait traduire une variation en taille ou en composition chimique (taux d'humidité présente sur les particules ou transformation chimique), sans différenciation possible.

Le traitement LIDAR initial, effectué pour cette campagne de mesures, permet d'obtenir, à partir des signaux rétrodiffusés, les valeurs d'extinction  $\alpha(z)$  en fonction de l'altitude, du temps et du couple de longueur d'onde. Cette grandeur, exprimée en  $\text{km}^{-1}$ , traduit le taux d'extinction de la lumière par un milieu (l'atmosphère). Il est à rapprocher de la visibilité atmosphérique. Ces valeurs d'extinction peuvent alors nous renseigner sur la charge en aérosols de l'atmosphère. Pour ce faire, il existe deux méthodes principales :

- celle des pentes, qui se fonde sur l'hypothèse que l'atmosphère est homogène par zone, ce qui permet de supposer que le coefficient de rétrodiffusion  $\beta$  reste constant dans chacune des zones. Cette méthode, utilisée couramment par les principaux logiciels de traitement LIDAR, ne fournit qu'une idée approximative de la présence d'aérosols en analysant l'extinction du signal  $\alpha$ .

- celle de Klett, utilisant une relation entre  $\beta$  et  $\alpha$ , qui donne un résultat beaucoup plus précis mais qui suppose que la distribution de probabilité sur la taille ne change pas avec l'altitude. Elle permet alors d'obtenir le profil vertical de charge en aérosols  $R(z)$  ainsi que les propriétés microphysiques des particules présentes  $G(z_0)$ . Une description de cet algorithme est présente en annexe E de ce document. On retiendra que  $R(z)$  correspond à la charge en aérosols présents : lorsqu'il est de 1,0 nous n'avons pas de rétrodiffusion issue des aérosols, mais uniquement une rétrodiffusion générée par les molécules ; lorsqu'il est de 1,1, nous avons 10 % de la rétrodiffusion qui est due aux aérosols.

Nous avons alors étudié en détail la nuit du 31 mai 2003, où nous avons vu précédemment qu'elle présentait une forte stratification verticale et une influence importante des aérosols sur la mesure de la concentration d'Ozone. D'une manière générale, nous nous attendions à avoir durant la nuit de grosses particules au sol, en raison de la forte humidité locale, ainsi que des particules de type urbaines proches de la couche limite atmosphérique,



Signal LIDAR initial le 31 mai à 0H

Calcul de  $R(z)$  de charge en aérosols

Recouvrement du sol à 200 m  
 $g(z_0) = 19 \quad R_0 = 1.03$

Recouvrement de 200 m à 400 m  
 $g(z_0) = 16.5 \quad R_0 = 1.01$

Recouvrement de 400 m à 500 m  
 $g(z_0) = 16 \quad R_0 = 1.04$

*Figure 17 : Caractérisation de la charge en aérosols atmosphériques ainsi que du paramètres micro-physiques associés.*

L'exemple précédent utilise un algorithme spécifique (décrit en annexe E) permettant de calculer l'évolution verticale du paramètre microphysique des particules présentes ainsi qu'une évaluation de la répartition verticale de la charge. L'idée consiste à définir un paramètre microphysique  $G(z_0)$  de manière à reproduire très exactement le signal LIDAR initial : on suppose alors que l'atmosphère est homogène et que  $G(z_0)$  ne dépend pas de l'altitude. De même, une évaluation de la concentration en particules est fournie par  $R_0$  qui correspond au rapport de rétrodiffusion total (moléculaire et particulaire). On a obtenu trois résultats préliminaires :

- il n'existe pas un unique paramètre microphysique  $G(z_0)$  permettant de reproduire l'ensemble du signal, mais qu'il en existe plusieurs, qui permettent une reconstruction par morceaux de ce signal LIDAR,
- l'atmosphère libre est très peu chargée en particules : le rapport  $R_0$  en atmosphère libre est de l'ordre de 1.01 à 1.04 (1 à 4 % de la rétrodiffusion atmosphérique est due aux particules en atmosphère libre),
- à proximité immédiate du sol, l'action des particules est aussi importante que celle des molécules car le rapport de rétrodiffusion  $R(z)$  devient proche de 2.

Ainsi, on observe par exemple des couches atmosphériques caractérisées par des paramètres microphysiques différents et notamment une diminution avec l'altitude de ce paramètre. Or, de nombreuses études montrent qu'un paramètre microphysique de l'ordre de 15-16 est caractéristique d'un aérosol urbain, tandis qu'un paramètre de l'ordre de 19 peut traduire des particules plus grosses ou plus humides. Cet exemple permet alors de montrer qu'il existe une stratification verticale des aérosols, avec des particules humides en dessous de 200 m et des particules de types urbaines au-dessus de 400-500 m.

Il s'agit, là encore, de résultats préliminaires qui devront être couplés avec d'autres instruments et notamment l'avion METAIR, dans le cadre de ce programme INTERREG. Néanmoins, cette campagne de mesures a permis de démontrer le rendu opérationnel des LIDAR gaz et leur apport essentiel dans la documentation de la basse troposphère lorsqu'ils sont couplés à des analyseurs ponctuels.

## **6. CONCLUSION GENERALE**

---

L'INERIS, dans le cadre de sa mission d'assistance auprès des AASQA, a réalisé une campagne LIDAR en partenariat avec l'ASPA, une association agréée de surveillance de la qualité de l'air, avec pour objectif principal, de démontrer la faisabilité d'une surveillance en continu de la concentration en ozone du sol à la troposphère libre comme outil de paramétrage et instrument de validation de modèles tridimensionnels.

La campagne INTERREG IIIμ, intitulée « Système commun d'évaluation et d'information sur la qualité de l'air dans l'espace du Rhin supérieur », a été organisée par l'ASPA (Association pour la Surveillance et l'étude de la Pollution Atmosphérique en Alsace). Réalisée du 19 mai au 16 juin 2003, elle a regroupé 30 équipes françaises ou allemandes et a permis de constituer une base de données pour la zone du Rhin supérieur.

L'INERIS est intervenu en instrumentant un des différents sites de mesures, d'un LIDAR Ozone fonctionnant en continu durant ce mois de campagne. L'intervention effectuée et les résultats obtenus lors de cette campagne devaient fournir également un retour d'expérience important sur la qualité des données escomptées et sur la faisabilité d'une surveillance en continu de la structure atmosphérique et sa dynamique.

N'ayant pas pu livrer le nouveau LIDAR de l'INERIS dans les temps, le constructeur ELIGHT LASER SYSTEM a fourni un PROFILER vertical d'Ozone pour les besoins de cette campagne. Il s'agit d'un LIDAR vertical centré sur la mesure de l'O<sub>3</sub> à trois longueurs d'onde, qui fournit également une information qualitative des aérosols présents au travers de l'extinction atmosphérique. Cet appareil devait initialement fonctionner en continu durant les différentes POI, mais nous avons néanmoins évalué son fonctionnement sur l'ensemble de la campagne de mesure, à savoir du 19 mai au 16 juin 2003.

Tous les résultats obtenus durant cette campagne ont été insérés dans la base de données INTERREG. Ainsi, pour chaque journée, sont disponibles les profils verticaux quotidiens suivants :

- de concentration en ozone brute. Il s'agit des profils verticaux bruts, donc sans aucune interpolation verticale ou temporelle,
- de concentration en ozone avec des interpolations verticale de 100 m et temporelle de 10 minutes,
- des écarts-types instrumentaux associés à la concentration en ozone ci-dessus, exprimés en  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  réels,
- de l'extinction atmosphérique à 284 ou 304 nm, exprimés en  $\text{km}^{-1}$  qui traduit la visibilité et fournit un suivi de la dynamique de la couche limite atmosphérique,
- de rétrodiffusion atmosphérique, exprimée en mV et traduisant l'écho renvoyé par les différentes couches atmosphériques.

S'agissant du tout premier PROFILER d'Ozone de cette technologie, nous avons néanmoins constaté quelques dysfonctionnements, comme c'est généralement le cas sur un appareil de technologie innovante. Nous avons ainsi constaté des effets de condensation sur les parties optiques (donc froides), notamment en début de matinée. Nous étions, en effet, situés sur une zone très humide, avec un taux d'humidité relative très souvent proche de 100 %. Ce problème a été responsable d'environ 80 % des pertes de données constatées.

D'une manière générale, le taux de mesures exploitables, c'est-à-dire celles fournissant un profil vertical de concentration et son incertitude, a été d'environ 80 % pour la période du 29 mai au 15 juin, incluant les deux périodes intensives de mesures programmées par l'ASPA. Nous avons donc confirmé le caractère autonome de cet instrument une fois résolus les quelques dysfonctionnements initiaux. En revanche, la portée de cet instrument, dans sa configuration initiale, n'a pas permis des mesures au-dessous de 300 m ainsi qu'au-dessus de 2 000 m d'altitude.

Bien que la base de données soit en cours de construction et que les mesures obtenues par les différentes équipes présentes soient en cours de traitement, nous avons obtenu quelques résultats préliminaires en comparant les données LIDAR avec des analyseurs ponctuels installés sur le site de mesures. Nous avons ainsi confirmé la qualité des données LIDAR, bien que cette comparaison reste délicate à effectuer du fait de la non colocalisation des mesures, notamment en atmosphère stratifiée. L'étude d'une journée particulière, choisie compte tenu de la complexité des phénomènes présents durant cette journée, a ainsi permis de confirmer l'apport essentiel du couplage LIDAR-Analyseur dans la compréhension de la dynamique de l'ozone et des échanges verticaux.

Les caractéristiques de l'appareil ont également permis d'obtenir 3 profils verticaux quotidiens de concentration en ozone. Leur mise en comparaison a permis de montrer l'influence du réglage de l'unité de réception sur la mesure, ainsi que l'influence de fortes variations spatiales en aérosols sur la concentration en ozone. Ainsi, nous avons pu montrer qu'une incertitude importante (20 %) peut être présente sur la concentration en

ozone mesurée au niveau de la hauteur de la couche limite. Connaître la concentration en aérosols permettrait alors de réduire cette incertitude. Néanmoins, cette caractérisation par LIDAR des aérosols reste très délicate à réaliser et nécessite des outils LIDAR spécifiques. Nous avons néanmoins obtenu, en utilisant cet instrument et sur la base d'algorithmes développés dans le cadre de nos programmes de recherche, une première évaluation de la charge en aérosols présente sur le site. L'objectif était de montrer que cet instrument permettait de fournir une première évaluation de la répartition verticale du paramètre microphysique des aérosols présents (hygroscopie, taille, composition chimique, phase) ainsi que le profil vertical de charge en aérosols. On a alors montré la présence de couches atmosphériques caractérisées par des paramètres microphysiques différents et notamment une diminution avec l'altitude de ce paramètre et donc qu'il existe une stratification verticale des aérosols, avec des particules humides en dessous de 200 m et des particules de types urbaines au-dessus de 400-500 m. De même, on a pu quantifier, pour une journée particulière, que le diamètre moyen des aérosols décroît avec l'altitude.

Il s'agit, là encore, de résultats préliminaires qui devront être couplés avec d'autres instruments et notamment l'avion METAIR, dans le cadre de ce programme INTERREG. Néanmoins, cette campagne de mesures a permis de démontrer le rendu opérationnel des LIDAR gaz et leur apport essentiel dans la documentation de la basse troposphère lorsqu'ils sont couplés à des analyseurs ponctuels.

## 7. LISTE DES ANNEXES

---

<b>Repère</b>	<b>Désignation précise</b>	<b>Nb/N°pages</b>
A	Partenaires de la campagne INTERREG III $\mu$	2/40
B	Moyens mis en œuvre lors d'INTERREG III $\mu$	4/42
C	Description de l'interaction de type Reyleigh	2/46
D	Description de l'interaction de type Mie	2/48
E	Description de la méthode de Klett d'obtention du paramètre micro-physique des aérosols et de leur charge	4/50
F	Exemple de résultats LIDAR en format texte et BMP	1/54

## **ANNEXE A : PARTENAIRES DE LA CAMPAGNE DE MESURE INTERREG IIIμ**

Ce projet a été cofinancé par la Communauté européenne et notamment le Fond européen de développement régional (FEDER)

### **Membres du groupe de projet et cofinanceurs**

- Agence De l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie
- Région Alsace
- ASPA Association pour la surveillance et l'étude de la pollution atmosphérique en Alsace.
- UMEG Zentrum für Umweltmessungen, Umwelterhebungen und Gerätesicherheit, Karlsruhe
- LHA Lufthygieneamt beider Basel

### **Partenaires scientifiques associés**

#### 1. Pour l'ensemble du projet:

- Laboratoire de Physico-Chimie de l'Atmosphère LPCA Université Louis Pasteur /Strasbourg /France,
- IER Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung Universität Stuttgart /Deutschland,
- Institut fuer Geophysik und Meteorologie– EURAD-Projekt – Universität Köln /Deutschland,
- Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne /Suisse,
- Laboratoire de Météorologie Dynamique – IPSL –Institut Pierre Simon Laplace /Paris /France,
- Laboratoire de Gestion des Risques et Environnement / Université de Haute-Alsace, Mulhouse/France

#### 2. Les partenaires associés pour la campagne de mesure

- Laboratoire de Gestion des Risques et Environnement - GRE - Université de Haute-Alsace / Mulhouse / France,
- Météo France Direction Interrégionale Nord-Est – DIRNE / Illkirch Graffenstaden / France,
- INERIS (Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques) / Verneuil en Halatte / France,
- Laboratoire de Météorologie Physique – LaMP / Clermont-Ferrand / France,
- Brandenburgische Technische Universität BTU / Berlin / Deutschland,
- Laboratoire de Combustion et Systèmes Réactifs - LSCR / Orléans / France,
- Laboratoire Chimie et Environnement - LCE / Marseille / France,
- Max Planck Institut - MPI / Mainz / Deutschland,
- Laboratoire d'Optique Atmosphérique - LOA / Villeneuve d'Ascq / France,
- Joint Research Center of the European Commission – JRC / Ispra / Italie,
- Physikalische Chemie Universität Wuppertal / Deutschland,
- DEGREANE Météorologie / Toulon / France,,

- Complexe de Recherche Interprofessionnelle en Aérothermochimie - CORIA / Rouen / France,
- EPFL Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne /Suisse,
- MetAir / Menzingen / Suisse,
- Fraunhofer-Institut für Atmosphärische Umweltforschung FZK IMH-IFU /Garmisch-Partenkirchen / Deutschland
- ONERA - Office National d'Etudes et de Recherches Aérospatiales / France,
- Laboratoire des Sciences de l'Image, de l'Informatique et de la Télédétection - LSIIT- ULP Strasbourg / France,
- Zentrum für Umweltmessungen, Umwelterhebungen und Gerätesicherheit UMEG, Karlsruhe // Deutschland
- AASQA : Associations agréées de surveillance de la qualité de l'air / France :

ASCOPARG–COPARLY –SUPAIRE /Rhône Alpes;      ESPOL Lorraine / St Avold ;  
 ATMO-Champagne-Ardenne / Reims ;      ARPAM-ASQAB Franche Comté / Besançon ;  
 ATMOSF' AIR - Bourgogne / Dijon ;      AIRLOR Lorraine / Nancy ;  
 AIRBREIZ Bretagne/ Rennes ;      ATMO Auvergne / Clermont-Ferrand ;  
 LIG' AIR Centre/ Orléans ;      ATMO Picardie / Amiens.  
 ASPA – Alsace/ Strasbourg

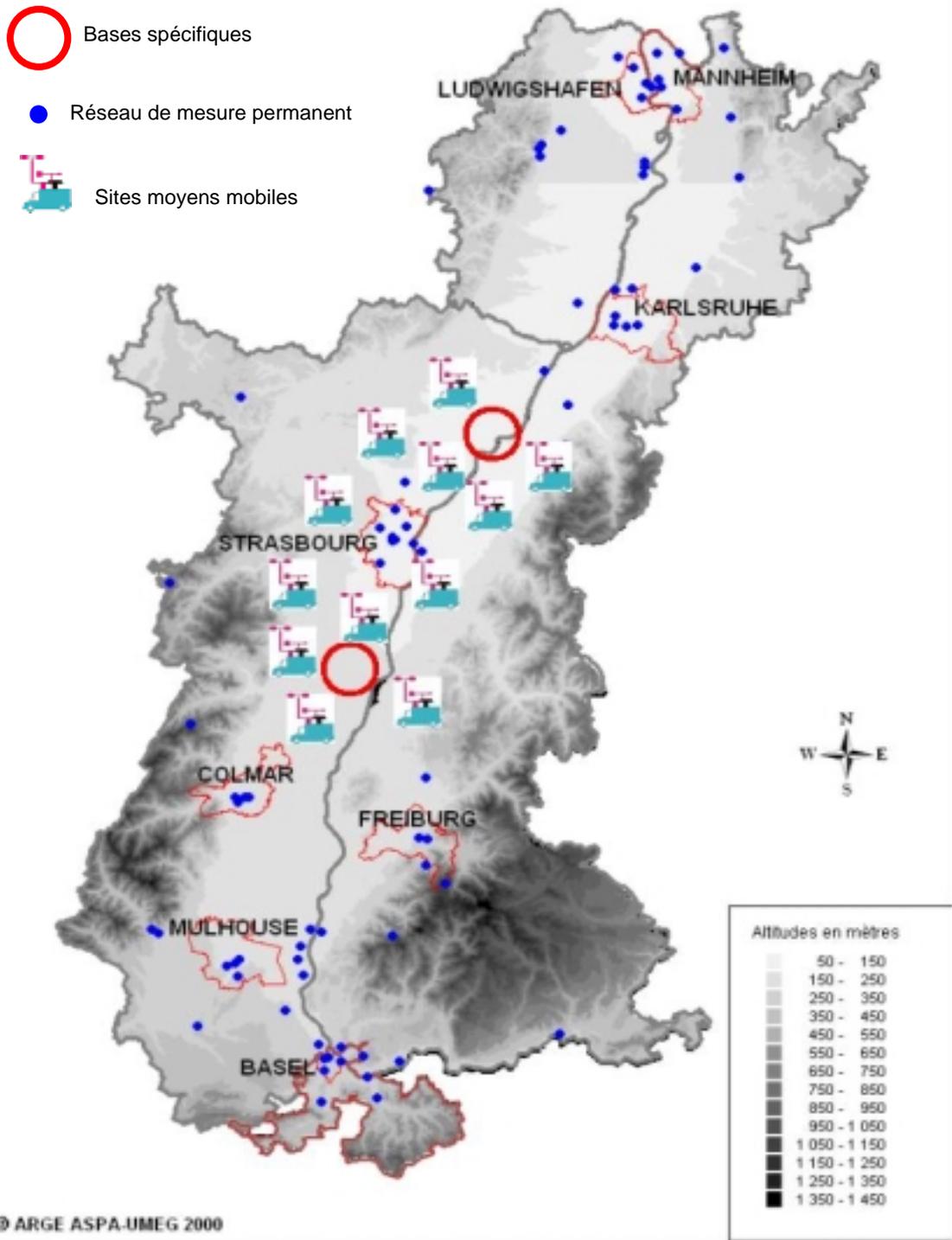
## **ANNEXE B : LES MOYENS MIS EN ŒUVRE LORS DE LA CAMPAGNE INTERREG IIIμ**

Les moyens mis en œuvre pour cette campagne regroupent un ensemble d'instruments de mesures (dans des gammes correspondant aux valeurs observables) dont le choix et le dimensionnement ont bénéficié du projet Escompte (précampagne et campagne en Provence Côte d'Azur). Ils sont donc présentés en mesures au sol, mesures de profils et mesures aéroportées. Les paramètres sont mesurés soit à l'aide d'une instrumentation "validée", soit à l'aide d'une instrumentation "prototype".

### **Les moyens de mesures au sol**

Les moyens au sol utilisés pour renseigner l'ensemble des paramètres météorologiques et chimiques, regroupent (figure 1) :

- le réseau permanent de mesure des polluants atmosphériques français, allemand et suisse du Rhin supérieur,
- des camions laboratoires ou remorques, répartis sur les deux bases, en provenance des différentes AASQA nationales (Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air),
- l'UMEG (homologue allemand) équipé d'appareils de mesure en continu du SO<sub>2</sub>, du CO, de O<sub>3</sub>, ainsi que du NO et NO<sub>2</sub>, et des particules en suspension (PM<sub>10</sub>).
- équipements de mesure les paramètres météorologiques tels que la température, l'humidité relative, ainsi que la vitesse et la direction du vent.
- 2 LIDAR (INERIS, EPFL),
- 1 photomètre, 1 scintillomètre (LOA),
- 1 labo mobile d'analyse des HAP, des COV et des radicaux RO<sub>2</sub>,
- des équipements spécifiques de caractérisation des aérosols (LAMP, ISPRA),
- 1 DOAS (EPFL).



**Base A (au nord de Strasbourg)**

- **Un poste chimique** mobile de l'Université de Wuppertal (Allemagne) pour la mesure des paramètres HCNM C<sub>2</sub>-C<sub>9</sub>, HCHO, NO<sub>x</sub>, CO ;
- **Un poste chimique** du Max Planck Institut (MPI) de Mainz (Allemagne) pour des mesures des H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> et des peroxydes organiques et une partie de la fraction organique des aérosols ;
- **Un poste chimique** mobile du Joint Research Center (JRC-IES) de Ispra (Italie) pour la mesure des paramètres aérosols inorganiques, des gaz solubles dans l'eau, des aérosols carbonés [Carbone Organique, Carbone Élémentaire] une distribution de tailles d'aérosols, ...) ainsi que les constantes de photolyse J<sub>O<sub>1</sub></sub> et J<sub>NO<sub>2</sub></sub> ;
- **Un poste chimique** de mesure des Composés Organiques Volatils précurseurs d'ozone avec analyse par le Laboratoire Inter-Régional de Chimie du Grand Est Strasbourg (France).

**Base B (au sud de Strasbourg)**

- **Un poste physico-chimique** du Brandenburgische Technische Universität (BTU) de Berlin (Allemagne) pour des mesures des gaz (HONO, HNO<sub>3</sub>) et de particules ;
- **Un poste chimique et météorologique** de Laboratoire de Combustion et Systèmes Réactifs (LSCR) d'Orléans (France) de mesure des paramètres chimiques comme les RO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, O<sub>3</sub> et l'humidité relative et la température ;
- **Un poste chimique** du Laboratoire Chimie et Environnement (LCE - Equipe de Physico Chimie de l'Atmosphère) de Marseille (France) mesurant les paramètres chimiques comme des aldéhydes et des peroxydes organiques (spéciation H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> + autres peroxydes organiques) ;
- **Un spectroradiomètre** du Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA) de Villeneuve d'Ascq (France) pour la mesure du spectre de 280 nm à 450 nm ;
- **Un poste de mesure de paramètres physico-chimiques** du Laboratoire de Météorologie Physique (LaMP) de Clermont-Ferrand (France) concernant les particules d'aérosols (granulométrie en masse et en taille, Carbone Organique, Carbone Élémentaire, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, HCHO, SO<sub>2</sub>, CO) et une station de mesure météorologique ;
- **Un poste de mesure de paramètres physico-chimiques** du Laboratoire de Gestion des Risques et Environnement (GRE) de Mulhouse (France) concernant les particules d'aérosols (granulométrie en masse et en taille).

**Base C (au centre-ville de Strasbourg)**

Un bilan radiatif complet (visible et infrarouge) et un bilan d'énergie du Laboratoire des Sciences de l'Image, de l'Informatique et de la Télédétection (LSIIT) de l'Université Louis Pasteur de Strasbourg (France).

**Les moyens de mesures de profils**

**Base A (au nord)**

- **Un radar profileur de vent** de DEGREANE Météorologie de Toulon (France) pour la mesure des paramètres météorologiques (intensité et direction du vent) ;

- **Un radiomètre** de l'Office National d'Etudes et de Recherches Aérospatiales (ONERA-DMR) de Toulouse (France) pour la mesure des profils d'humidité et de température ;
- **Un LIDAR** de l'Ecole polytechnique Fédérale de Lausanne (EPFL) (Suisse) pour la mesure de O<sub>3</sub>, une estimation de la hauteur d'extinction des aérosols et de la couche limite de mélange ;
- **Un DOAS** (Differential Optical Absorption Spectroscopy) de l'EPFL pour la mesure des paramètres chimiques (phénol, SO<sub>2</sub>, HCHO, benzène, NO<sub>2</sub>) ;
- **Un ballon captif** de l'EPFL pour la mesure des paramètres météorologiques (pression, température, humidité relative) et chimique (O<sub>3</sub>).

**Base B (au sud)**

Un lidar Elight (LIght Detection And Ranging) de l'Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques (INERIS) de Verneuil-en-Halatte (France) pour la mesure de O<sub>3</sub>, une estimation de la hauteur d'extinction des aérosols et de la couche limite de mélange.

**Base C (au centre-ville de Strasbourg)**

Un mini-SODAR (Sound Detection And Ranging) du Complexe de Recherche Interprofessionnel en Aérothermochimie (CORIA) de Rouen.

**Les moyens aéroportés**

Les moyens aéroportés sont employés pour identifier la structure et les profils verticaux, tant des paramètres météorologiques (température, pression, vitesse et direction du vent, hauteur de la couche d'inversion) que chimiques (distribution des polluants d'intérêt particulier, précurseurs de l'ozone, composition de l'air entrant du domaine d'étude, particules, etc.).

## ANNEXE C : INTERACTION ELASTIQUE DE LA LUMIERE AVEC LA MATIERE : LA DIFFUSION RAYLEIGH

La diffusion Rayleigh concerne les particules dont le paramètre de taille  $\Gamma = \frac{2\pi r}{\lambda} = kr$  est très petit devant 1 (le rayon est très inférieur à la longueur d'onde), ce qui correspond aux petits aérosols (environ 10 nm) de l'atmosphère.

Lorsque la particule est soumise à une onde plane monochromatique de longueur d'onde  $\lambda$ , le champ électrique de cette onde induit dans la particule un moment dipolaire oscillant, créant alors un rayonnement électromagnétique.

La molécule est excitée vers un état virtuel par un photon puis revient à son état initial en émettant un photon équivalent dans une direction privilégiée de l'espace.

La distribution angulaire de cette réémission peut être calculée en assimilant la molécule à un dipôle électrique. On peut alors connaître les expressions des efficacités d'absorption, de diffusion et de rétrodiffusion dans cette limite. On donne les résultats suivants, pour une onde incidente polarisée perpendiculairement, afin de pouvoir ensuite les intégrer dans l'analyse de signaux Lidar :

- L'efficacité d'absorption Rayleigh, :

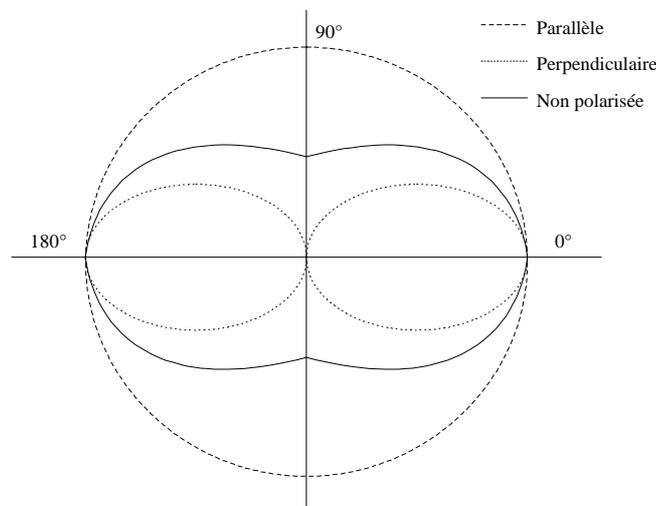
$$Q_{abs}^{Ray} = \frac{\sigma_{abs}^{Ray}}{\pi \cdot r_0^2} = \frac{8 \cdot \pi \cdot r_0}{\lambda} \cdot \text{Im} \left( \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right)$$

- L'efficacité de diffusion Rayleigh :

$$Q_{diff}^{Ray} = \frac{\sigma_{diff}^{Ray}}{\pi \cdot r_0^2} = \frac{128 \cdot \pi^4 \cdot r^4}{3 \cdot \lambda^4} \cdot \left| \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right|^2$$

- L'efficacité de rétrodiffusion Rayleigh :

$$Q_{\pi}^{Ray} = \frac{\sigma_{\pi}^{Ray}}{\pi \cdot r_0^2} = \frac{64 \cdot \pi^4 \cdot r^4}{\lambda^4} \cdot \left| \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right|^2$$



*Figure 18 : Distribution angulaire de la lumière diffusée par une petite particule dans la limite de diffusion Rayleigh*

On notera que la caractéristique principale de la diffusion Rayleigh est sa dépendance en  $1/\lambda^4$ . Elle va favoriser de façon significative, la diffusion des courtes longueurs d'onde, expliquant ainsi par exemple la couleur bleu du ciel ou le rouge des couchers de soleil. En effet la lumière bleue sera diffusée par les molécules de l'atmosphère environ 16 fois plus que la lumière rouge : le bleu du ciel étant issu de la diffusion, le rouge des couchers de soleil traduisant le fait que les longueurs d'onde rouges sont nettement moins diffusées que les longueurs d'onde bleues, en raison de l'épaisseur importante de la couche atmosphérique traversée.

Néanmoins, cette théorie est applicable dans le cas de molécule ou de particules très petites devant la longueur d'onde incidente. Dans la pratique, les processus de diffusion et d'absorption des particules atmosphériques supérieures à 10 nm de rayon ne peuvent être modélisés en utilisant les principes Rayleigh décrits ci-dessus. On peut alors utiliser la théorie de Mie, décrite ci-après, en supposant que les particules sont sphériques.

## ANNEXE D : INTERACTION ELASTIQUE DE LA LUMIERE AVEC LA MATIERE : LA DIFFUSION MIE

La diffusion Mie explique la diffusion d'une onde électromagnétique par une sphère homogène de rayon comparable à la longueur d'onde incidente. Cette théorie permet de décrire toutes les particules sphériques en suspension dans l'atmosphère.

Le comportement de la lumière diffusée en fonction de la longueur d'onde et du rayon  $r$  de la particule est caractérisé par le paramètre de taille  $\Gamma = kr$ . Pour les très petites particules ( $kr \ll 1$ ), l'amplitude diffusée est relativement symétrique pour les angles de diffusion  $\alpha$  et  $180^\circ + \alpha$ . Au fur et à mesure que la taille augmente, la diffusion vers l'avant augmente et la rétrodiffusion diminue.

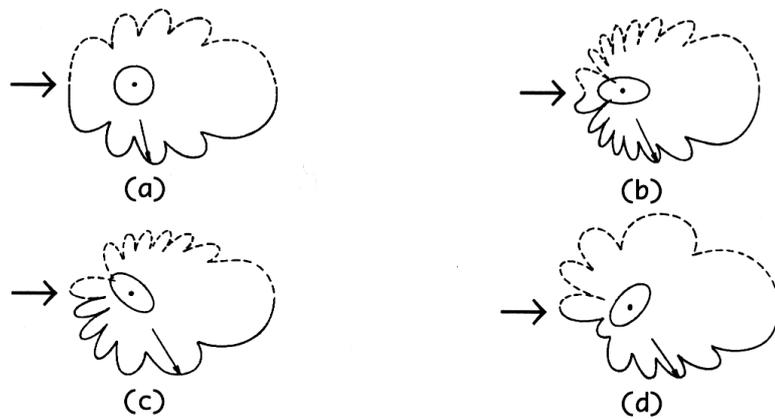
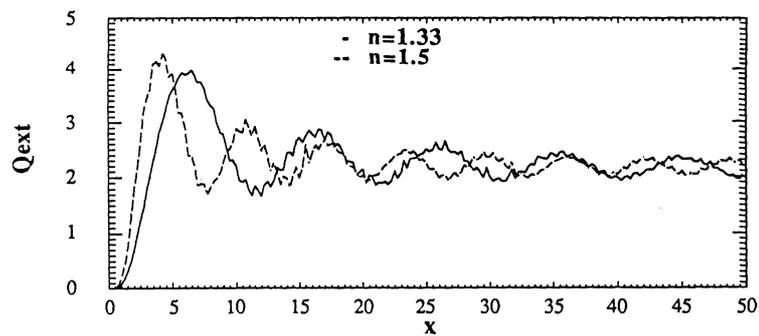


Diagramme de diffusion dans le cas de sphéroïdes : (a) est le cas sphérique, (b) et (c) des sphéroïdes allongés et (d) une sphéroïde aplatie.



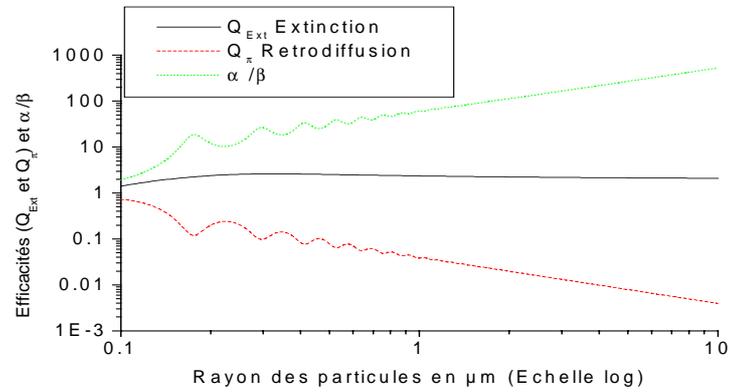
Évolution de l'extinction en fonction du paramètre de taille

où  $X$  est le paramètre de taille : 
$$X = \frac{2 \cdot \pi \cdot R_{Particule}}{\lambda}$$

La dépendance de la diffusion Mie vis-à-vis de la longueur d'onde est beaucoup plus douce que celle de la diffusion Rayleigh car elle est lissée par la présence de plusieurs tailles

simultanément dans l'air. Le coefficient de rétrodiffusion  $\beta_{Mie}$  se détermine avec les équations de Maxwell, et on a :

$$\beta_{Mie} = \left( \frac{\partial \sigma_{\pi}}{\partial \theta} \right)_{\theta=\pi}$$



### Évolution de l'extinction et de la rétro-diffusion en fonction de la taille

Dans l'atmosphère, on a un ensemble de particules ayant une distribution de taille  $\rho(r)$ , et  $\rho(r)dr$  est le nombre de particules par unité de volume ayant un rayon compris entre  $r$  et  $r+dr$ . Les coefficients  $\alpha_{Mie}$  et  $\beta_{Mie}$  sont donc la résultante des coefficients individuels de chaque aérosol :

$$\alpha_{Mie}(\lambda) = \int_0^{\infty} \sigma_{ext}(r, \lambda) \rho(r) dr$$

$$\beta_{Mie}(\lambda) = \int_0^{\infty} \beta_{\pi}(r, \lambda) \rho(r) dr$$

## ANNEXE E : LA METHODE D'INVERSION DE KLETT

Cette méthode, proposée par Klett en 1985, suppose que l'on connaisse la rétrodiffusion due aux aérosols à une certaine altitude  $z_0$ . Pour cette valeur, on calcule le coefficient d'extinction  $\alpha_{Mie}$  à partir du signal LIDAR correspondant, que l'on analyse ensuite par étapes successives en partant de  $z_0$  et en diminuant  $z$ .

Pour cela, on suppose qu'il existe une relation entre le coefficient d'extinction  $\alpha$  et celui de rétrodiffusion  $\beta$ , telle que :

$$\alpha_{Mie} = g(z) * \beta_{Mie}$$

où  $g(z)$  est une fonction qui dépend de la taille des aérosols à l'altitude  $z$  et de la longueur d'onde (on doit donc calculer  $g(z)$  pour chaque longueur d'onde, mais cela nécessite de connaître une relation liant  $g$  et  $\lambda$ ).

L'expérience a montré que  $g(z)$  doit être égal environ dans la troposphère pour que la méthode soit valable. Dans la stratosphère,  $g(z)$  vaut 41 [15].

On introduit ensuite le coefficient de rétrodiffusion  $R(z)$  défini par :

$$R(z) = \frac{\beta_{Total}}{\beta_{Ray}} = \frac{\beta_{Mie} + \beta_{Ray}}{\beta_{Ray}} = 1 + \frac{\beta_{Mie}}{\beta_{Ray}}$$

on obtient à partir de l'équation LIDAR :

$$R(z) = \frac{F(z)}{\beta_{Ray}(z)}$$

$$\frac{1}{R(z_0)} + 2 \int_z^{z_0} (\beta_{Ray}(z')g(z') - \alpha_{Ray}(z')) dz'$$

avec :

$$F(z) = \frac{z^2 I(z)}{z_0^2 I(z_0)} \beta_{Ray}(z_0) \exp\left(\int_z^{z_0} F(z')g(z') dz'\right)$$

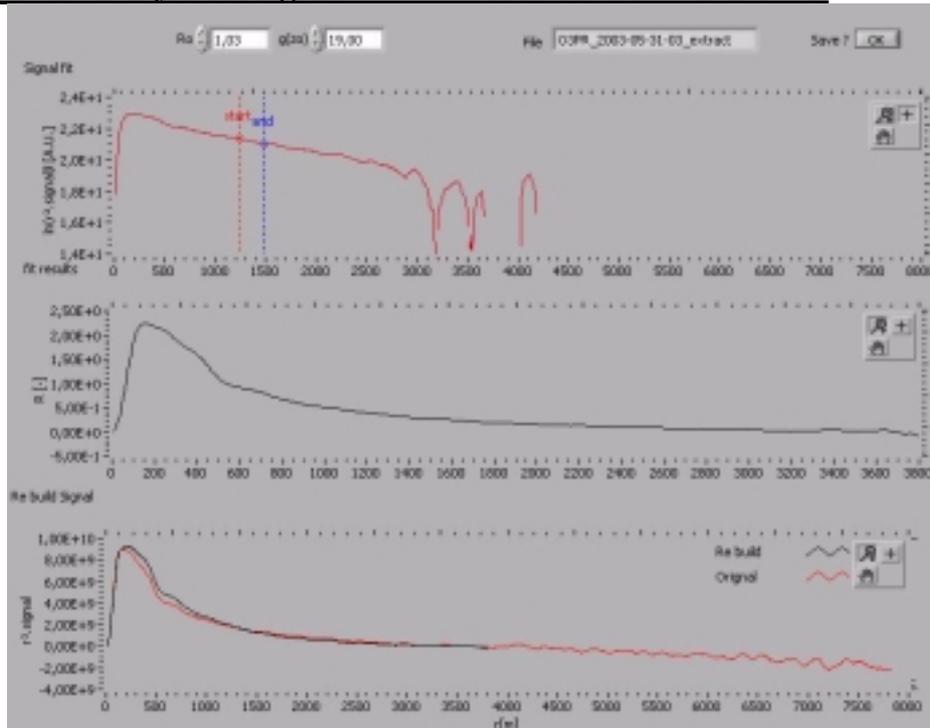
$F(z)$  est le signal corrigé en distance normée  $z^2I$ .

Dans cette équation,  $\alpha_{Ray}$  et  $\beta_{Ray}$  peuvent être calculés à partir de modèles mathématiques ou calculés à partir des données d'un ballon sonde, ce qui nous donne accès directement à la valeur de  $\beta_{Mie}$ .

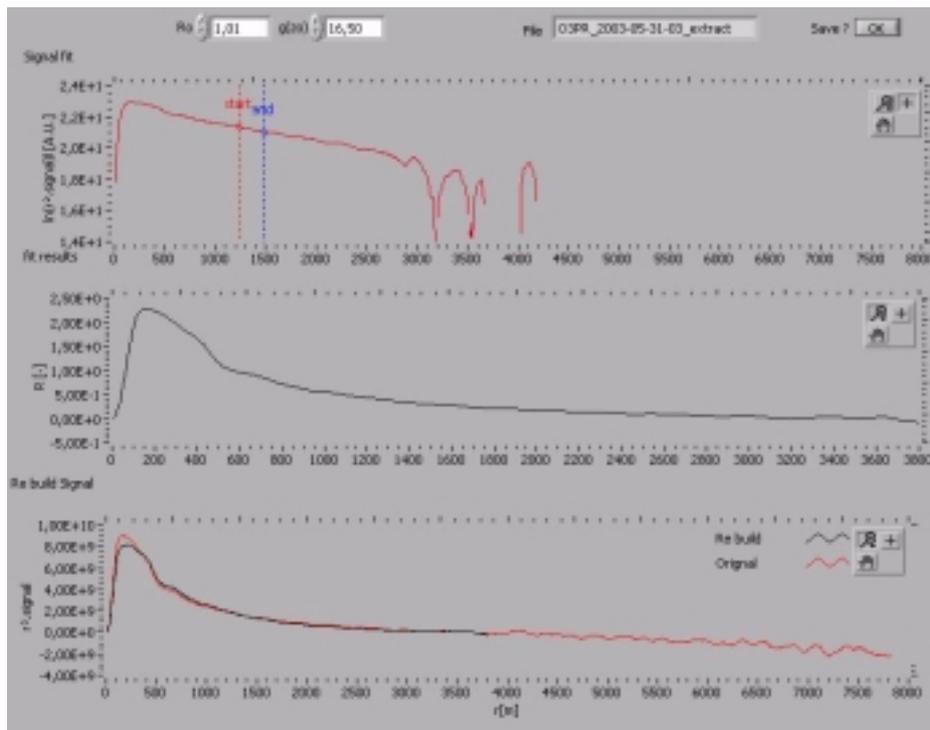
De plus, on voit que  $R(z)$  dépend de la valeur de  $R(z_0)$ , donc toute cette méthode d'inversion repose sur la valeur de  $z_0$  où l'on considère le signal rétrodiffusé connu.

L'expérience a montré que  $R(z_0)$  devait être égal à environ 1.1 en troposphère libre pour que les résultats soient cohérents.

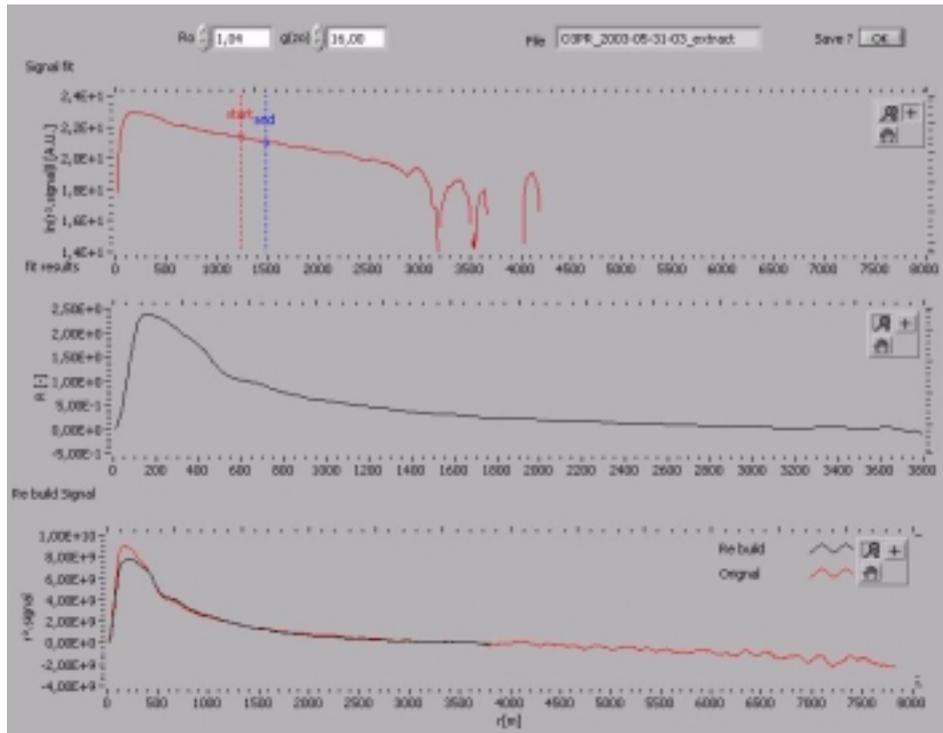
**Application à l'analyse des signaux LIDAR obtenus le 31 mai à 0h40.**



*Courbe reconstituée pour les altitudes inférieures à 200 mètres ( $R_0 = 1.03$  et  $g(z_0) = 19$ )*



*Courbe reconstituée pour les altitudes comprises entre 300 et 400 m ( $R_0 = 1.01$  et  $g(z_0) = 16.5$ )*



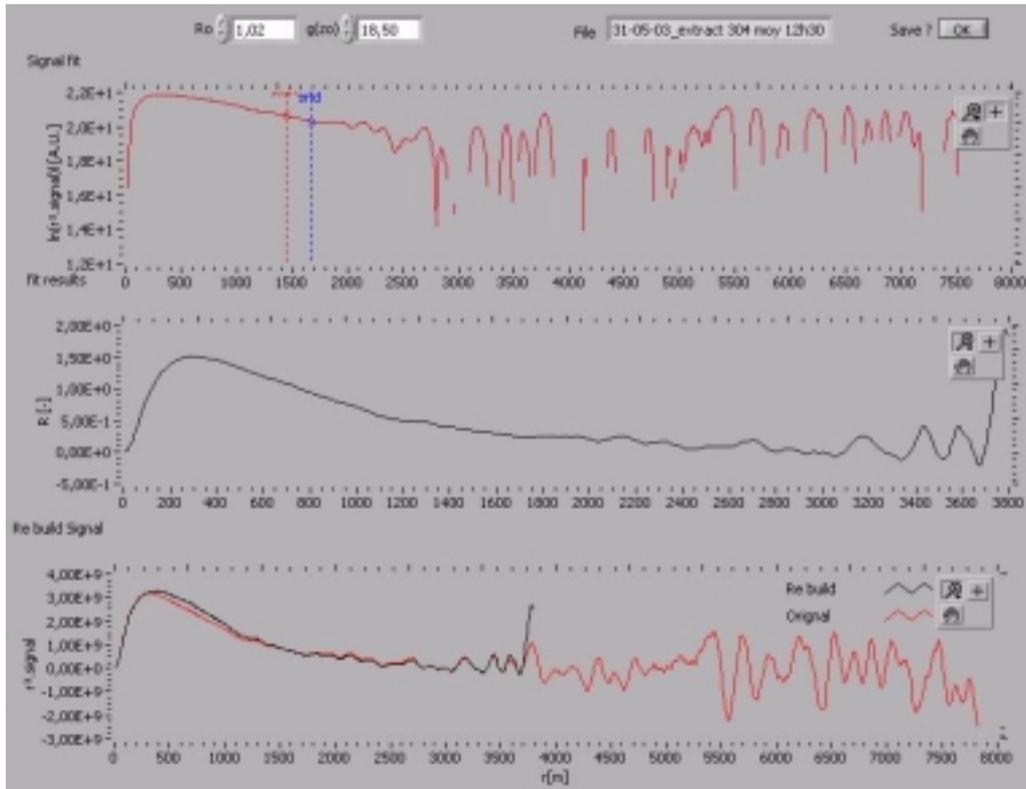
Courbe reconstituée pour les altitudes comprises entre 400 et 500 mètres (  $R_0 = 1.04$  et  $g(z_0) = 16$  )

On constate que lorsque l'altitude augmente, le coefficient  $g(z_0)$  diminue. Or des valeurs élevées de ce coefficient correspondent à des particules de gros diamètre, ce qui signifie que le diamètre moyen des aérosols décroît avec l'altitude.

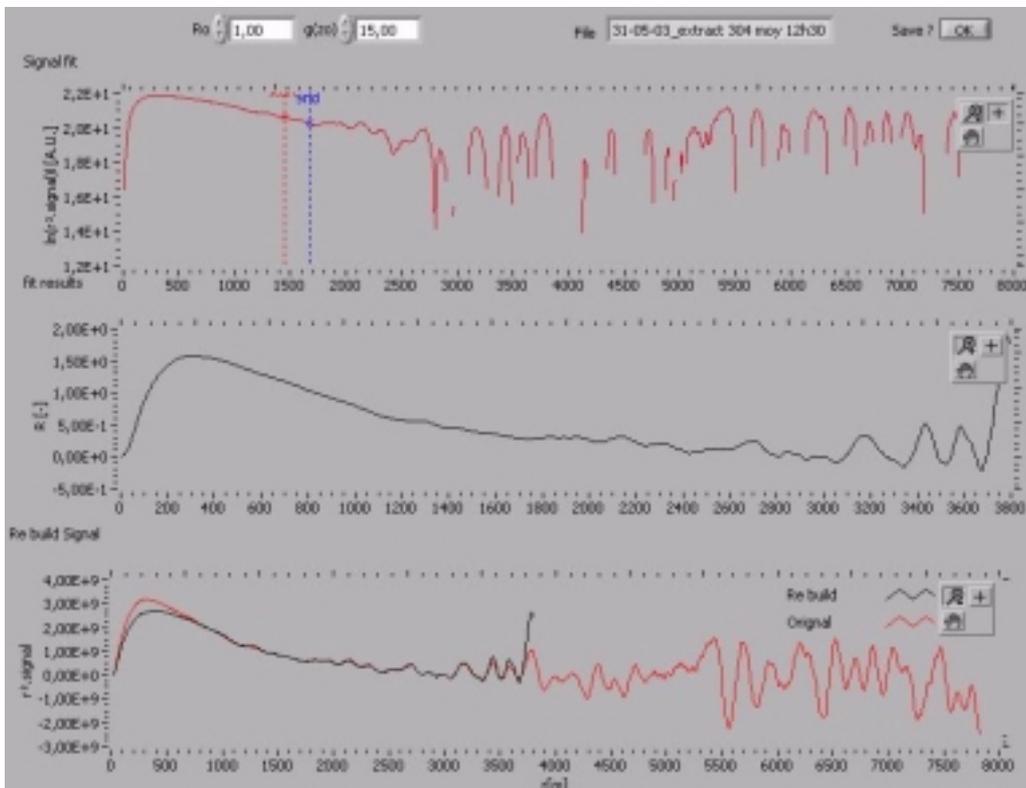
En effet, la nuit, en l'absence de convection, les différentes particules se concentrent en couches : les grosses particules, plus lourdes, se concentrent vers le sol (sédimentation), alors que les plus petites se trouvent à des altitudes plus élevées. Ce phénomène ne devrait plus avoir lieu dans la journée, car les mouvements convectifs homogénéisent les masses d'air et on devrait retrouver des valeurs de  $g(z_0)$  quasi identiques sous la couche convective.

D'après les figures précédentes, on constate que la valeur de  $R(z)$  change brutalement vers 500 mètres, correspondant au passage de la couche limite. En effet, cette valeur est 1.5 fois plus élevée à 450m qu'à 500m, ce qui signifie que la proportion d'aérosols est plus élevée de 50 % au-dessous de la couche limite.

**Application à l'analyse des signaux LIDAR obtenus le 31 mai à 12h00.**



*Courbe reconstituée pour les altitudes inférieures à 200 mètres ( $R_0 = 1.02$  et  $g(z_0) = 18.5$ )*



*Courbe reconstituée pour les altitudes comprises entre 700 et 3000 m ( $R_0 = 1.00$  et  $g(z_0) = 15$ )*

## ANNEXE F : EXEMPLES DES RESULTATS LIDAR AU FORMAT TEXTE ET BMP

### Fichier quotidien de d'extinction atmosphérique en Heure Locale :

Wavelengths: 284-304  
 StartTime: 15.06.2003 00:00:00  
 EndTime: 15.06.2003 23:50:00  
 StepTime: 10 min  
 NrOfRows: 144  
 StartHeight: 0 m  
 MaxHeight: 3495 m  
 DeltaHeight: 15 m  
 GroundPressure: 1013 hPa  
 GroundTemp: 293 K  
 Unit: km-1  
 InvalString: NaN  
 Delimiter: Tab  
 ColumnsToSkip: 2  
 RowsToSkip: 1

DD.MM.YYYY hh:mm:ss	300m	315m	330m	345m	360m	375m
15.06.2003 00:00:00	-0,006	-0,005	-0,004	-0,003	-0,002	-0,002
15.06.2003 00:10:00	-0,021	-0,016	-0,013	-0,010	-0,007	-0,005
15.06.2003 00:20:00	-0,025	-0,019	-0,015	-0,011	-0,008	-0,005
15.06.2003 00:30:00	-0,020	-0,014	-0,009	-0,004	-0,001	0,001
15.06.2003 00:40:00	-0,010	-0,005	-0,002	0,001	0,004	0,007
15.06.2003 00:50:00	-0,013	-0,010	-0,008	-0,007	-0,005	-0,004
15.06.2003 01:00:00	-0,018	-0,012	-0,008	-0,004	-0,001	0,001
15.06.2003 01:10:00	-0,023	-0,017	-0,013	-0,010	-0,008	-0,006
15.06.2003 01:20:00	-0,009	-0,003	0,002	0,006	0,010	0,012
15.06.2003 01:30:00	-0,002	0,002	0,004	0,007	0,008	0,008
15.06.2003 01:40:00	-0,027	-0,025	-0,023	-0,022	-0,020	-0,018
15.06.2003 01:50:00	-0,031	-0,026	-0,022	-0,017	-0,014	-0,010
15.06.2003 02:00:00	0,020	0,020	0,017	0,015	0,013	0,012
15.06.2003 02:10:00	0,023	0,025	0,024	0,025	0,025	0,024
15.06.2003 02:20:00	0,000	0,003	0,005	0,007	0,009	0,009

### Fichier BMP correspondant

