

Université des Sciences et Technologies de Lille

N° d'ordre : 4170

THESE

pour obtenir le grade de :
Docteur de l'Université de Lille I

Spécialité :
Lasers, Molécules, Rayonnement Atmosphérique

soutenue le 04 Avril 2008 par

Meloë KACENELENOGEN-TILOT

Titre :
Application de la télédétection spatiale à la surveillance de la
pollution en aérosols

JURY

Jean-Claude Roger	Rapporteur
Victoria E. Cachorro Revilla	Rapporteur
Jean-François Léon	Examineur
Isabelle Chiapello	Examineur
Frédéric Meleux	Examineur
Didier Tanré	Directeur de thèse
Anne Lifermann	Invité

Laboratoire d'Optique Atmosphérique
U.F.R de Physique Fondamentale
Université des Sciences et Technologies de Lille
59655 Villeneuve d'Ascq
France

Remerciements

Je remercie mes deux rapporteurs, Jean-Claude Roger et Victoria E. Cachorro Revilla, pour le temps qu'ils ont consacré à ce manuscrit ainsi qu'Anne Lifermann et Frédéric Meleux pour leurs questions et conseils.

Je suis très reconnaissante envers mes encadrants et directeur de thèse, Jean-François Léon, Isabelle Chiapello et Didier Tanré de m'avoir offert l'opportunité de travailler sur un sujet à la fois passionnant, varié et novateur.

Jean-François, merci pour ton esprit brillant et ton énergie. L'apprentissage à tes côtés a été mouvementé mais, au final, personnellement et professionnellement très enrichissant.

Isabelle, merci pour tes conseils scientifiques et ton soutien. Sans toi, je n'aurais tout simplement pas pu finir ce travail.

Didier, votre aide a été précieuse et cela, surtout dans les derniers mois. Sans vous, je serai probablement toujours dans mes programmes à l'heure actuelle. Je tire une grande fierté de vous avoir eu en tant que directeur de thèse.

Je remercie, en particulier, Jean-Luc Deuzé, Oleg Doubovik et Philippe Goloub pour le temps qu'ils ont consacré à répondre à mes nombreuses questions scientifiques tout au long de ce travail de thèse.

Je n'aurais rien pu faire sans l'aide précieuse de Fabrice Ducos, et Christine Deroo. Christine, Fabrice, encore une fois, merci pour tout !

Il y a aussi le soutien psychologique de nombreuses personnes du Laboratoire comme ma charmante camarade de bureau Céline Cornet mais aussi Jean-Yves Balois, Frédérique Auriol, Nicolas Ferlay, Isabelle Jankowiak, Laurent Labonnote, Fanny Minvielle, Romain DeFilippi ou Nicolas Pascal et Nicolas Henriot du pôle Icare.

Je n'oublie pas mes amis thésards Benoît Gérard et Nicolas Huneus ainsi que mes alliés Olivier Pujol, et Nathalie Sohne.

Une ligne toute spéciale pour deux adorables personnages aquatiques : le magnifique dugong-manati et le téméraire Vito Corléone.

Finalement, merci à mon incroyable petite soeur, ma superbe maman, le très patient Alain et mon cœur appartient encore et toujours à mon papa.

Résumé

Les mesures satellitaires d'épaisseur optique en aérosols (AOT) conviennent à la surveillance globale journalière du contenu atmosphérique en particules. L'objectif de notre étude a été d'évaluer la capacité satellitaire à estimer la pollution en aérosols en termes de catégories de qualité de l'air. Ces dernières sont définies grâce aux mesures de concentration massique des particules de diamètre aérodynamique inférieur à $2.5 \mu\text{m}$ au sol ($\text{PM}_{2.5}$). Nous avons d'abord utilisé les mesures photométriques du réseau AERONET/PHOTONS pour caractériser les propriétés optiques et microphysiques des aérosols en Europe de l'Ouest et leur influence possible sur la relation entre $\text{PM}_{2.5}$ et AOT. La comparaison des mesures d'AOT restituées par différents radiomètres satellitaires (principalement POLDER) aux mesures de $\text{PM}_{2.5}$ au-dessus de la France a permis, non seulement de définir une relation statistique directe entre ces deux types de mesures mais aussi d'élaborer un seuil d'AOT satellitaire (égal à 0.17) au-dessus duquel la pollution peut être qualifiée de « Modérée » d'avril à octobre 2003, 2005 et 2006. Nous avons enfin estimé la masse en particules au sol à partir de la mesure d'AOT satellitaire et l'information de distribution verticale des particules, d'une part, simulée par le modèle de chimie-transport CHIMERE et d'autre part, mesurée par le LIDAR spatial CALIOP. Alors que le modèle CHIMERE n'améliore pas significativement la corrélation entre mesures d'AOT satellitaires et de $\text{PM}_{2.5}$, l'utilisation des profils restitués par CALIOP montre l'importance de prendre en compte la distribution verticale des aérosols dans l'élaboration d'un produit satellitaire de qualité de l'air.

Abstract

Satellite measurements of aerosol optical thickness (AOT) are well suited for global daily monitoring of atmospheric particle load. The goal of this study is to evaluate the satellite's capability to monitor aerosol pollution in terms of air quality categories. Those last ones are defined using the particulate mass concentration concerning particles smaller than about $2.5 \mu\text{m}$ in aerodynamic diameter ($\text{PM}_{2.5}$). We have first used the photometric measurements provided by the AERONET/PHOTONS network to characterise the optical and microphysical properties of aerosols over Western Europe and their possible impact on the relationship between $\text{PM}_{2.5}$ and AOT measurements. The comparison between AOT measurements derived from different satellite radiometers (mostly POLDER) and $\text{PM}_{2.5}$ measurements over France has allowed us the definition of a statistical relationship between those two measurements. Thanks to this relationship, we have elaborated a threshold of satellite AOT measurements (0.17) over which pollution can be qualified as « Moderate » from April to October 2003, 2005 and 2006. We have finally assessed particulate mass at the ground using satellite AOT measurements and vertical distribution of aerosols simulated by the CHIMERE chemistry-transport model on the one hand and on the other, measured by CALIOP spatial LIDAR. While the CHIMERE model has not improved significantly the correlation between satellite AOT and $\text{PM}_{2.5}$ measurements, the use of profiles derived from CALIOP has shown the importance of taking into consideration the vertical distribution of aerosols in the elaboration of a satellite air quality product.

1. Définition et physique des Aérosols	9
1.1. Introduction	9
1.2. Impacts des aérosols	9
1.2.1. Impacts radiatifs	9
1.2.2. Impacts sanitaires et environnementaux	12
1.3. Propriétés microphysiques des aérosols	13
1.3.1. Distribution en taille	13
1.3.2. Composition chimique	16
1.3.3. Indices de réfraction	18
1.4. Propriétés optiques des aérosols	19
1.4.1. Épaisseur Optique en aérosol (AOT)	20
1.4.2. Coefficient d'Angström	21
1.4.3. Albédo de diffusion simple	22
1.4.4. Fonction de Phase	22
1.4.5. Transfert radiatif	24
1.5. Distribution verticale des aérosols	26
2. Outils et Méthode	29
2.1. Relation entre concentration massique au sol et AOT	29
2.2. Mesures <i>in situ</i> de qualité de l'air	32
2.3. Photomètre solaire	34
2.3.1. Mesures directes	36
2.3.2. Mesures inverses	36
2.4. Satellites	38
2.4.1. Train de satellites A-Train	38
2.4.2. Description des radiomètres MODIS et POLDER (2-3)	40
2.4.3. Algorithmes d'inversion aérosol POLDER (2-3) et MODIS au-dessus des continents	42
2.4.3.1. Algorithme d'inversion POLDER (2-3)	43
2.4.3.2. Algorithme d'inversion MODIS	45
2.4.4. LIDAR CALIOP	48
2.5. Conclusions et Stratégie	53
3. Analyse des mesures au sol	56
3.1. Variabilité temporelle de la pollution particulaire	56
3.1.1. Évolution annuelle des PM en France	56
3.1.2. Évolution temporelle des PM et AOT à Lille	58
3.1.2.1. Cycle saisonnier	58
3.1.2.2. Évolution journalière en 2003	60
3.2. Relation PM/ AOT AERONET	62
3.3. Étude des propriétés optiques et microphysiques de l'aérosol	67
3.3.1. Climatologie en Europe de l'Ouest (1994-2007)	67
3.3.2. Étude saisonnière en 2003 à Lille	71
3.3.3. Caractéristiques des pics d'aérosols en Europe de l'Ouest	73
3.4. Conclusions	75
4. Application des observations satellitaires au suivi de la pollution particulaire	77
4.1. Co-localisation des mesures	77
4.1.1. Représentativité d'une mesure à l'heure du passage du satellite	77
4.1.2. Variation diurne de l'AOT	81
4.1.3. Variabilité temporelle et spatiale des PM	87
4.2. Validation régionale des produits satellitaires	94
4.3. Comparaison entre AOT satellitaire et PM sol	101
4.3.1. Analyse sur la période POLDER-2	101
4.3.2. Étude sur la même période que POLDER-2 avec les données MODIS-TERRA	107
4.3.3. Analyse sur la période POLDER-3	111
4.3.3.1. Période avril-octobre 2005-2006	111
4.3.3.2. Période hivernale 2005-2006	115
4.4. Conclusions	117

5. Prise en compte de la distribution verticale des aérosols	120
5.1. Utilisation d'une distribution verticale simulée par un modèle de chimie-transport	120
5.1.1. Description et évaluation préliminaire du modèle CHIMERE	121
5.1.2. Sélection des cas d'étude à partir des comparaisons CHIMERE-POLDER	125
5.1.3. Estimation de la masse au sol à partir de la combinaison entre le modèle et le satellite	130
5.1.3.1. Calcul de l'épaisseur optique à partir du modèle	132
5.1.3.2. Comparaison au photomètre	138
5.1.3.3. Analyse des PM dérivées du satellite	141
5.2. Utilisation d'une distribution verticale mesurée par CALIOP : cas d'études	145
5.2.1. Présentation des cas d'études	145
5.2.2. Résultats et discussion	153
5.3. Conclusions	160
Conclusion Générale	162
Annexe 1	164
Annexe 2	165
Références	166
Acronymes	179

Introduction Générale

L'intérêt porté à l'étude du changement de la composition chimique de l'atmosphère a considérablement grandi au cours des dernières années. Les aérosols, particules solides ou liquides en suspension dans l'atmosphère à l'exception des gouttelettes nuageuses, ont, en particulier, un rôle dans le changement climatique et dans notre perception de la qualité de l'air ainsi que sur la santé humaine. Ces particules influencent le climat de manière significative en modifiant l'équilibre radiatif de la planète. Elles agissent, en effet, de deux manières distinctes, en absorbant et en diffusant le rayonnement solaire, dont une partie de l'énergie est rétrodiffusée vers l'espace ainsi que distribuée dans la colonne atmosphérique (effet direct), mais aussi en modifiant les propriétés optiques des nuages suite à un changement de leurs propriétés microphysiques (effet indirect) [Forster *et al.* 2007]. Le rôle des particules en suspension a été démontré dans certaines atteintes fonctionnelles respiratoires, le déclenchement de crises d'asthme et la hausse du nombre de décès pour cause cardio-vasculaire ou respiratoire. D'après un récent rapport de l'Agence Française de Sécurité Sanitaire et Environnementale, la pollution liée aux particules fines en ville aurait causé entre 6500 et 9500 décès en 2002 [AFSSE, 2005].

Les aérosols sont plus difficiles à caractériser que les gaz atmosphériques à cause de leur composition chimique complexe et de leur très large gamme de taille (de quelques nanomètres à quelques micromètres). Ces caractéristiques sont liées à leurs origines très diverses. En effet, ces particules ont deux modes de formation. Elles peuvent provenir de sources primaires, c'est-à-dire émises directement dans l'atmosphère sous forme particulaire (cendres volcaniques, embruns marins, poussières désertiques, poussières industrielles) ou de sources secondaires par transformation de la phase gazeuse en phase particulaire (sulfates, composés organiques, etc...). La concentration massique en particules de diamètre aérodynamique inférieur à $x \mu\text{m}$ (PM_x en $\mu\text{g}/\text{m}^3$) est utilisée comme mesure pour établir des indices de qualité de l'air. Elle est fournie, en France, par le réseau de stations de mesures de la BDQA (Banque de Données De la Qualité de l'Air). Nous utilisons, dans ce travail, les mesures de $\text{PM}_{2.5}$, standards de mesure de qualité de l'air d'après l'agence américaine de protection de l'environnement. Cette dernière définit plusieurs catégories de qualité de l'air (CQA) à partir de seuils sur les mesures de $\text{PM}_{2.5}$.

Cependant, la plupart des stations de surveillance de la qualité de l'air se situent proches de zones urbaines et laissent de larges régions sans observations opérationnelles. Les mesures satellitaires conviennent, quant à elles, à la surveillance globale journalière du contenu atmosphérique en aérosols. Jusqu'à présent, quelques études ont évalué la capacité du radiomètre satellitaire MODIS à estimer la pollution en aérosols au-dessus des Etats-Unis (pour n'en citer que quelques-unes, l'étude de Chu *et al.* [2003], Engel-Cox, [2004], Wang et Christopher [2003], Li *et al.* [2005]). Ajoutons l'étude de Al-Saadi *et al.* [2005] où il est montré l'utilité d'une synergie entre les mesures du radiomètre satellitaire MODIS et la prévision de la qualité de l'air en termes de $\text{PM}_{2.5}$ aux Etats-Unis à travers le projet IDEA (« Infusing satellite Data into Environmental Applications »). Ce projet fournit 5 produits de prévision journalière à partir de la fusion des mesures de $\text{PM}_{2.5}$ au sol, de vitesse et direction du vent de surface, de la localité des feux de végétation par le radiomètre MODIS, et des rétrotrajectoires de masse d'air.

Ce travail de thèse s'intéresse à l'évaluation de la capacité satellitaire à estimer la pollution en aérosols en termes de $\text{PM}_{2.5}$. Il est principalement basé sur le radiomètre

satellitaire POLDER (« Polarization and Directionality of the Earth's Reflectances »), qui mesure l'épaisseur optique des aérosols intégrée sur la colonne atmosphérique. Ce travail porte sur la zone de l'Europe de l'Ouest et, plus particulièrement celle de Lille au cours des années 2003, 2005 et 2006. L'objectif principal est d'élaborer un produit satellitaire de qualité de l'air permettant, à partir de la mesure du satellite, d'estimer le contenu massique en aérosols au sol.

Nous commençons par décrire la physique des aérosols (chapitre 1) et les différents instruments utilisés dans cette thèse (chapitre 2). Ensuite, la première étape (chapitre 3) consiste à analyser la variabilité temporelle des mesures au sol de $PM_{2.5}$ et d'épaisseur optique en France et de caractériser le type d'aérosol au-dessus de notre zone et au cours de notre période d'étude. Puis, nous confrontons ces deux types de mesures et tentons d'en expliquer les désaccords par un changement de propriétés optiques et microphysiques moyennes des particules ou par un changement de distribution verticale des aérosols.

La deuxième étape (chapitre 4) consiste à comparer les mesures d'épaisseur optique satellitaires aux mesures de $PM_{2.5}$ au sol. Le but de cette étude est de permettre, non seulement, d'établir une relation statistique entre ces deux types de mesures, mais aussi de définir un seuil en épaisseur optique satellitaire au-dessus duquel la pollution peut être qualifiée comme appartenant aux différentes CQA selon les standards de l'agence américaine de protection de l'Environnement.

Finalement, la troisième étape (chapitre 5) consiste à utiliser une information de distribution verticale des aérosols pour contraindre la relation entre mesures d'épaisseur optique satellitaires et de $PM_{2.5}$ et à élaborer un produit satellitaire de qualité de l'air. A cette fin, nous utilisons, dans un premier temps, les profils de concentration massique simulés par le modèle de chimie-transport CHIMERE. Puis, dans un deuxième temps, nous utilisons les mesures de profil de rétrodiffusion restituées par le LIDAR CALIOP.

1. Définition et physique des Aérosols

1.1. Introduction

L'atmosphère sèche au niveau de la mer est essentiellement composée d'azote ($\approx 78\%$) et d'oxygène ($\approx 21\%$). Pourtant, les changements liés à l'activité humaine concernent les espèces gazeuses mineures (comme le dioxyde de carbone CO_2 et le méthane CH_4 , principaux gaz à effet de serre).

En effet, il a été observé [Forster et al., 2007], en parallèle d'une hausse de température moyenne de la surface terrestre de 0.76°C (± 0.19), une augmentation significative du dioxyde de carbone (de 280 ppm en 1750 à 379 ppm en 2005) et du méthane (de 715 ppb en 1750 à 1774 ppb en 2005) depuis le début de l'ère industrielle (1750).

Outre les gaz, la figure (1.1) décrit les différentes particules (fines, solides, liquides ou mixtes) présentes dans l'atmosphère. Par définition, les aérosols sont de fines particules liquides ou solides de taille inférieure à $100\ \mu\text{m}$ à l'exception des particules nuageuses (brouillard, glace, neige et pluie).

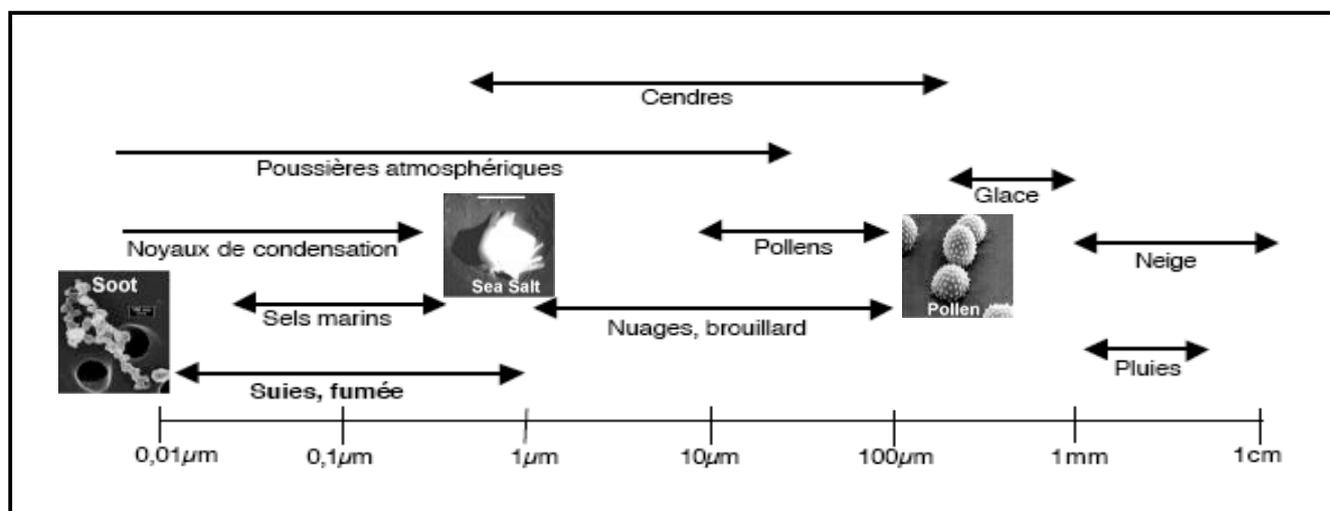


Figure 1.1 : Classification et taille des particules présentes dans l'atmosphère (adapté de [Clark W. C., 1982]).

Les aérosols peuvent provenir de sources primaires, c'est-à-dire être émis directement dans l'atmosphère sous forme particulaire (cendres volcaniques, embruns marins, poussières désertiques, poussières industrielles) ou de sources secondaires ce qui implique un processus de condensation de la phase gazeuse en phase particulaire (sulfates, composés organiques, etc....).

1.2. Impacts des aérosols

1.2.1. Impacts radiatifs

Le bilan radiatif est la différence entre l'énergie entrante (solaire) et sortante (solaire et tellurique) du système Terre - atmosphère. À long terme, le bilan radiatif terrestre se doit d'être équilibré. Un forçage radiatif est un déséquilibre de ce bilan radiatif par l'impact d'un facteur externe au système climatique. Le forçage radiatif est dit positif (négatif) lorsqu'il y a réchauffement (refroidissement) du climat.

La figure (1.2) montre le signe et l'intensité du forçage radiatif (en W.m^{-2}) des principaux constituants de l'atmosphère. On peut y voir notamment que le forçage radiatif total entraîné par l'émission anthropique de gaz à effet de serre et d'aérosols est estimé positif à 1.6 W.m^{-2} (de 0.6 à 2.4 W.m^{-2}) montrant l'influence très probable d'un réchauffement dû aux activités humaines.

D'après la figure (1.2), l'augmentation des gaz à effet de serre dans la troposphère due aux activités humaines entraîne un forçage radiatif positif estimé à environ 2.99 W.m^{-2} (de 2.62 à 3.56) (avec $1.66 \pm 0.17 \text{ W.m}^{-2}$ dû au dioxyde de carbone, $0.48 \pm 0.05 \text{ W.m}^{-2}$ dû au méthane, $0.16 \pm 0.02 \text{ W.m}^{-2}$ dû au protoxyde d'azote, $0.34 \pm 0.03 \text{ W.m}^{-2}$ dû aux gaz halo carbonés et 0.35 W.m^{-2} (de 0.25 à 0.65 W.m^{-2}) dû à l'Ozone). Le forçage radiatif dû aux gaz à effet de serre est estimé avec un « fort » niveau de compréhension scientifique (« Level of Scientific Understanding », LOSU), mis à part un niveau « moyen » pour l'Ozone.

Les aérosols ont un comportement plus complexe que les gaz à effet de serre. Ils agissent de deux manières distinctes, en absorbant et en diffusant le rayonnement solaire et tellurique, dont une partie de l'énergie est rétrodiffusée vers l'espace ainsi que distribuée dans la colonne atmosphérique (effet direct), mais aussi en modifiant les propriétés optiques, la quantité et le temps de résidence des nuages suite à un changement de leurs propriétés microphysiques (effet indirect) [Forster et al., 2007]. Notons qu'il existe aussi un effet « semi-direct » [Hansen et al., 1997 ; Ackerman et al., 2000] des aérosols sur le profil vertical de température et, par conséquent, sur la formation et le type de nuages (certaines couches d'aérosols constituées notamment de suies absorbent l'énergie solaire et réduisent la couverture nuageuse en favorisant l'évaporation des gouttelettes d'eau).

D'une part, la concentration d'aérosols et leur composition chimique vont déterminer en partie la granulométrie du nuage, c'est-à-dire la distribution en taille des gouttelettes d'eau nuageuse et, par conséquent, les propriétés microphysiques et optiques des nuages. Une augmentation du nombre d'aérosols (et donc du nombre de noyaux de condensation) conduira à une augmentation du nombre de gouttelettes qui, pour une quantité fixée d'eau nuageuse, résulte en une diminution de la taille des gouttelettes. Le nuage réfléchit alors plus qu'un nuage constitué de plus grandes gouttelettes. Cet effet est appelé le « 1^{er} effet indirect » [Ramaswamy et al., 2001] (aussi appelé « l'effet d'albédo nuageux » [Lohmann and Feichter, 2005] ou « l'effet Twomey » [Twomey, 1977]).

D'autre part, la variation de la quantité d'eau, de l'altitude et du temps de résidence des nuages induits par un changement de leurs propriétés microphysiques s'appelle le « 2^{ème} effet indirect » [Ramaswamy et al., 2001] (aussi appelé « l'effet de durée de vie nuageuse » [Lohmann and Feichter, 2005] ou « l'effet Albrecht » [Albrecht, 1989]).

Les aérosols influencent ainsi le climat de manière significative en modifiant l'équilibre radiatif de la planète [Anderson et al, 2003]. Contrairement aux gaz, les particules peuvent induire un forçage positif ou négatif. En effet, d'après la figure (1.2), on observe :

- Un forçage radiatif négatif (en bleu, refroidissement du système Terre - atmosphère) dû à l'effet direct des aérosols ($- 0,5 \pm 0,4 \text{ W.m}^{-2}$ avec un niveau « moyen à bas » de compréhension scientifique). En effet, au-dessus de surfaces peu réfléchissantes (cas des océans ou forêts), la présence de couches d'aérosols peu absorbants tend à contribuer au refroidissement planétaire. C'est le cas des aérosols de sulfate provenant d'émissions industrielles de SO_2 , des aérosols carbonés organiques provenant de la

combustion de combustibles fossiles et des aérosols provenant de la combustion de la biomasse. Notons que l'estimation de l'effet direct total des aérosols est actuellement plus précise [Forster et al., 2007] qu'auparavant [Ramaswamy et al., 2001] car elle s'appuie sur une combinaison de simulations de modèles et d'observations (mesures au sol, aéroportées et satellitaires). L'effet radiatif direct de chacune des espèces d'aérosols reste cependant bien plus incertain que leur effet total. Même si l'on dispose actuellement des premières estimations pour les aérosols de type poussières désertiques et les nitrates.

- Un forçage radiatif négatif dû au 1^{er} effet indirect (- 0,7 W.m⁻² (de - 1.8 à - 0.3) avec un « bas » niveau de compréhension scientifique) des aérosols anthropiques. On remarque, par la barre d'erreur sur la figure (1.2), que l'évaluation précise de l'effet indirect est plus délicate que celle de l'effet direct des aérosols car elle nécessite de connaître précisément quelles étaient les propriétés optiques du nuage avant interaction avec les aérosols.
- Un forçage radiatif positif (en rouge, réchauffement du système terrestre) dû à la présence d'aérosols absorbants au-dessus de surfaces très réfléchissantes comme la neige. C'est le cas des aérosols carbonés provenant de la combustion des combustibles fossiles (0.1 ± 0.1 W.m⁻²).

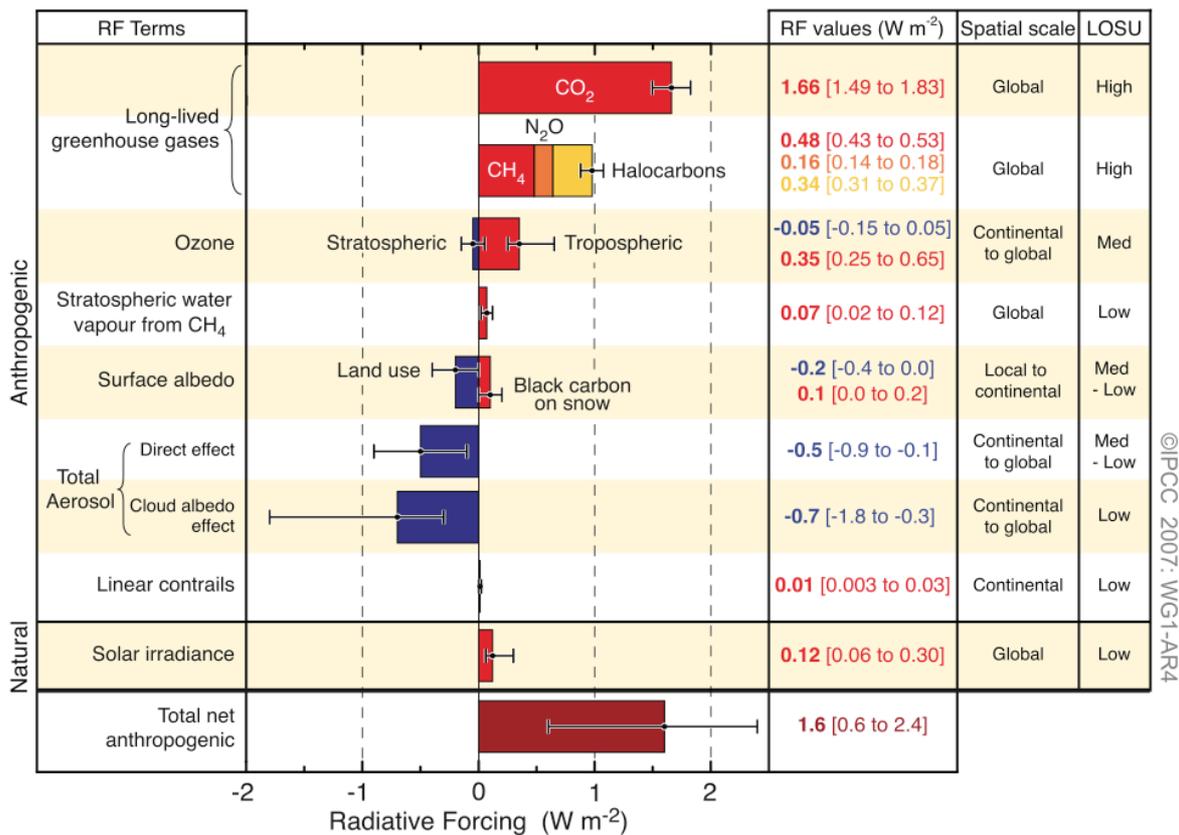


Figure 1.2: Quantification du forçage radiatif des différents composants de l'atmosphère d'après le rapport [Forster et al., 2007].

1.2.2. Impacts sanitaires et environnementaux

L'impact environnemental des aérosols se traduit notamment par le dépôt des particules sur les sols et la végétation et l'altération de l'activité photosynthétique des végétaux.

Alors que les conséquences du dépôt d'aérosols en surface peuvent être positives dans le cas d'un apport essentiel en nitrates et phosphates (par exemple, au dessus du delta intérieur de l'Okavango en Afrique australe [Tyson *et al.*, 2002]), elles sont néfastes dans le cas des pluies acides.

Quant à l'altération de l'activité photosynthétique des végétaux par les aérosols, elle se caractérise notamment par des pertes de rendement des cultures [Steiner and Chameides, 2005 ; Chameides *et al.*, 1999].

En ce qui concerne l'impact sanitaire des aérosols, notre respiration entraîne la pénétration de milliers de particules dans nos poumons qui se déposent, suivant leur taille, dans les voies respiratoires ou dans les alvéoles (lieu des échanges gazeux).

Alors que les particules de diamètre aérodynamique (voir définition dans la section suivante) supérieur à environ 30 μm ne sont pas inhalées, celles dont le diamètre aérodynamique est entre 5 et 30 μm sont principalement déposées par impaction dans les voies aériennes supérieures (nez, cavité nasale et gorge).

Plus les particules sont fines, plus elles pénètrent en profondeur dans les poumons. Ainsi, alors que les particules de diamètre aérodynamique entre 1 et 5 μm s'accumulent par sédimentation (la vitesse de l'air est alors plus faible) dans la zone trachéobronchique (partie supérieure des poumons), les particules de diamètre aérodynamique plus fin (égal à 1 μm ou moins) atteignent la zone des alvéoles par diffusion [Klaassen *et al.*, 1986].

L'exposition à une concentration élevée de particules peut produire de nombreux effets sur la santé, causant une inflammation pulmonaire jusqu'à une aggravation et une thrombose vasculaire qui peut être mortelle [Nemmar *et al.*, 2003].

De façon générale, il est admis que le nombre annuel de décès attribuables aux effets d'une exposition à long terme serait plus important que celui des effets d'une exposition à court terme. De plus, même pour les effets à court terme les pics de pollution contribuent peu à l'impact total. Celui-ci est essentiellement dû à des niveaux de pollution modérés mais plus nombreux d'où l'importance de la pollution de fond [AFSSE, 2005].

Si le risque n'est pas grand au niveau individuel (par rapport au tabagisme), la forte proportion de personnes exposées et l'absence de seuil d'innocuité font de la pollution atmosphérique urbaine un problème majeur de santé publique ainsi que l'illustrent les évaluations d'impact sanitaire réalisées à ce jour. L'étude de Künzli *et al.* [2000] a permis une estimation quantitative du nombre de décès dû à la pollution atmosphérique dans trois pays (France, Suisse et Autriche) : 6 % du nombre total de décès serait attribuable à la pollution atmosphérique (celle liée au transport automobile en expliquerait la moitié), soit 20 000 décès annuels pour ces trois pays.

D'après une étude de l'Agence Française de Sécurité Sanitaire portant sur 76 agglomérations françaises (soit environ 15 millions de personnes âgées de 30 ans ou plus), 600 à 1 100 décès par cancer du poumon (6 à 11 % de la mortalité par cancer du poumon) et 3 000 à 5 000 décès par maladie cardiorespiratoire (5 à 7 % de la mortalité de cette nature) seraient attribuables à une exposition chronique aux particules fines dans l'air en 2002 [AFSSE, 2005].

On estime actuellement à 100 000 le nombre de décès et à 725 000 le nombre d'années de vie perdues par an attribuables à l'exposition aux particules fines en Europe [European Commission Directorate, 2005].

En 2004, dans les 26 villes européennes du programme APHEIS (Air Pollution and Health : European Information System), une étude d'impact sanitaire sur les 36 millions d'habitants a estimé à 11 375 le nombre de décès prématurés qui pourraient être prévenus chaque année si, toutes choses égales par ailleurs, la masse de particules (dont le diamètre aérodynamique est inférieur à $2.5 \mu\text{m}$) à laquelle était exposée la population était ramenée à $20 \mu\text{g.m}^3$ dans chaque ville. Sa réduction à $15 \mu\text{g.m}^3$ entraînerait la prévention de quelque 16 926 décès prématurés. Une moyenne annuelle qui n'excéderait pas $15 \mu\text{g.m}^3$ se traduirait par un gain de 2 à 13 mois d'espérance de vie pour une personne de 30 ans [Medina et al., 2005].

La figure (1.3) montre l'estimation en l'an 2000 de la diminution de l'espérance de vie (en mois) en Europe imputable aux particules fines de diamètre aérodynamique inférieur ou égal à $2.5 \mu\text{m}$.

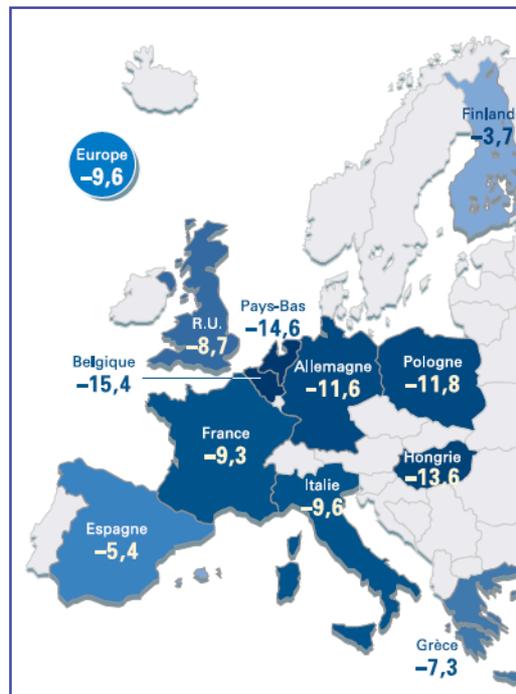


Figure 1.3 : Estimation de la diminution de l'espérance de vie (en mois) en Europe imputable aux particules fines $\text{PM}_{2.5}$; Situation en 2000, fourchette haute [European Commission Directorate, 2005]. Les calculs sont fondés sur le risque relatif proposé par Pope [2002] pour la mortalité totale, estimée sur la base du suivi de la cohorte sur la population des plus de 30 ans.

1.3. Propriétés microphysiques des aérosols

1.3.1. Distribution en taille

La taille des aérosols s'étend sur une large gamme de rayons allant de quelques nanomètres à plusieurs dizaines de microns. Cette taille varie selon la nature de la source de production des particules et en fonction des réactions que subissent les aérosols durant leur temps de résidence dans l'atmosphère (nucléation, coagulation, et condensation de gaz vers l'état particulaire). Propice à la caractérisation de la taille d'une population d'aérosols, la distribution en taille permet de quantifier le nombre de particules d'un certain rayon. Cette distribution présente un ou plusieurs maxima (ou modes).

La figure (1.4) présente la distribution, non pas en nombre, mais en masse d'une population de particules de diamètres aérodynamiques différents. Le diamètre aérodynamique correspond au diamètre qu'une particule sphérique d'une densité de 1 g/cm^3 devrait avoir pour présenter la même vitesse de chute que la particule considérée. Le diamètre aérodynamique d_a , fonction du diamètre physique d_p et de la densité de la particule ρ (souvent exprimée en g.cm^{-3}), s'écrit de la manière suivante :

$$d_a = d_p \times \sqrt{\rho} \quad (1.1)$$

La figure (1.4) montre les 3 modes les plus couramment observés : le mode de nucléation (aussi appelé « ultrafin » ou « d'Aitken », A), d'accumulation (B) et grossier (C).

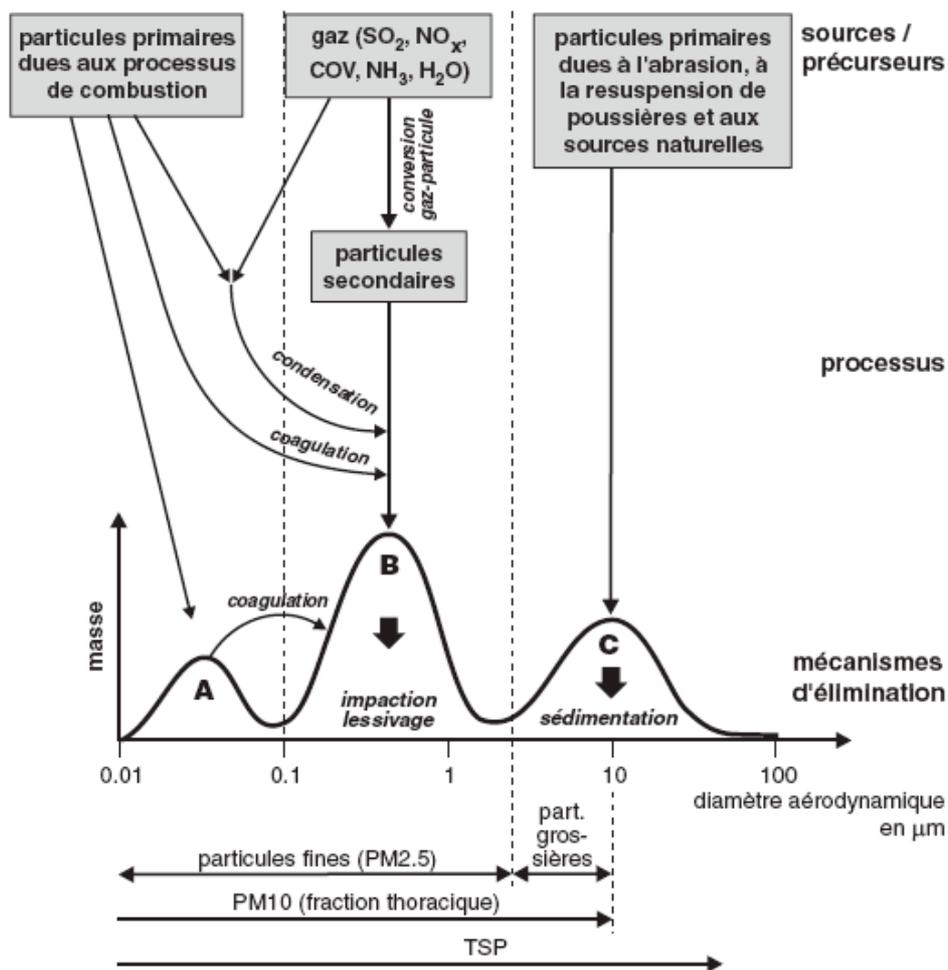


Figure 1.4: Présentation simplifiée de la distribution en masse d'une population de particules de diamètres aérodynamiques différents. Le diamètre aérodynamique correspond au diamètre qu'une particule sphérique d'une densité de 1 g/cm^3 devrait avoir pour présenter la même vitesse de chute que la particule considérée. A : particules ultrafines ; B : mode d'accumulation et C : particules grossières.

Le mode de nucléation (A) correspond à des particules de rayon physique (et non aérodynamique) inférieur à $0.05 \mu\text{m}$, très petites faces aux longueurs d'ondes solaires (visible)

et telluriques (infrarouge). Elles sont, par conséquent, peu actives optiquement et leur impact radiatif peu être négligé.

Le mode d'accumulation (B), quant à lui, correspond à des particules de rayon physique entre 0.05 μm et 1 μm . Celles-ci proviennent de l'agrégation de particules plus petites, de la condensation de gaz ou de la ré-évaporation de gouttelettes. Les aérosols de ce mode sont d'une grande importance du point de vue climatique car leur efficacité à diffuser la lumière est maximale (puisque leur taille est de l'ordre du spectre solaire) et ils présentent le temps de résidence le plus long dans l'atmosphère. De plus, les aérosols du mode d'accumulation sont ceux sur lesquels se forment les gouttelettes de nuages.

Les modes de nucléation (A) et d'accumulation (B) peuvent être regroupés en un seul mode dit « fin ». Notre attention se porte tout particulièrement sur ce mode puisqu'il correspond, comme on peut le voir sur la figure (1.4), aux mesures de qualité de l'air en concentration massique des particules dont le diamètre aérodynamique est inférieur à 2,5 μm (quantité appelée « PM2.5 » pour « Particulate Matter »).

Finalement, le mode grossier (C) correspond à des particules de rayon physique supérieur à 1 μm , de type primaire et naturel.

Notons que proche d'une source d'aérosols, la distribution en taille de la population de particules est souvent observée comme mono modale. La distribution en taille évolue vers une bi-modalité lorsque le temps de résidence des particules dans l'atmosphère augmente ou en présence de 2 sources distinctes d'aérosols de type différents.

Parmi plusieurs lois statistiques de la littérature permettant de modéliser la distribution en taille de différents types d'aérosols (citons, par exemple, la loi de *Junge* [1963] ou la loi de *Gamma Diermendjian* [1969]), nous avons choisi d'utiliser une distribution de type log-normale [*Aitchison et Brown*, 1957] car il a été prouvé qu'une telle fonction s'ajuste au sens des moindres carrés de manière satisfaisante à un grand nombre de situations naturelles [*Hinds*, 1982].

La variation du nombre de particules n en fonction du rayon r pour un seul mode s'écrit de la manière suivante :

$$n(r) = \frac{dN}{dr} = \frac{n_0}{\sigma_0 \sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{(\ln(r - \ln r_0))^2}{2\sigma_0^2}\right] \quad (1.2)$$

où $n(r)$ est le nombre de particules dont le rayon est compris entre r et $r + dr$, r_0 est le rayon modal, σ_0 est l'écart-type (i.e. la largeur de la distribution) et n_0 est le nombre de particules présentes dans le mode considéré. Autrement dit, à chaque mode est associé un nombre n_0 , un écart-type σ_0 , un rayon modal r_0 et finalement une fonction lognormale $n(r)$. Une distribution multi-modale est alors la somme des distributions log-normales $n(r)$ de chaque mode.

Dans la suite de cette thèse, plutôt qu'une distribution en nombre, nous utiliserons une distribution en volume sous la forme:

$$\frac{dV}{d \ln r} = \frac{V_0}{\sigma_3 \sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{(\ln r - \ln r_3)^2}{2\sigma_3^2}\right] \quad (1.3)$$

où r_3 et σ_3 sont les rayons et écart-types de la distribution en volume et V_0 est la concentration totale en volume des particules.

On passe du rayon modal de la distribution en volume, r_3 à celui de la distribution en nombre, r_0 de la manière suivante :

$$r_3 = r_0 \exp(3\sigma_0^2) \quad (1.4)$$

Nous pouvons alors noter que r_3 est supérieur à r_0 . Cela traduit une forte contribution des grosses particules à la distribution en volume et un décalage de cette distribution vers des rayons plus importants.

Notons que dans le cas d'un aérosol hydrophile, une augmentation de l'humidité relative est souvent accompagnée d'une augmentation de la taille des particules. L'influence de l'humidité relative HR sur le rayon r de la particule peut être modélisée par la relation de Hänel [1976] de la façon suivante :

$$r_w = r(1 - HR)^{-e} \quad (1.5)$$

où r_w est le rayon « humide ». Le facteur e dépend du type d'aérosol. Il est notamment fixé à 0.285 pour les particules solubles autres qu'organiques (« WS » pour « Water Soluble », voir la section 1.3.2) d'après Hänel [1976].

Il a été montré que le paramètre le plus représentatif des propriétés radiatives d'une distribution en taille des particules est le rayon effectif r_{eff} défini par Hansen et Travis [1974], fonction de la distribution en nombre $n(r)$ et du rayon r des particules, de la manière suivante :

$$r_{\text{eff}} = \frac{\int_0^{\infty} r^3 n(r) dr}{\int_0^{\infty} r^2 n(r) dr} \quad (1.6)$$

Le rayon effectif r_{eff} peut-être défini à partir du rayon r_0 et de l'écart-type σ_0 modal de la distribution en nombre (présents dans la relation 1.4) comme suit :

$$r_{\text{eff}} = r_0 \exp(2.5\sigma_0^2) \quad (1.7)$$

1.3.2. Composition chimique

La composition chimique des aérosols est très variable et dépend à la fois de la source émettrice des particules et de la dynamique atmosphérique. Le tableau (1.1) présente à la fois les différents types d'aérosols et leur quantité dans l'atmosphère (en Terra gramme par an).

D'après ce tableau, on observe une composante naturelle et anthropique à la majorité des types d'aérosols et une dominance en masse des aérosols naturels (94%) par rapport à la charge totale des particules. Notons que les aérosols naturels sont, en grande partie, composés de grosses particules (poussières désertiques, sels de mer...) par rapport aux aérosols secondaires (en majorité anthropiques).

Il est possible de simplifier le tableau (1.1) et de définir 4 grands types d'aérosols toutes sources (naturelle ou anthropique) ou processus de formation confondus (primaires ou secondaires) :

- les sels de mer (« sea salt »),
- les aérosols d'origine terrigène (« poussières désertiques » ou « Dust »),
- les aérosols carbonés qui comprennent deux espèces chimiques différentes : le carbone suie (« Black Carbon » ou « BC ») et le carbone organique (« Organic Carbon » ou « OC »),

- les particules solubles autres qu'organiques (« Water Soluble » ou « WS »).

L'aérosol marin est produit principalement par l'éclatement des bulles d'air produites par l'action du vent sur la surface de la mer [*Blanchard and Woodcock*, 1980 ; *Monahan et al.*, 1986 ; *Resch and Afeti*, 1992].

Si les sels de mer peuvent être considérés comme des aérosols troposphériques totalement naturels, il n'en est pas de même pour la totalité des aérosols d'origine terrigène. Ce dernier type d'aérosols est principalement produit par les déserts de l'hémisphère nord (Sahara) mais aussi par les régions sèches où la végétation a été réduite par les activités humaines. *Tegen and Fung* [1995] ont estimé que ces poussières minérales anthropiques représentaient 30 à 50 % de la concentration atmosphérique totale, mais les incertitudes sur ce chiffre sont encore aujourd'hui très élevées.

Les aérosols carbonés sont composés de carbone suie (ou « Black Carbon », « BC ») et de carbone organique (ou « organic carbon », « OC »). Ces aérosols sont émis lors d'une combustion incomplète et peuvent provenir de la production d'énergie (fumées industrielles), du transport automobile ou de feux de biomasse.

Notons qu'il est aussi possible de rencontrer le terme « POM » pour « Particulate organic matter ». Ce terme inclut, en plus du carbone organique (OC), les atomes d'hydrogène et d'oxygène. La quantité de POM est égale à 1.3 fois celle de OC [*Lioussse et al.*, 1993]. Les aérosols solubles autres qu'organiques (WS) sont composés d'ions chlorure, nitrate, sulfate, lithium, sodium, ammonium, potassium, magnésium et Calcium [*Lioussse et al.*, 1996]

Origine	Sources	Estimation de l'intensité (Tg /an)
Naturelles (94% au maximum)	Primaires	
	Poussières minérales	2150
	Sels de mer	3340
	Poussières volcaniques	33
	Débris biogéniques	56
	Carbone suie (combustion de biomasse)	6-9
	Secondaires	
	Sulfates (issus des COV et SO2 volcanique, combustion biomasse)	78
	Carbone organique (issu des COV, combustion biomasse)	61-96
	Nitrates (issus des NOX, combustion biomasse)	4
Total Naturelles Maximum		5766
Anthropiques (6% au maximum)	Primaires	
	Poussières industrielles	100-200
	Carbone Suie (combustion de fuel fossiles et biomasse)	6-8
	Secondaires	
	Sulfates (issus du SO2)	122
	Nitrates (issus des NOX)	14
	Carbone organique (combustion fuels fossiles et biomasse)	10-30
	Total Anthropiques Maximum	
Total Maximum		6140

Tableau 1.1: Estimation des flux d'émission moyens annuels en masse des principaux types d'aérosols dans l'atmosphère [adapté de Ramaswamy et al., 2001].

1.3.3. Indices de réfraction

L'indice de réfraction est une propriété optique majeure de l'aérosol puisqu'il intervient dans l'extinction de la lumière en déviant la direction du rayonnement incident et/ou en l'absorbant. Ce paramètre, noté η , est cependant exposé dans cette section car il est directement relié à la composition chimique de l'aérosol (et à l'humidité relative) ainsi qu'à la longueur d'onde.

La partie réelle $Re(\eta)$ fixe la vitesse de propagation dans le milieu et renseigne sur la déviation de la lumière par la particule. Celle-ci est généralement comprise entre 1.33 (aérosols saturés d'eau) et 1.55 (aérosol minéral), mais peut aussi atteindre 1.75 dans le domaine du visible pour les particules de suie.

La partie imaginaire $Im(\eta)$ est reliée aux propriétés d'absorption des aérosols. Elle est comprise entre $2 \cdot 10^{-8}$ pour les aérosols purement diffusants (comme les sels marins) et 0.66 pour les aérosols les plus absorbants comme les particules de suie.

Les valeurs d'indice de réfraction η de différents types d'aérosols issues de la littérature sont présentées dans le tableau (1.2).

	Type d'aérosol	Re(η)	Im(η)	Références
Solubles	Sulfates	1,53	6,0E-03	d'Almeida et al. [1991]
	Nitrates	1,53	6,0E-03	d'Almeida et al. [1991]
Carbonés	BC	1,85	4,4E-01	Marley et al. [2001]
	OC	1,55	5,0E-02	Von Hoyningen-Huene et al. [1998]
Poussières		1,53	5,5E-03	d'Almeida et al. [1991]
Sels marins		1,50	1,0E-08	d'Almeida et al. [1991]

Tableau 1.2: Indice de réfraction η de 6 types d'aérosols à 0% d'humidité relative et à 550 nm selon Chazette et Lioussé [2001] et Léon [2000]; Re(η) désigne la partie Réelle de l'indice et Im(η), la partie imaginaire.

L'indice de réfraction varie en fonction de l'humidité relative. En effet, la condensation de la vapeur d'eau à la surface de l'aérosol entraîne une diminution de son indice de réfraction qui va tendre vers celui de l'eau ($\eta_{H_2O} = 1.33$ à 550 nm [Hale et Querry, 1973]). Associée à une augmentation du rayon de la particule (voir section 1.3.1), d'après Hänel [1976], cette variation de l'indice de réfraction avec l'humidité relative sera modélisée de la manière suivante :

$$\eta_w = \eta_{H_2O} + (\eta - \eta_{H_2O})(r_w / r)^{-3} \quad (1.8)$$

où η_w et r_w désignent respectivement l'indice de réfraction et le rayon de la particule « humide ».

1.4. Propriétés optiques des aérosols

Dans des conditions de ciel clair, l'atténuation du rayonnement solaire incident (ou extinction) par les composants atmosphériques (molécules de gaz et aérosols) consiste en 2 processus physiques :

- Le rayonnement peut être absorbé.

La figure (1.5) décrit la variation spectrale du flux solaire au sommet de l'atmosphère ainsi qu'au niveau de la mer. Afin de s'affranchir de l'absorption gazeuse du flux solaire, il suffit de se positionner dans les « fenêtres atmosphériques », c'est-à-dire dans les bandes spectrales présentant un fort signal de flux solaire au niveau de la mer. C'est le cas de la plupart des bandes spectrales utilisées par les capteurs de télédétection où les effets de l'absorption gazeuse apparaissent faibles.

Dans le cas des aérosols, cette absorption est associée à un indice de réfraction dont la partie imaginaire est non négligeable.

- Le reste du rayonnement est redistribué (ou diffusé) dans n'importe quelle direction (y compris la direction incidente).

La diffusion dépend de la taille des particules par rapport à la longueur d'onde incidente. Lorsque la taille de la particule est de l'ordre de la longueur d'onde incidente, on parle de diffusion de Mie [1908] et c'est le cas des aérosols atmosphériques en présence d'un rayonnement solaire.

Par contre, les longueurs d'onde des spectres solaires et telluriques étant bien supérieures aux dimensions des molécules de gaz, la diffusion moléculaire suit la théorie de *Rayleigh* [1889].

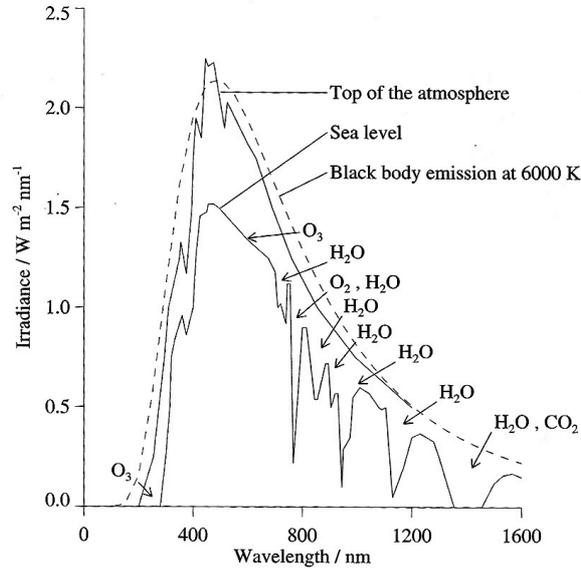


Figure 1.5 : Représentation de la variation spectrale (en nanomètres) du flux solaire ($W \cdot m^{-2} \cdot nm^{-1}$, « Irradiance ») au sommet de l'atmosphère ainsi qu'au niveau de la mer et modélisation du rayonnement du corps noir à 5900 K (en pointillé).

1.4.1. Épaisseur Optique en aérosol (AOT)

L'intensité du rayonnement solaire incident direct est atténuée par l'atmosphère d'un facteur $e^{-\tau_{ext}}$ où τ_{ext} est défini comme étant l'épaisseur optique d'extinction (sans unité). Par la suite, nous considérons un rayonnement corrigé de l'atténuation moléculaire (correction de la diffusion de Rayleigh et mesure du rayonnement dans une « fenêtre atmosphérique » où l'absorption gazeuse est négligeable) de telle sorte que τ_{ext} désigne, par la suite, l'extinction des aérosols seuls.

L'épaisseur optique d'extinction des aérosols (AOT pour « Aerosol Optical Thickness »), $\tau_{ext}(\lambda)$, dépendante de la longueur d'onde λ et somme de l'épaisseur optique d'absorption et de diffusion ($\tau_{ext} = \tau_{diff} + \tau_{abs}$), est l'intégrale entre 2 altitudes z_{min} et z_{max} du coefficient d'extinction, $\sigma_{ext}(z, \lambda)$ (m^{-1}):

$$\tau_{ext}(\lambda) = \int_{z_{min}}^{z_{max}} \sigma_{ext}(z, \lambda) dz \quad (1.9)$$

Comme l'épaisseur optique est habituellement celle de la colonne atmosphérique, z_{min} et z_{max} sont respectivement égaux à 0 et $+\infty$.

D'après *Dubovik et al.* [2002], alors que la valeur moyenne de l'AOT à 440 nm pour des aérosols de type urbain/ industriel au-dessus de Paris est de 0.26, elle est de 0.74 pour les particules de type feux de végétation au-dessus de la forêt amazonienne. De plus, les aérosols

de type poussières désertiques entraînent une AOT moyenne à 440 nm de l'ordre de 0.43 au-dessus du Golf Persique.

Pour un ensemble d'aérosols supposés sphériques, le coefficient d'extinction, $\sigma_{ext}(z, \lambda)$ (m^{-1}) s'écrit :

$$\sigma_{ext}(z, \lambda) = \int_0^{\infty} \pi r^2 Q_{ext}(\eta, r, z, \lambda) n(r, z) dr \quad (1.10)$$

où l'efficacité d'extinction, notée Q_{ext} (sans unité) est dépendante, en toute rigueur, de l'indice de réfraction η , la taille de la particule r , la longueur d'onde λ et l'altitude z ; la distribution en taille d'un ensemble de particules, notée $n(r, z)$, est, elle aussi, en toute rigueur, dépendante de l'altitude.

Il est utile d'introduire la section efficace d'extinction, s_{ext} (m^2) produit de la section géométrique de la particule (égale à πr^2 pour une particule sphérique de rayon r) et du facteur d'efficacité d'extinction, Q_{ext} .

L'efficacité des aérosols à diffuser la lumière (normalisée par la masse d'aérosols) présente un maximum pour des aérosols de taille de l'ordre de la longueur d'onde.

Dans le cas du spectre solaire, cela correspond précisément aux aérosols du mode d'accumulation alors que dans « l'infrarouge solaire », cela correspond aux aérosols du mode grossier. Rappelons qu'il existe une minorité d'aérosols anthropiques dans l'atmosphère (d'après le tableau 1.1, 6% du contenu total en particules par rapport à 94% d'aérosols naturels). Les aérosols d'origine anthropique ont cependant un impact radiatif tout aussi fort que celui des aérosols naturels puisqu'ils sont formés en majorité de particules plus fines et, par définition, interagissent d'avantage avec le rayonnement solaire (visible).

Ainsi que dans le cas de l'épaisseur optique d'extinction, on note:

$$\left. \begin{aligned} \sigma_{ext} &= \sigma_{diff} + \sigma_{abs} \\ Q_{ext} &= Q_{diff} + Q_{abs} \\ s_{ext} &= s_{diff} + s_{abs} \end{aligned} \right\} \quad (1.11)$$

1.4.2. Coefficient d'Angström

L'épaisseur optique d'extinction $\tau_{ext}(\lambda)$ suit une loi de puissance de la longueur d'onde λ [Angström, 1964] :

$$\tau_{ext}(\lambda) \approx A\lambda^{-\alpha} \quad (1.12)$$

où A est une constante et α , le coefficient d'Angström.

La dépendance spectrale de l'épaisseur optique $\tau_{ext}(\lambda)$ renseigne sur la taille des particules diffusantes de la manière suivante :

$$\frac{\tau_{ext}(\lambda_1)}{\tau_{ext}(\lambda_2)} = \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2} \right)^{-\alpha} \quad (1.13)$$

où λ_1 et λ_2 sont des longueurs d'ondes choisies en général assez proches l'une de l'autre ; le coefficient d'Angström [1964], α , est un indicateur grossier de la taille de la particule. Plus la dépendance spectrale de l' AOT est grande, plus le coefficient d'angström est grand et plus les particules sont petites.

Dans le cas des molécules (diffusion de Rayleigh), l'AOT suit approximativement une loi en λ^{-4} et croît très rapidement lorsque la longueur d'onde diminue. En ce qui concerne les aérosols, le coefficient d'Angström varie de 0 (très grosses particules, par exemple, de type poussières désertiques) à 3 (très fines particules, par exemple, de type pollution urbaine). Notons qu'une population de grosses particules dont le nombre est distribué sur un seul mode peut avoir un coefficient d'Angström légèrement négatif.

1.4.3. Albédo de diffusion simple

La part de la diffusion dans l'extinction est donnée par l'albédo de diffusion simple, ω_0 (sans unité). Il correspond au rapport entre le coefficient de diffusion, σ_{diff} et le coefficient d'extinction, σ_{ext} d'un ensemble de particules.

Plus l'aérosol est absorbant, plus la partie imaginaire de l'indice de réfraction est grande et plus ω_0 est petit. Pour un aérosol non absorbant (dont la partie imaginaire de l'indice de réfraction est égale à 0), ω_0 est égal à 1. Dans le visible, la plupart des aérosols sont peu absorbants avec ω_0 supérieur à 0.8. Les particules de poussières désertiques montrent, quant à elles, une valeur moyenne de ω_0 supérieure à 0.9 du visible au moyen infrarouge. Les propriétés d'absorption sont directement liées à la composition chimique de l'aérosol et à son indice de réfraction.

1.4.4. Fonction de Phase

La figure (1.6) montre la distribution angulaire de la diffusion d'une particule suivant sa taille. On y observe une diffusion vers l'avant des grosses particules ($d=1\mu\text{m}$) par rapport aux fines particules ($d=0.01\mu\text{m}$). La figure (1.6) décrit l'angle de diffusion Θ de la particule défini entre l'onde du rayonnement incident et diffusé.

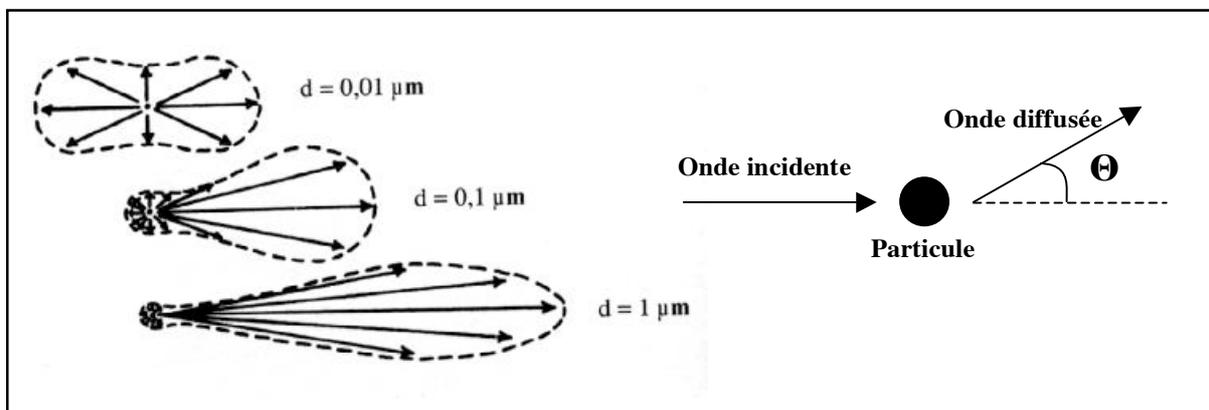


Figure 1.6 : Distribution angulaire d'une particule suivant sa taille (diamètre égal à 0.01, 0.1 et 1 μm) et définition de l'angle de diffusion d'une particule.

La distribution angulaire de la diffusion Θ d'une particule est donnée par la fonction de phase, aussi appelée fonction de diffusion, $p(\Theta, r)$. Cette grandeur représente la probabilité de diffusion du rayonnement incident dans le cône d'angle solide Ω . Elle est normalisée de la façon suivante :

$$\int_{4\pi} p(\Omega) d\Omega = 4\pi \quad (1.14)$$

Notons qu'il est aussi possible de calculer la fonction de phase polarisée $q(\Theta, r)$. Dans le cas des molécules (diffusion de Rayleigh), les fonctions de phase totale $p(\Theta, r)$ et polarisées $q(\Theta, r)$ sont respectivement égales à $(3/4)\times(1+\cos^2\Theta)$ (en négligeant le facteur de dépolarisation) et $(3/4)\times(1-\cos^2\Theta)$.

Il est possible de calculer la fonction de phase d'une population d'aérosols $P(\Theta, r)$ à partir de la fonction de phase de chaque particule $p(\Theta, r)$, de la section efficace de diffusion s_{diff} et de la distribution en taille $n(r)$ de la manière suivante :

$$P(\Theta) = \frac{\int_0^{\infty} p(\Theta, r) s_{\text{diff}} n(r) dr}{\int_0^{\infty} s_{\text{diff}} n(r) dr} \quad (1.15)$$

La figure (1.7) présente les fonctions de phase normalisées à 550 nm pour plusieurs types d'aérosols (poussières désertiques, sels de mer, suies et particules solubles autres qu'organiques). On y voit notamment, dans le cas d'aérosols de type poussières désertiques, une forte valeur de $P(\Theta, r)$ pour un angle de diffusion nul (autrement dit une diffusion vers l'avant).

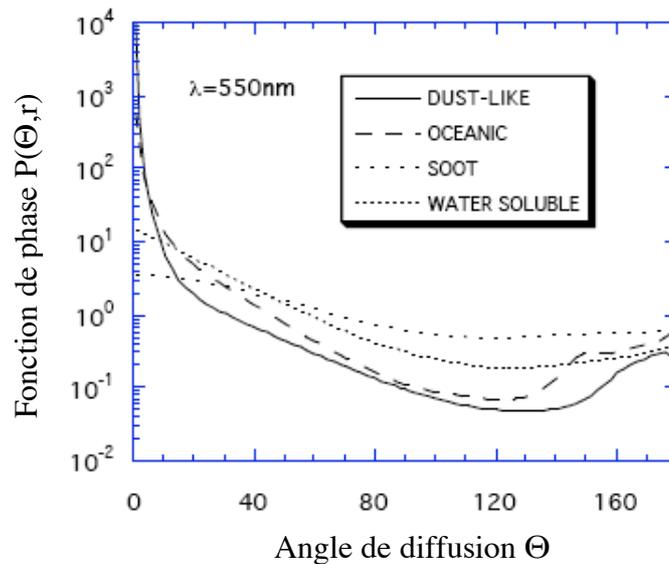


Figure 1.7 : Fonctions de phase $P(\Theta, r)$ normalisée à 550 nm pour plusieurs types d'aérosols (« Dust-like » : poussières désertiques, « oceanic » : sels de mer, « soot » : suies et « water soluble » : particules solubles autres qu'organiques) en fonction de l'angle de diffusion Θ [Vermote et al., 1994].

Théorie de Mie

Dans le cas de particules supposées sphériques, la théorie de Mie permet d'obtenir les propriétés optiques (fonction de phase $P(\Theta, r)$, facteur d'efficacité $Q_{\text{ext}}(\eta, r, z, \lambda)$ et, par la relation (1.8), σ_{ext} et τ_{ext}) à partir des paramètres physiques descriptifs d'un type d'aérosols à une certaine longueur d'onde λ (distribution en taille, $n(r, z)$, paramètre de taille, $2\pi r/\lambda$ et indice de réfraction, η).

1.4.5. Transfert radiatif

L'interaction du rayonnement solaire avec les différents constituants de l'atmosphère (population d'aérosols supposés sphériques et molécules) et la surface terrestre est régie par l'équation du transfert radiatif [Lenoble, 1993]. Notons, dès à présent, qu'il est possible de s'affranchir de l'absorption moléculaire en se plaçant dans des « fenêtres atmosphériques » (voir figure 1.5) puis en corrigeant le peu d'absorption restante. Par la suite, il sera donc uniquement question de la diffusion moléculaire.

La lumière provenant du soleil est naturellement non polarisée (aucune direction privilégiée du rayonnement). Elle se polarise lors des interactions avec les constituants de l'atmosphère ou la surface terrestre.

Le rayonnement électromagnétique peut être défini de 2 manières :

- Par les 4 paramètres de Stokes (de la dimension d'une énergie) [Chandrasekhar, 1950 ; Van De Hulst, 1957] I, Q, U et V. I est associé à l'énergie totale transportée par l'onde alors que les 3 autres paramètres caractérisent l'état de polarisation du rayonnement. C'est pourquoi le rayonnement solaire est uniquement caractérisé par I. Notons que le paramètre V est associé à l'ellipticité du rayonnement [Deuzé, 1974] et sera considéré comme nul puisque la polarisation du rayonnement solaire après interaction avec l'atmosphère et la surface est considérée rectiligne [Kawata, 1978].

- Par sa luminance spectrale L ($\text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{sr}^{-1} \cdot \mu\text{m}^{-1}$), flux énergétique émis ou réfléchi par unité de surface, unité d'angle solide et fonction de la longueur d'onde. La luminance totale L_t est égale au paramètre de Stockes I et la luminance polarisée L_p est égale à $\varepsilon \sqrt{Q^2 + U^2}$ où, par convention, ε représente le signe (± 1) de la luminance polarisée. Le paramètre ε est égal à 1 si le champ électrique est polarisé perpendiculairement au plan de diffusion et -1 si le champ électrique est polarisé dans le sens du plan de diffusion.

Un code de transfert radiatif permet le calcul du rayonnement électromagnétique reçu par un instrument (sous forme de luminance, L_{inst}) à partir de la contribution radiative des aérosols (L_{aer}), de la surface terrestre (L_{surf}) et des molécules (L_{mol}) de telle sorte que :

$$L_{inst} = L_{aer} + L_{mol} + L_{surf} \quad (1.16)$$

Notons qu'on néglige dans l'équation (1.16) les termes de couplage entre les aérosols, les molécules et la surface (hypothèse de diffusion primaire). Lorsque la couche d'aérosols est de faible épaisseur optique (τ_{ext}), la seule contribution des particules peut être approchée de la manière suivante :

$$L_{aer} = \frac{\omega_0 \times \tau_{ext} \times P(\Theta)}{4\mu_v} \quad (1.17)$$

où L_{aer} est la luminance des aérosols, ω_0 est l'albédo de diffusion simple, $P(\Theta)$, la fonction de phase normalisée des aérosols pour l'angle de diffusion Θ et μ_v , le cosinus de l'angle zénithal de visée. La figure (1.8) présente, parmi les différents angles utilisés lors de la télédétection spatiale, l'angle de diffusion Θ et l'angle zénithal de visée θ_v . Une relation similaire à celle de (1.17) existe pour la luminance polarisée (dépendante de la fonction de phase polarisée).

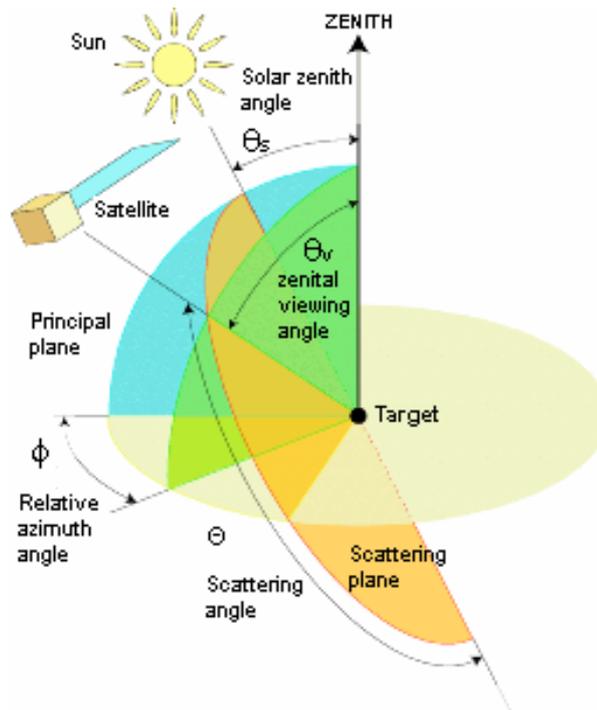


Figure 1.8 : Différents angles utilisés lors de l'observation satellitaire : angle zénithal solaire θ_s et de visée θ_v , angle de diffusion Θ (entre incidence solaire et direction de visée) et l'angle azimutal relatif Φ (différence entre angles azimutaux solaires et de visée).

La contribution des molécules est bien connue et peut être facilement modélisée. Il est, en effet, possible, grâce à des profils connus de pression et de température, de calculer l'épaisseur optique de diffusion moléculaire (grâce à la diffusion dite de Rayleigh) et d'en dériver, par transfert radiatif, une luminance moléculaire (L_{mol}).

La contribution radiative de la surface (L_{surf}) peut être une composante majeure du signal reçu par l'instrument. Le choix des conditions d'observation (domaine spectral) requiert des techniques très différentes au-dessus des océans et des continents. Au-dessus des océans, le domaine du proche infrarouge est favorable à la mesure des aérosols car l'océan n'y réfléchit pratiquement pas le rayonnement solaire ($L_{\text{surf}} = 0$).

Nous nous intéressons, dans cette thèse, à l'observation du contenu en aérosols au-dessus des continents où la mesure est plus complexe car le rayonnement réfléchi par la surface et rétrodiffusé par les aérosols sont difficiles à distinguer. En effet, dans le spectre visible et au-dessus des continents, la forte contribution de la surface à la luminance totale (comme le cas de surface très réfléchissante de type désertique) entrave la mesure du contenu en aérosols.

De ce fait, les algorithmes satellitaires d'observation des aérosols au-dessus des terres utilisent généralement des approches différentes, soit dans le domaine spectral de l'ultraviolet [Herman *et al.*, 1997a] ou de l'Infrarouge thermique [Legrand *et al.*, 1989] au-dessus de surfaces désertiques (ou par la méthode de réduction de contraste de Tanré *et al.* [1988a]) soit à partir de la mesure de la polarisation de la lumière réfléchie [Deuzé *et al.*, 1993 ; Herman *et al.*, 1997b] pour les autres types de surfaces continentales. Cette problématique sera développée au chapitre suivant.

1.5. Distribution verticale des aérosols

Parmi de nombreux facteurs climatologiques et météorologiques (vent, topographie locale, ...), la distribution verticale des aérosols est fortement influencée par la stabilité de l'atmosphère.

L'atmosphère est stable si une masse d'air, écartée de sa position d'équilibre, a tendance à y revenir ; cela dépend de la température de la masse d'air par rapport à l'air ambiant. Si la masse d'air soulevée est plus froide que l'air environnant, elle sera plus dense et redescendra à son niveau de départ. On dit, dans ce cas, que l'atmosphère est stable. La structure thermique verticale de la troposphère tient alors une part importante dans la répartition des polluants.

La figure (1.9) décrit la structure verticale simplifiée de la troposphère. Si on se limite aux 10 premiers kilomètres de l'atmosphère, on distingue la couche limite (partie grisée de la figure 1.9-a) de l'atmosphère libre. La couche limite atmosphérique est définie comme étant la partie de la troposphère directement influencée par la surface terrestre (frictions, évaporation, transfert de chaleur, émission de polluants, ...).

La couche limite est généralement plus fine dans le cas de hautes pressions atmosphériques (supérieure à 1013,25 hPa, conditions anticycloniques de ciel clair ou avec des nuages de beau temps) [Stull, 1988]. Dans le cas de hautes pressions, la structure verticale

de la couche limite atmosphérique au cours de la journée est composée de 3 parties majeures : une couche de surface (ou « surface layer », environ 10% de la couche limite) à sa base, suivie d'une couche de mélange (ou « mixed layer ») et une zone d'entraînement (ou « entrainment zone »). Il est très difficile de définir une hauteur et une structure de couche limite dans le cas de basses pressions.

La température potentielle (figure 1.9-b) montre habituellement une décroissance ou une valeur constante dans la couche de surface et la zone de mélange. On en déduit une atmosphère instable dans les 2 premières couches et toute parcelle d'air chauffée à la surface par le soleil va s'élever jusqu'au sommet de la couche de mélange. Cette masse d'air ascendante est alors fortement freinée par une couche stable (zone d'entraînement au sein de laquelle la température potentielle augmente) qui fait office de « couvercle thermique ». On parle alors parfois de température d'inversion lorsque la stabilité de cette couche est importante.

En conclusion, dans le cas des hautes pressions, les particules émises au sol et transportées par les masses d'air se retrouvent contenues en majorité dans cette couche limite atmosphérique (CLA) et ne la traversent que très peu. Par la suite, nous appellerons H_a , la hauteur de ce « réservoir » en aérosols.

D'après *Gras* [1991], la distribution verticale de la concentration massique en aérosols montre habituellement une décroissance exponentielle avec l'altitude jusqu'à une hauteur H_a et un profil de faible intensité et plus ou moins constant au-delà de cette altitude. Le profil de concentration massique en aérosols peut alors s'exprimer de la façon suivante:

$$PM(z) = PM(0) \exp\left(\frac{-z}{H_a}\right) \quad (1.18)$$

Avec $PM(0)$, concentration massique à la surface et H_a , échelle de hauteur où se trouve la majorité des aérosols.

D'après *Jaenicke* [1993], il a été observé des valeurs de H_a égales à 900 m dans le cas de sels marins, 2000 m pour les aérosols désertiques et 730 m dans le cas d'aérosols continentaux naturels (aérosols composés en majorité de particules primaires et de produits de l'oxydation d'ammonium et de sulfates qui forment le fond atmosphérique sur lequel se superpose l'émission d'aérosols anthropiques) [*Deepak and Gali*, 1991 dans *Seinfeld and Pandis*, 1998],

Notons que l'intégration du profil de concentration massique sur la verticale entre le sol et une altitude infinie est égale au simple produit de $PM(0)$ par la hauteur d'échelle H_a :

$$\int_0^{\infty} PM(z) dz = PM(0) \times H_a \quad (1.19)$$

Il est important de noter que cette distribution verticale n'est qu'une simplification grossière. Rappelons que la hauteur H_a n'est décelable facilement que dans le cas de conditions climatiques anticycloniques (hautes pressions) favorisant un mélange homogène des particules dans la couche limite. Cette distribution verticale est, en réalité, contredite dans le cas, très fréquent, de multiples couches d'aérosols dans la couche limite atmosphérique et/ou un transport de particules en altitude au-dessus de cette couche.

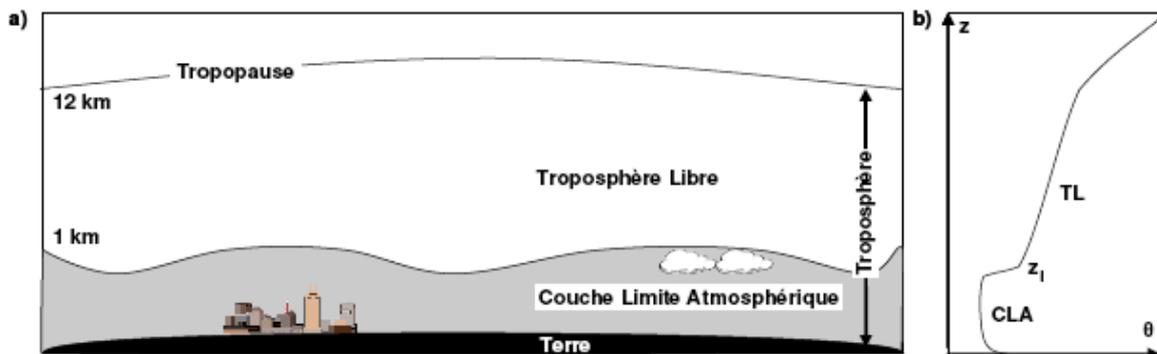


Figure 1.9: (a) Schéma de la structure verticale de la troposphère: la zone grise définie la « couche limite atmosphérique » (CLA) et le reste est appelé « troposphère libre » (TL); (b) Profil de température potentielle pendant la phase convective : La hauteur z_1 , aussi appelée hauteur de couche limite, délimite la couche limite atmosphérique (CLA) de la troposphère libre (TL). Adaptation de Stull [1988].

2. Outils et Méthode

Parmi les outils que nous utiliserons au cours de cette thèse, nous pouvons distinguer les mesures *in situ* (prélevées au sol) de concentration massique en particules au sol, les mesures de télédétection depuis le sol (photomètre solaire) ou à bord de plateformes spatiales (radiomètres MODIS ou « Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer », POLDER ou « Polarization and Directionality of Earth's Reflectances » et LIDAR CALIPSO ou « Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization »). Notons, bien qu'elles ne soient pas utilisées dans cette thèse, que les mesures *in situ* peuvent être aussi prélevées en altitude par moyen aéroporté.

La mesure par télédétection est appelée passive lorsque la source de rayonnement utilisée est naturelle de type solaire ou tellurique (cas du photomètre, des radiomètres embarqués MODIS et POLDER) ou active lorsque cette dernière est émise directement par l'instrument de mesure (cas du RADAR ou du LIDAR au sol ou embarqué sur une plateforme spatiale).

Bien différente de la mesure de prélèvement *in situ* au sol (par micro pesée dans le cas des concentrations massiques), la télédétection des aérosols consiste à mesurer un signal électromagnétique ayant interagi avec les particules afin d'en extraire les propriétés physiques de la population d'aérosols observée. Le but de cette thèse est pourtant, en grande partie, de confronter et d'établir le lien entre ces 2 types de mesures.

C'est pourquoi nous nous attardons à décrire la relation entre mesures de concentration au sol et mesures optiques d'extinction solaire ainsi que les facteurs capables d'influer sur cette relation. Nous présentons par la suite les outils utilisés dans cette thèse avant de décrire les différentes étapes nécessaires à l'évaluation de la capacité satellitaire à quantifier la pollution particulaire.

2.1. Relation entre concentration massique au sol et AOT

Rappelons qu'il est question dans cette thèse d'estimer la capacité des observations satellitaires à évaluer la pollution en aérosols en terme de qualité de l'air. Alors que les observations satellitaires consistent en une mesure optique d'extinction (AOT), on procède habituellement à l'estimation de la qualité de l'air à la surface terrestre en se servant de mesures de concentrations massiques (PM). En somme, il sera question, tout au long de cette thèse, de comparer ces 2 types de mesures et il est donc incontournable, dans un premier temps, d'étudier la conversion d'une épaisseur optique (sans unité) en une concentration massique au sol ($\mu\text{g}/\text{m}^3$).

Au préalable, il semble important d'introduire la section efficace spécifique (ou massique) d'extinction, s_{ext}^{mass} ($\text{m}^2/\mu\text{g}$). Celle-ci est liée à la section efficace d'extinction en nombre, $s_{ext}(z, \lambda)$ (m^2 , introduite à la section 1.4.1) grâce à la densité $\rho(r)$ de la particule supposée sphérique de la façon suivante :

$$s_{ext}^{mass}(z, \lambda) = (3 \times s_{ext}(z, \lambda)) / (4\pi r^3 \rho(r)) \quad (2.1)$$

Par contre, pour une population de particules de même type et de distribution en taille $n(r)$, les deux sections précédentes sont liées de la manière suivante :

$$s_{ext}^{mass} = \frac{\int_0^{\infty} s_{ext} n(r) dr}{\int_0^{\infty} \frac{4}{3} \pi r^3 \rho(r) n(r) dr} \quad (2.2)$$

Le coefficient d'extinction $\sigma_{ext}(z, \lambda)$ (m^{-1}), dépendant de l'altitude z et de la longueur d'onde λ , peut s'écrire en fonction du profil vertical de concentration massique en particule $M(z)$ ($\mu g/m^3$) et de la section efficace spécifique d'extinction s_{ext}^{mass} ($m^2/\mu g$) de la façon suivante :

$$\sigma_{ext}(z, \lambda) = s_{ext}^{mass}(z, \lambda) \times M(z) \quad (2.3)$$

D'après la relation (1.9) du chapitre précédent, on peut alors définir l'épaisseur optique d'extinction $\tau_{ext}(\lambda)$ par l'intégration de ce coefficient d'extinction $\sigma_{ext}(z, \lambda)$ sur la colonne atmosphérique de la façon suivante :

$$\tau_{ext}(\lambda) = \int_0^{\infty} s_{ext}^{mass}(z, \lambda) \times M(z) dz \quad (2.4)$$

Afin de simplifier l'écriture, nous avons regroupé la population de particules en un même type d'aérosols (par exemple « urbain ») et les propriétés optiques et microphysiques de ce type d'aérosol sont considérées constantes sur la colonne atmosphérique.

A titre d'exemple, le tableau (2.1) présente quelques valeurs de section efficace spécifique d'extinction s_{ext}^{mass} ($m^2/\mu g$) par type d'aérosol les 12 et 13 juin 1997 au-dessus de Thessaloniki d'après *Chazette et Liousse* [2001]. Les valeurs de s_{ext}^{mass} à la base du tableau (2.1) sont calculées à partir d'un code de Mie pour chaque type d'aérosol (dont le paramètre de taille et l'indice de réfraction provient de la littérature). Ces valeurs sont en accord avec de précédentes valeurs expérimentales [*Horvath, 1993 ; Anderson et al., 1996 ; Reid et al., 1998*].

Type aérosol	s_{ext}^{mass} (550nm)	
	12/06/97	13/06/97
POM	4,63E-06	3,85E-06
WS	3,10E-06	3,10E-06
BC	8,38E-06	9,70E-06
SS	4,90E-07	4,90E-07
Dust	4,00E-08	3,60E-08

Tableau 2.1 : Sections massiques spécifiques d'extinction à 550 nm, s_{ext}^{mass} , en $m^2 \cdot \mu g^{-1}$ à humidité ambiante le 12 et 13 Juin 1997 au dessus de Thessaloniki d'après *Chazette et Liousse* [2001]. Le type matière organique particulaire (POM, voir la section 1.3.2 du chapitre précédent) inclut, en plus du carbone organique (OC), les atomes d'hydrogène et d'oxygène. Les aérosols solubles autres qu'organiques (WS) sont composés de sulfates et des ions associés [*Liousse et al., 1996*]. Les autres types d'aérosols sont le carbone suie (BC), les sels marins (SS) et les poussières désertiques (Dust). Notons que le type urbain d'aérosols peut être approximé comme étant composé de carbone suie (BC), de carbone organique (OC) et de sulfate (partie de WS).

La section efficace d'extinction spécifique, valeur alors constante sur la verticale, peut être sortie de l'intégrale de la relation (2.4).

Dans cette étude, le profil de concentration en masse des aérosols est supposé connu et décroître en exponentielle négative avec l'altitude comme il a été vu à la section 1.5 [Gras, 1991]. Il est alors possible d'écrire la relation suivante :

$$M(z) = M(0) \exp\left(\frac{-z}{H_a}\right) \quad (2.5)$$

où H_a est l'échelle de hauteur où se trouvent la plupart des aérosols et $M(0)$ est la concentration massique au sol qui correspond, dans notre cas, aux mesures de concentration massique des particules de diamètre aérodynamique inférieur ou égal à $2.5 \mu\text{m}$ (PM_{2.5} pour « Particulate Matter »). Nous approfondirons la description de cette mesure standard de qualité de l'air dans la section suivante.

Il est donc permis de convertir une épaisseur optique en une concentration massique au sol grâce à la relation suivante:

$$M(0) = \frac{\tau_{ext}(\lambda)}{s_{ext}^{mass}(\lambda) \times H_a} \quad (2.6)$$

Il est important de ne pas oublier l'impact du profil vertical d'humidité relative sur la section efficace d'extinction spécifique et la concentration massique des particules.

Ainsi, on suppose qu'un changement de la section efficace d'extinction spécifique avec l'altitude n'est dû qu'à la seule variation du profil vertical d'humidité relative $HR(z)$ de telle sorte que :

$$s_{ext}^{mass}(z, \lambda) = s_{ext, dry}^{mass}(\lambda) \times f(HR(z)) \quad (2.7)$$

où la section efficace d'extinction spécifique à 0% d'humidité ($s_{ext, dry}^{mass}(\lambda)$) est supposée constante sur la verticale.

Notons, de même, que d'après Hänel [1976], la concentration massique des aérosols est fonction, elle aussi, du profil d'humidité relative de telle sorte que :

$$M(z) = M_{dry}(z) + M_{dry}(z) \times u \times HR(z)/(1 - HR(z)) \quad (2.8)$$

avec $M_{dry}(z)$, la concentration massique des particules à 0 % d'humidité relative et u , le facteur d'accroissement de la masse. Ce dernier est égal à 0.13 pour tous types de particules d'après Hanél [1978]. Par contre, d'après une étude de Chazette et Liousse [2001], les aérosols ont été observés plus hygroscopiques au-dessus de Thessaloniki en présentant un coefficient u égal à 0.47 ± 0.2 dans le cas du carbone organique (OC) et de 0.49 ± 0.2 dans le cas de particules solubles autres qu'organiques (WS).

Finalement, en supposant qu'il n'y ait aucune erreur sur la mesure connue de l'AOT, la conversion d'une AOT en une mesure de PM nécessite tout de même la connaissance :

- Des propriétés optiques et microphysiques du type d'aérosol considéré (densité volumique ρ de la particule, section efficace d'extinction, $s_{\text{ext}}(\lambda)$ obtenue grâce à un code de Mie, indice de réfraction, η et distribution en taille des particules $n(r)$),
- De la répartition verticale des aérosols et notamment, dans le cas d'un profil exponentiel, de la hauteur d'échelle H_a .

2.2. Mesures *in situ* de qualité de l'air

Afin de renforcer la surveillance et la prévention de la pollution de l'air, le parlement français a adopté, depuis 1996, la loi sur l'air et l'utilisation rationnelle de l'énergie (LAURE). En application des directives européennes, la France est ainsi tenue de mesurer les polluants atmosphériques sur l'ensemble de son territoire et d'informer la population en cas de dépassement des seuils d'alerte fixés.

C'est dans ce cadre que le dispositif de surveillance de la qualité de l'air comportait, au 1^{er} janvier 2002, 40 Associations Agréées (par le Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable, MEDD) pour la Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA). Parmi ces AASQA, 36 surveillent la qualité de l'air en métropole, et 4 dans les DOM TOM. Elles sont regroupées au sein de l'Agence De l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME).

Ces 40 AASQA mettent en œuvre 720 stations fixes de mesure sur l'ensemble desquelles sont implantés plus de 2200 analyseurs automatiques dédiés à la mesure des polluants de l'air (situation en 2002). A l'exception de la Guadeloupe et de la ville de Pointe à Pitre où la mise en place de l'AASQA est très récente, toutes les agglomérations françaises de plus de 100 000 habitants disposent depuis 2002 de stations de mesure de la qualité de l'air. Notons qu'en complément de ces stations fixes, les AASQA procèdent à de nombreuses campagnes de mesures au moyen notamment des camions laboratoires dont elles disposent.

Ces stations mesurent, entre autres polluants atmosphériques (ozone, oxydes d'azotes,...) , la concentration massique des particules de diamètre aérodynamique inférieur à $10 \mu\text{m}$ (« PM_{10} » pour « Particulate matter ») et $2.5 \mu\text{m}$ (« $\text{PM}_{2.5}$ »). Ces données sont fournies par le site Internet de la BDQA (Banque de Données Qualité de l'Air) : www.atmonet.org où il est possible de visualiser et télécharger les mesures (moyennes horaires, journalières, mensuelles, annuelles ou statistiques réglementaires) de contenus de différents polluants (Ozone, NO_2 , PM_{10} , etc....) enregistrés sur une période donnée et une région particulière. La figure (2.1) présente la localisation des différentes stations de mesures de concentration en PM_{10} en France en 2006.



Figure 2.1: Emplacement des stations de mesures de concentrations en PM₁₀ en France en 2006. On a plusieurs stations de mesures possibles par Association Agréée pour la Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA) et regroupées au sein de l'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME).

L'ADEME présente chaque jour le degré de pollution dans les principales agglomérations françaises et fournit des estimations pour le lendemain. L'indice ATMO, à la base de ce bulletin de l'air, est élaboré par les AASQA à partir de concentrations journalières de 4 polluants typiques des phénomènes de pollution atmosphérique : le dioxyde de soufre (SO₂), le dioxyde d'azote (NO₂), l'ozone (O₃) et les particules en suspension (PM₁₀).

D'après les standards de l'Union Européenne dans le domaine de la santé et des concentrations massiques en aérosols (concernant seulement les concentrations en PM₁₀), la limite journalière de PM₁₀ est de 50 µg/m³ ; cette limite ne doit pas être dépassée plus de 35 fois par an. Actuellement, le seuil critique concernant la concentration annuelle en PM₁₀ est de 40 µg/m³ [Putaud et al., 2003]. À partir de 2010, la valeur annuelle de PM₁₀ à respecter sera de 20 µg/m³ (Directive 1999/30/CE du conseil du 22 avril 1999).

La concentration massique en PM_{2.5} n'intervient pas dans l'évaluation de la qualité de l'air (indice ATMO). Cependant, aux Etats-unis, pour ce qui est des concentrations en PM_{2.5}, l'« Environnement Protection Agency » (EPA) évalue la qualité de l'air chaque jour en calculant le rapport entre la moyenne journalière de concentration massique et le « National Ambient Air Quality Standard » (NAAQS). Ce rapport est appelé AQI (pour « Air quality Index ») et est compris entre 0 pour une atmosphère presque transparente et 500 pour une atmosphère turbide (tableau 2.2).

Comme le montre le tableau (2.2), on suppose qu'il n'y a pas d'épisode de pollution à risque pour des moyennes journalières en PM_{2.5} inférieures à 40.5 µg/m³. Le seuil critique annuel concernant la concentration en PM_{2.5} est d'environ 15 µg/m³ [Wang and Christopher, 2003].

AQI	0-50	51-100	101-150	151-200	201-300	301-400	401-500
PM _{2.5} (24 h)	0-15.4	15.5-40.4	40.5-65.4	65.5-150.4	150.2-250.4	250.5-350.4	350.5-500.4
AQC	Bon	Modéré	CR*	CR	CHR	Dangereux	Dangereux

Tableau 2.2 : Indice de qualité de l'air (ou « Air Quality Index », AQI), moyenne journalière de PM_{2.5} correspondante ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) et Catégorie de qualité de l'air (ou « Air Quality Category », AQC) ; CR* : Conditions à risques pour certains groupes de personnes (les enfants en bas âges et les personnes âgées) ; CR : Conditions à risques pour toutes personnes ; CHR : Conditions à hauts risques. Adapté de l'étude de Wang et Christopher [2003].

Toutes les stations de mesures sont équipées du même type d'instruments gravimétriques aux procédés automatiques (quasi) continus afin de fournir un ensemble homogène de données à haute résolution temporelle (plusieurs mesures par minute). Les concentrations massiques sont mesurées soit à l'aide de la méthode par absorption de rayons β (jauge β), soit par la méthode de microbalance oscillante (« Tapered Element Oscillating Microbalance » ou TEOM). Cette dernière technique représente 70% du taux d'équipement pour la mesure des PM₁₀ et 100% pour la mesure des PM_{2.5}.

Les instruments TEOM, développés par Rupprecht & Patashnick, sont composés d'une microbalance utilisant un élément conique oscillant à sa fréquence naturelle, et d'un microprocesseur. Les particules aspirées au moyen d'une pompe de prélèvement sont déposées sur le filtre disposé en haut du cône et en augmentant la masse du système, elles produisent une décroissance de la fréquence naturelle de vibration [Patashnick and Rupprecht, 1991]. Cette variation de fréquence est enregistrée en continu et convertie en variation de masse par le microprocesseur. La précision sur la mesure de concentration massique est de l'ordre de quelques $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

Dans certaines conditions, il a été observé que les concentrations massiques mesurées par l'analyseur TEOM pouvaient être significativement plus faibles que celles mesurées par la méthode de référence pour l'air ambiant (méthode gravimétrique manuelle à température ambiante telle qu'utilisée, par exemple, par l'instrument PARTISOL). D'après de précédentes études [Van Loon et al., 2004; Charron et al., 2004 ; Hodzic et al., 2005], les concentrations en PM₁₀ mesurées par l'instrument TEOM sous-estiment le contenu réel en aérosols de 20 à 50 % selon la station et la saison (sous-estimation plus forte en hiver).

De nombreuses études attribuent principalement cette divergence des résultats à la volatilisation importante d'espèces particulières semi-volatiles dans le TEOM [Green et al., 2001; Muir, 2000; APEG, 1999 ; Allen et al., 1997]. En effet, dans sa configuration standard, le TEOM collecte un aérosol sur un filtre chauffé à 50°C ; ce qui peut expliquer en partie la perte, par évaporation, des composés les plus volatils, comme le nitrate d'ammonium et comme certains composés organiques. Notons qu'une sous-estimation par le TEOM observée plus faible en été s'explique alors par des températures ambiantes et instrumentales (50°C) plus proches.

2.3. Photomètre solaire

Le photomètre solaire est un instrument permettant la restitution des propriétés optiques et microphysiques des aérosols intégrés verticalement sur la colonne atmosphérique. Cette mesure ne peut s'effectuer qu'en ciel clair (absence de nuages).

Le réseau mondial de photomètres « AERosol RObotic NETwork » (AERONET) [Holben *et al.*, 1998] existe depuis le milieu des années 1990. Le nombre approximatif total de sites photométriques permanents est actuellement égal à 200 dans le monde plus ou moins 50 sites saisonniers (un exemple de site saisonnier est en Amazonie où les photomètres ne sont pas installés au cours de la saison des pluies). La figure (2.2) présente la répartition globale de l'ensemble des stations disponibles de mesure du réseau AERONET le 1^{er} février 2008.

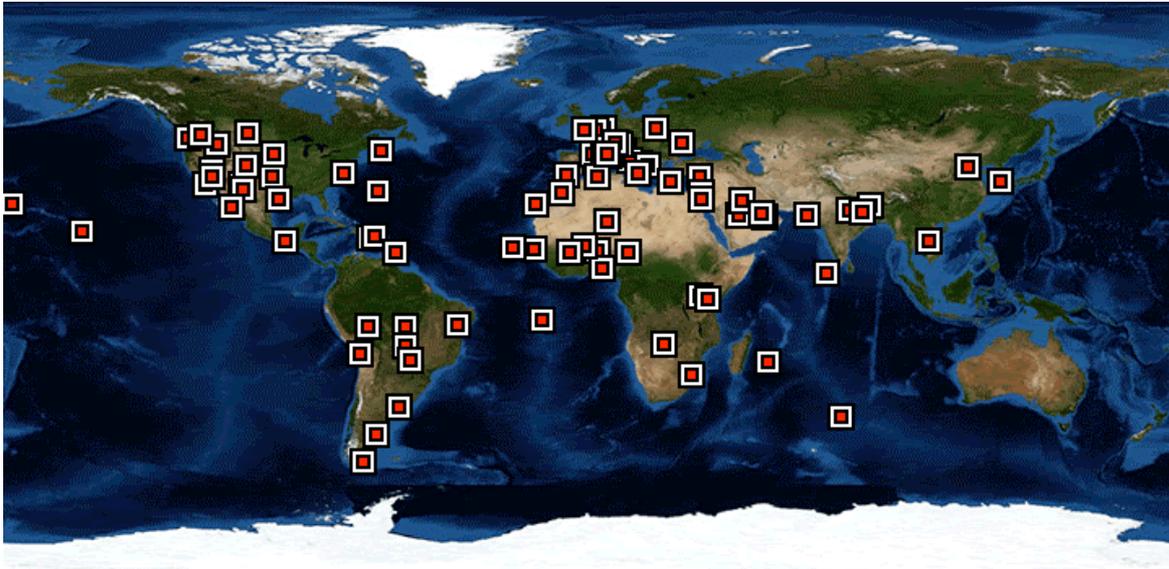


Figure 2.2 : Répartition des stations photométriques du réseau AERONET (« AERosol RObotic NETwork », [Holben *et al.*, 1998]) dans le monde le 1^{er} février 2008.

Le réseau est géré à la fois aux Etats Unis par la NASA (GSFC) et par le Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA) à Lille, qui assure également l'étalonnage, l'installation sur site et la maintenance de certains appareils (notamment en Europe et en Afrique). La composante française originelle du réseau AERONET est le réseau PHOTONS (PHOtométrie pour le Traitement Opérationnel de Normalisation Satellitaire).

Le site Internet www.aeronet.gsfc.nasa.gov permet de visualiser et de télécharger les mesures AERONET (instantanées, journalières ou mensuelles) en choisissant la période et la localité. A titre d'exemple, on dispose, à Lille, de 13 années de mesures directes plus ou moins complètes selon la couverture nuageuse.

Les photomètres automatiques (fabriqués par CIMEL Electronique, Paris) sont dotés d'un panneau solaire et de batteries rechargeables, ce qui leur confère une autonomie complète. Ils sont équipés d'un robot deux axes permettant des mouvements dans les plans zénithaux et azimutaux et peuvent donc viser tout point de la voûte céleste avec une précision de 0.05° et un champ de vue de 1.2°.

Dans le cas du système standard pour les aérosols, la mesure s'effectue dans 4 bandes spectrales de largeur 10 nm à 440, 670, 870 et 1020 nm. Ces bandes spectrales correspondent à des fenêtres atmosphériques où l'absorption du rayonnement solaire par les composés gazeux est faible.

Les données sont transmises via les satellites géostationnaires toutes les heures à un centre de traitement de la NASA (Goddard Space Flight Center). Il existe différents niveaux de traitement de données disponibles : niveau 1 (données brutes), niveau 1.5 (le masque nuage

est automatiquement appliqué alors que l'étalonnage final n'est pas forcément effectué) et niveau 2 (le masque nuage est appliqué ainsi que l'étalonnage final et les données sont inspectées manuellement).

Le photomètre fournit des mesures de visées solaires directes (mesures dites directes) ainsi que des mesures de distribution angulaire de luminance du ciel ($\text{W.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}.\text{mm}^{-1}$) dans l'almucantar (cercle de même élévation solaire comprenant le soleil, c'est-à-dire en conservant l'angle de visée zénithal solaire θ_v constant) et dans le plan principal (mesures utilisées pour les algorithmes d'inversion).

2.3.1. Mesures directes

La seule technique permettant la mesure directe de l'épaisseur optique en aérosols (ou AOT) est la mesure de l'atténuation par l'atmosphère du rayonnement solaire direct. La diminution du flux solaire s'exprime alors par la loi de Bouguer :

$$L(\lambda) = L_0(\lambda) \exp\left(\frac{-\tau(\lambda)}{\mu_0}\right) \quad (2.9)$$

où $L(\lambda)$ est la luminance mesurée après la traversée de l'atmosphère, $L_0(\lambda)$ est la luminance hors atmosphère et μ_0 , le cosinus de l'angle zénithal solaire (on néglige la réfraction). Lorsque l'angle zénithal solaire est important, μ_0 est faible et le flux solaire est d'avantage atténué (trajet plus long dans l'atmosphère).

L'épaisseur optique τ est celle de la masse d'air traversée c'est-à-dire la somme des épaisseurs optiques des différents composants atmosphériques (aérosols et molécules). L'approximation par la loi de Bouguer est valable dans le domaine des ondes courtes du spectre solaire (source de rayonnement autre que solaire négligeable) pour une observation dans un angle solide très faible.

Les mesures directes fournissent donc une AOT à chaque longueur d'onde d'observation avec une précision estimée à 0.01 [Holben *et al.*, 1998]. Cette méthode se caractérise par sa robustesse et une haute cadence d'échantillonnage (1 mesure toutes les 15 minutes).

2.3.2. Mesures inverses

Les différents comportements spectraux, angulaires et/ ou polarisés du signal reçu par l'instrument (sous forme de Luminance en $\text{W.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}.\mu\text{m}^{-1}$) renseignent sur les propriétés optiques des aérosols et donc, leurs propriétés physiques.

La figure (2.3) montre la mesure photométrique de distribution angulaire de luminance du ciel dans l'almucantar (angle de visée zénithal θ_v constant) pour un angle zénithal solaire θ_s donné.

Comme cette méthode de mesure s'effectue par une exploration complète du ciel, elle nécessite d'avantage de temps que la méthode de mesure directe. La prise de mesures nécessite, en effet, 5 minutes environ et s'effectue à masse d'air constante. On compte un maximum de 11 mesures de luminance (ou inverses) par jour.

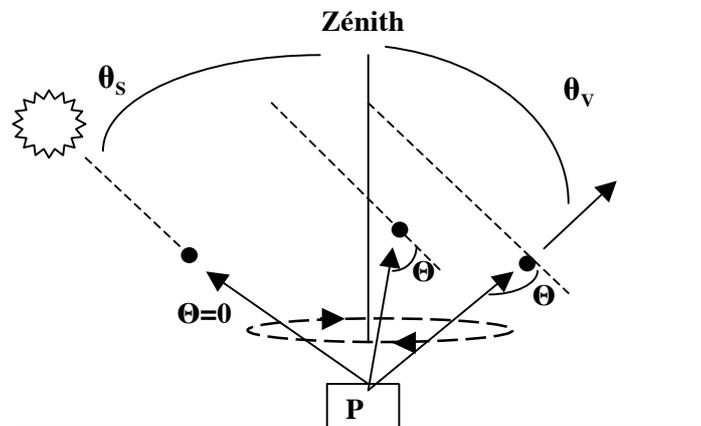


Figure 2.3 : Schématisation du principe de mesures photométriques (Photomètre désigné par « P ») AERONET de distribution angulaire de luminance du ciel dans l'almucantar L (Θ , θ_v , θ_s) avec Θ , l'angle de diffusion de la population de particules observées θ_v , l'angle de visée zénithal toujours constant dans le cas de prises de mesures dans l'almucantar et θ_s , l'angle zénithal solaire (ici fixé).

Les mesures directes solaires (épaisseur optique) ainsi que les données de distribution angulaire de luminance permettent, par inversion, d'obtenir, entre autres paramètres, l'indice de réfraction, la distribution en taille volumique (entre $0.05 \mu\text{m}$ et $15 \mu\text{m}$), la fonction de phase et l'albédo de diffusion simple des aérosols. Ces paramètres optiques puis physiques sont restitués grâce à l'algorithme d'inversion de *Dubovik et King* [2000]. On peut résumer cette inversion comme étant le calcul du meilleur ajustement entre une luminance simulée à l'aide d'un code de transfert radiatif et une luminance mesurée. Une méthode alternative basée sur l'estimation de la diffusion primaire est également exposée à l'aide d'un organigramme dans *Vermeulen et al.* [2000].

Dans le cas d'aérosols non dominés par de grosses particules (aérosols de type urbain/industriel, feux de biomasse,...), nous appliquons par la suite quelques recommandations parmi celles de *Dubovik et al.* [2000] dans le but d'augmenter la précision des mesures inverses :

- Sélectionner des données présentant des AOT à 440 nm supérieures ou égales à 0.4. Il faut, en effet, un minimum de contenu en aérosols pour pouvoir inverser correctement la mesure,
- Lorsque des données de niveau 1.5 (au minimum) ne sont pas disponibles, sélectionner les cas présentant un coefficient d'Angstrom supérieur à 0.6 (afin d'éliminer les données contaminées par les nuages),
- Sélectionner les angles zénithaux solaires supérieurs à 45° (on voit sur la figure 2.3 que plus le soleil est bas, c'est à dire plus l'angle zénithal solaire est grand, plus on augmente la gamme d'angles de diffusion des mesures de luminance du ciel et la fonction de phase correspondante peut notamment être contrainte au mieux),
- Sélectionner les cas où la différence entre luminance simulée et mesurée (« sky radiance fitting error ») est faible (inférieure à 5-7 %),
- Sélectionner les données présentant un nombre d'angles de diffusion supérieur ou égal à

21 (un ciel inhomogène dû à la présence de nuages présente une distribution angulaire de luminance du ciel asymétrique; Les pics de luminances associés à la présence de nuages sont alors éliminés dans l'algorithme d'inversion et le nombre d'angles de diffusion s'en trouve réduit).

Le tableau (2.3) présente la précision obtenue (après application des critères recommandés par Dubovik et al. [2000] cités plus haut) sur les paramètres optiques et microphysiques dérivés des mesures photométriques AERONET.

ω_0	0,03	
Re (η)	0,04	
Im (η)	Absorption faible	30%
	Absorption forte	50%
dV/dlnr	0.1 < r < 7 μ m	15-20 %
	r < 0.1 et r > 7 μ m	25-100 %

Tableau 2.3: Précision sur les mesures AERONET inversées d'albédo de diffusion simple (ω_0), d'indice de réfraction η (partie réelle et imaginaire) et de distribution en volume (dV/dlnr) dans le cas de l'application des critères de précision de Dubovik et al. [2000] pour des aérosols dominés par de fines particules.

2.4. Satellites

2.4.1. Train de satellites A-Train

Première mondiale, l'A-Train (ou « Afternoon train ») est une constellation de six satellites franco-américains (présentés sur la figure 2.4) qui volent en formation à quelques minutes d'intervalle sur une orbite héliosynchrone et passent au-dessus de l'équateur à 13:30 (heure locale). Ce rendez-vous spatial est destiné à mettre en œuvre quasi simultanément toutes les techniques d'observation actuellement disponibles pour scruter l'atmosphère terrestre. Autonomes mais complémentaires les unes des autres, les différentes missions de l'A-Train s'intéressent toutes au climat et à l'étude des interactions entre rayonnement, nuages, aérosols et cycle de l'eau. Les regards croisés de leurs quinze instruments apportent à la communauté scientifique une quantité de données sans précédent pour, in fine, tester et améliorer les modèles de prévision numérique aussi bien du temps que de la pollution et du climat.

En orbite depuis avril 2002, **AQUA** est considéré comme le "leader" de la constellation parce qu'il est le premier à franchir l'équateur chaque jour (à 13h30 heure locale pour les orbites montantes) et chaque nuit (à 1h30 pour les orbites descendantes). Il embarque, entre autres instruments, un radiomètre imageur multispectral (**MODIS**) sur lequel nous reviendrons dans ce chapitre.

CLOUDSAT et **CALIPSO** ont été lancés au même moment (sur Delta 2) en avril 2006. La mission **CLOUDSAT** (menée conjointement par la NASA et l'Agence Spatiale Canadienne) est consacrée aux nuages et embarque un radar à 94 GHz qui fournira la structure verticale des nuages. En parallèle, **CALIPSO** (Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation) repose sur une coopération entre la NASA et le CNES, associé au CNRS (Institut Pierre-Simon-Laplace). A bord de ce mini satellite, se trouvent l'instrument **CALIOP** (Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization), un imageur infrarouge IIR et une caméra grand champs (WFC). **CALIOP** est un LIDAR à rétrodiffusion

(à 1064 nm et 532 nm avec mesure de la polarisation) qui fournit des profils verticaux de l'atmosphère. Les distributions verticales des propriétés des aérosols et des nuages fins apportent une information nouvelle et essentielle pour l'étude des interactions nuages-aérosols-rayonnement.

PARASOL (Polarisation et Anisotropie des Réflectances au sommet de l'Atmosphère, couplées avec un Satellite d'Observation emportant un Lidar) embarque à son bord un radiomètre à grand champ **POLDER** (Polarization and Directionality of the Earth's Reflectances). Développé par le CNES, il fournit des informations depuis mars 2005. POLDER mesure les caractéristiques directionnelles et la polarisation de la lumière réfléchiée par l'ensemble Terre-atmosphère, afin d'améliorer notre connaissance des propriétés radiatives et microphysiques des nuages et des aérosols.

Troisième satellite du Système d'Observation de la Terre de la NASA (après **TERRA** et **AQUA**), **AURA** a pour mission d'étudier la qualité de l'air, l'ozone stratosphérique et l'évolution du climat. En orbite depuis le 15 juillet 2004, ce satellite permet aux scientifiques de suivre les phénomènes de transport de pollution intercontinentaux et de remonter aux sources locales et régionales de ces pollutions atmosphériques.

Finalement, **OCO** (Orbiting Carbon Observatory), petit dernier de cette constellation (lancement prévu en 2008), sera placé devant **AQUA** et se penchera sur la concentration de dioxyde de carbone dans l'atmosphère.

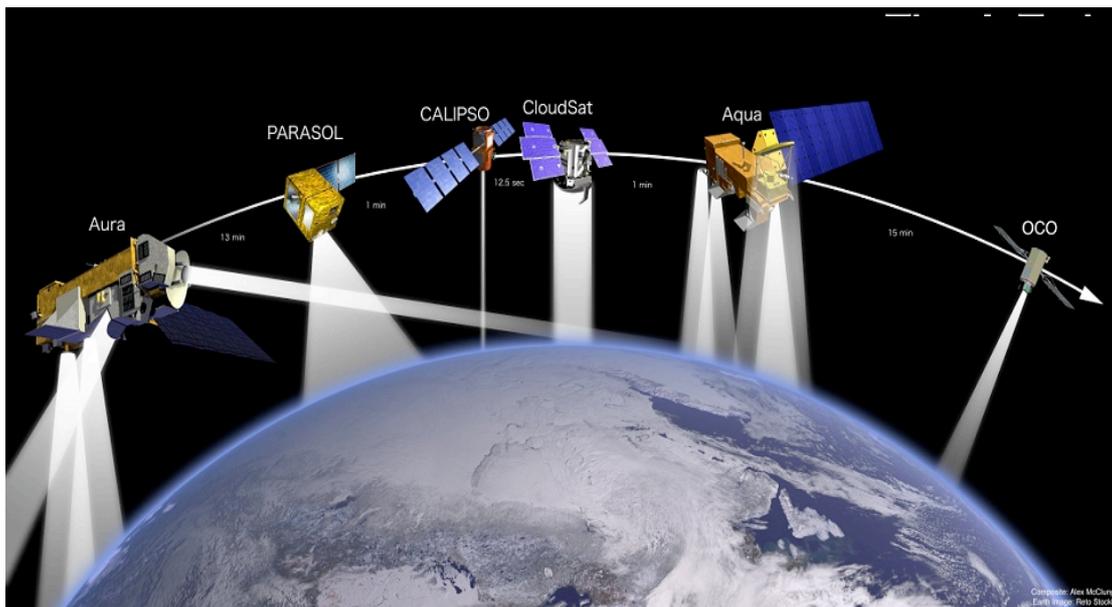


Figure 2.4: Constellation de 6 satellites A-Train (OCO, AQUA, CLOUDSAT/CALIPSO, PARASOL et AURA) en orbite (autour de 700 Km d'altitude) et qui survolent l'équateur à 13h30 (heure locale). Parmi ces satellites, nous utilisons dans cette thèse les mesures dérivées des instruments MODIS (à bord d'AQUA), POLDER (à bord de PARASOL) et CALIOP (à bord de CALIPSO).

Les sections suivantes présentent les instruments spatiaux utilisés dans cette thèse. Parmi les instruments de l'A-Train, nous présentons l'instrument **MODIS** (à bord de la plateforme **AQUA** mais aussi la plateforme **TERRA** survolant l'équateur le matin), **POLDER-3** (à bord de la plate-forme **PARASOL** et sa version antérieure **POLDER-2**), et **CALIOP** (à bord de la plate-forme **CALIPSO**). Après une brève description de l'instrument, il sera

expliqué la méthode de restitution de l'épaisseur optique des aérosols à partir du signal reçu par l'instrument en orbite.

Notons qu'il est possible d'utiliser conjointement les informations de plusieurs instruments de l'A-Train. C'est le cas, par exemple, de l'algorithme d'inversion couplé **PARASOL/MODIS-AQUA** au-dessus des océans élaboré par *Gérard* [2006]. Dans la dernière partie de cette thèse, il s'agit notamment d'utiliser les mesures actives **CALIOP** pour expliquer la relation entre mesures *in situ* au sol et restitutions de l'instrument **PARASOL**, intégrées verticalement.

2.4.2. Description des radiomètres MODIS et POLDER (2-3)

Le radiomètre POLDER a été développé par le Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA) dans sa version aéroportée, puis par le CNES dans sa version spatiale [*Deschamps et al.*, 1994]. POLDER (« POLarization and Directionality of Earth's Reflectances ») a été embarqué à bord d'ADEOS-1 de novembre 1996 à juin 1997 et à bord d'ADEOS-2 d'avril à octobre 2003. Malgré la courte vie des instruments POLDER 1 et 2 (respectivement 8 et 7 mois), il a été acquis un ensemble unique d'observations globales depuis l'espace des caractéristiques spectrales, directionnelles et polarisées du rayonnement solaire réfléchi par le système Terre-atmosphère.

Finalement, le 3^{ème} instrument POLDER, lancé en décembre 2004 à bord de la plateforme PARASOL (qui fait partie du train de satellite « A-Train » présenté plus haut) permet des mesures identiques à celles des 2 premiers capteurs POLDER, mis à part quelques modifications géométriques et spectrales.

MODIS (ou « MODerate resolution Imaging Spectroradiometer ») est, quant à lui, un radiomètre embarqué sur les plates-formes américaines TERRA et AQUA (NASA, [*Salomonson et al.*, 1989]). Lancée en décembre 1999, la plate-forme TERRA survole l'équateur du nord au sud le matin alors que la plate-forme AQUA (lancée en avril 2002) survole l'équateur du sud au nord l'après midi. MODIS à bord du satellite AQUA fournit des données depuis juin 2002.

Le tableau (2.4) résume les caractéristiques des différents instruments MODIS (à bord des plateformes TERRA et AQUA) et POLDER (à bord des plateformes ADEOS-1, ADEOS-2 et PARASOL).

Comme le montre le tableau 2.4, les orbites sont toutes héliosynchrones et situées à la même altitude de 705 Km à l'exception de POLDER-2 et POLDER-1 (environ à 800 Km).

Avec une trace de 2330 Km pour MODIS et entre 1600 et 2400 Km de large au sol pour POLDER, chacune des 5 plates-formes permet d'observer la totalité de la surface terrestre en un ou deux jours (environ 14 orbites par jour pour MODIS, c'est-à-dire 2 passages par jour à nos hautes latitudes pour chaque satellite).

Alors que POLDER présente des mesures aérosols dans un maximum de 5 canaux dont 3 sont polarisés (443, 670 et 865 nm pour POLDER-1 et 2), MODIS permet de se procurer des données sur 36 bandes spectrales (du visible à l'infra-rouge thermique). Cependant, seules 7 parmi ces 36 bandes spectrales sont utilisées pour l'observation des aérosols (466, 553, 644, 855, 1243, 1632, et 2119 nm).

	POLDER-1 sur ADEOS-1	POLDER-2 sur ADEOS-2	POLDER-3 sur PARASOL	MODIS sur TERRA	MODIS sur AQUA
Période active	octobre 1996 - Juin 1997	avril 2003 - octobre 2003	décembre 2004 - aujourd'hui	décembre 1999 - aujourd'hui	avril 2002 - aujourd'hui
Altitude	796 Km	803 Km	705 Km	705 Km	705 Km
Trace au sol	2200 Km	2400 Km	1600 Km	2330 Km	2330 Km
Heure de passage équateur	10:30 LT	10:30 LT	13:30 LT	10:30 LT	13:30 LT
Sens de Passage équateur	Descendant	Descendant	Ascendant	Descendant	Ascendant
Appartient à A-Train	Non	Non	Oui	Non	Oui
Canaux utilisables pour l'observation des aérosols (nm)	3 bandes: 443, 670 et 865	3 bandes: 443, 670 et 865	3 bandes: 490, 670 et 865 nm	7 bandes: 466, 553, 644, 855, 1243, 1632, et 2119	7 bandes: 466, 553, 644, 855, 1243, 1632, et 2119
Bandes spectrales polarisées (nm)	443 , 670 et 865	443 , 670 et 865	490 , 670 et 865	Aucune	Aucune
Résolution spatiale	6 x 7 Km	6 x 7 Km	5 x 6,5 Km	250 x 250 m ou 500 x 500 m	250 x 250 m ou 500 x 500 m

Tableau 2.4 : Période active, altitude, trace au sol, heure et sens de passage en journée au-dessus de l'équateur, canaux (polarisés ou non) utilisables pour l'observation des aérosols et résolution spatiale des radiomètres MODIS (à bord des plate-formes TERRA et AQUA) et POLDER (à bord des plate-formes ADEOS-1, ADEOS-2 et PARASOL).

En plus d'une haute résolution spectrale, MODIS présente une résolution spatiale nettement plus importante (250 m x 250 m à 644 nm et 855 nm et 500 m x 500 m pour les 5 autres canaux) que celle du radiomètre POLDER (6 Km x 7 Km pour POLDER-1 et POLDER-2).

Cependant, si les mesures POLDER et MODIS sont réalisées à l'échelle du pixel, l'inversion des propriétés des aérosols est réalisée à l'échelle du « super pixel » afin d'augmenter le rapport signal sur bruit (réduction des bruits de mesures d'un facteur 3 pour POLDER et d'un facteur 20 pour MODIS). Les produits aérosols sont fournis à une résolution spatiale de :

- 3 x 3 pixels de résolution 6 x 7 Km, c'est-à-dire 21Km x 18Km pour POLDER (1 et 2),
- 3 x 3 pixels de résolution 5 x 6.5 Km, c'est-à-dire 19.5 Km x 15 Km pour POLDER-3,
- 20 x 20 pixels de résolution 500 m x 500 m (les pixels de 250 m x 250 m sont dégradés à 500 m x 500 m), c'est-à-dire une surface de 10Km x 10Km pour MODIS.

L'une des caractéristiques importantes de POLDER est de pouvoir réaliser des mesures directionnelles. En effet, contrairement à MODIS, POLDER utilise une matrice CCD qui permet l'observation de plusieurs pixels à chaque prise de vue. Comme le montre la figure 2.5, lors du défilement du satellite, un pixel déjà observé peut l'être à nouveau sous des conditions géométriques différentes. Ainsi, le champ de vue de POLDER-2 dans la direction parallèle à la fauchée permet d'obtenir jusqu'à 14 directions de visée différentes pour un même pixel.

Dans le cas de PARASOL (contrairement à POLDER-2), la plus grande dimension de la matrice CCD est parallèle à la trace, ce qui induit une fauchée moins large mais, en contrepartie, plus de directions de visée (jusqu'à 16).

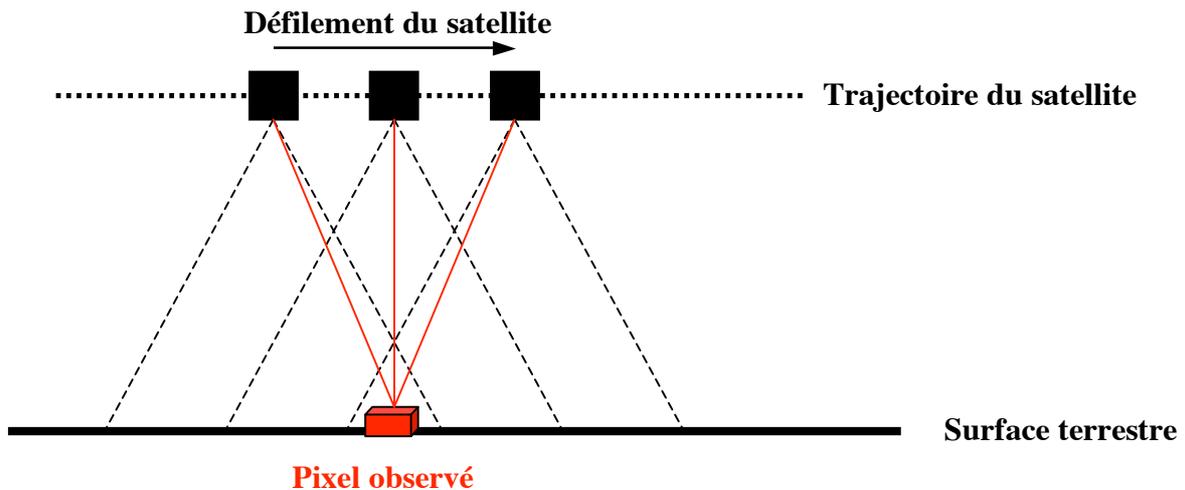


Figure 2.5 : Schématisation du principe de mesures multidirectionnelles du radiomètre POLDER. Lors du défilement du satellite, un pixel peut être observé plusieurs fois sous plusieurs directions.

Les instruments POLDER et MODIS ont donc des capacités d'observation différentes. Alors que l'instrument MODIS est doté d'une haute résolution spectrale et spatiale, l'atout majeur de l'instrument POLDER est d'apporter des informations additionnelles sur la direction et l'état de polarisation du rayonnement.

2.4.3. Algorithmes d'inversion aérosol POLDER (2-3) et MODIS au-dessus des continents

Notons que pour les 2 instruments, l'inversion des mesures satellites n'est possible qu'en ciel totalement clair (absence de nuages). On élimine tous les pixels nuageux grâce à l'application d'un masque nuage (*Bréon and Colzy [1999]* pour POLDER et *Ackerman et al. [1998]* pour MODIS).

Comme il a été vu au chapitre précédent, il faut tout d'abord avoir une estimation de la contribution de la surface afin de restituer la contribution de l'aérosol.

Nous nous intéressons dans cette thèse aux surfaces continentales (plutôt qu'océanique), lieu de production de polluants anthropiques particuliers et d'impact direct sur la santé humaine.

Or, la modélisation de la surface terrestre est plus ardue que celle de la surface océanique. Les terres émergées peuvent être très réfléchissantes (c'est le cas des surfaces désertiques dont la réflectance peut être supérieure à 0.5 alors que la réflectance des surfaces océaniques est souvent inférieure à 0.05). De plus, la réflectance de surfaces continentales peut présenter une grande variation spatiale, temporelle (le couvert végétal varie selon les saisons dans les zones tempérées) et spectrale. Par exemple, la réflectance de surface végétale est élevée dans le proche infrarouge alors qu'elle est faible dans le visible mis à part un pic vers 550 nm, caractéristique de la couleur verte.

Les algorithmes d'inversion ont pour but d'obtenir les propriétés physiques des aérosols en comparant les luminances mesurées par le capteur à celles de tables pré-simulées (« Look Up table » ou LUT). Ces tables de luminances (différentes pour chaque instrument) sont calculées grâce à un code de transfert radiatif, utilisant lui-même des valeurs de coefficient

d'extinction et des matrices de diffusion pré-simulées à l'aide d'un code Mie et de modèles d'aérosols (granulométries et indice de réfraction correspondants).

Mis à part ce trait commun général, il existe, comme nous allons le voir, de nombreuses différences entre l'algorithme de restitution des paramètres des 2 instruments MODIS et POLDER. En effet, l'inversion POLDER est basée sur l'utilisation des mesures directionnelles et polarisées à 670 et 865 nm alors que pour MODIS, elle s'appuie sur les mesures de luminance réalisées dans le visible (466 nm et 644 nm) et le moyen infrarouge (2119 nm). Remarquons, dès maintenant, que d'après des mesures effectuées au sol, il a été établi que la polarisation des aérosols provient principalement des fines particules (avec un rayon inférieur à environ 0.5 μm) [Vermeulen *et al.*, 2000]. Ainsi, les mesures d' AOT restituées par POLDER correspondent à l' AOT des particules du mode fin [Deuzé *et al.* 2001]. En conséquence, POLDER ne peut accéder qu'aux caractéristiques des plus petites particules (les seules à polariser) alors que l'inversion MODIS ne peut pas être effectuée au-dessus de surfaces trop claires (zones désertiques ou semi-désertiques).

Il est important de noter que les algorithmes d'inversion des radiomètres POLDER et MODIS présentés par la suite concernent uniquement les surfaces continentales et sont très différents de ceux élaborés au dessus des surfaces océaniques.

2.4.3.1. Algorithme d'inversion POLDER (2-3)

L'algorithme POLDER de restitution des propriétés des aérosols à partir du signal polarisé au-dessus des terres émergées est décrit dans Deuzé *et al.* [2001].

Les mesures directionnelles polarisées du radiomètre POLDER permettent de s'affranchir partiellement de la contribution de la surface. En effet, la contribution relative de la surface est moins importante en luminance polarisée qu'en luminance totale [Herman *et al.*, 1997b]. De plus, la luminance polarisée ne présente pas de variation spectrale au contraire de la luminance totale [Nadal and Bréon, 1999; Waquet, 2005]. Le signal atmosphérique s'en trouve plus facilement détectable lorsqu'on utilise des mesures polarisées (dans le cas de particules fines polarisantes).

Le signal de luminance polarisée L_p dans une direction particulière (jusqu'à 14 directions de visée pour POLDER-2 et 16 pour POLDER-3) au sommet de l'atmosphère, somme de la contribution polarisée moléculaire L_p^{mol} , de surface L_p^{surf} et des aérosols L_p^{aer} peut s'écrire de la manière suivante :

$$L_p = L_p^{\text{mol}} + L_p^{\text{surf}} \exp(-m_a(c_{\text{aer}}\tau_{\text{aer}} + c_{\text{mol}}\tau_{\text{mol}})) + L_p^{\text{aer}} \exp(-m_a c_{\text{mol}}\tau_{\text{mol}}) \quad (2.10)$$

où m_a est la masse d'air (dépendante de l'angle de visée zénithal et l'angle solaire), τ_{mol} et τ_{aer} respectivement les épaisseurs optiques d'extinction des molécules et de aérosols. Les facteurs exponentiels correspondent à l'atténuation du signal de surface à travers l'atmosphère (molécules et aérosols) et l'atténuation du signal aérosol à travers la couche moléculaire. Les facteurs c_{aer} et c_{mol} sont de simples constantes. Notons qu'actuellement, une nouvelle version de l'algorithme d'inversion du radiomètre POLDER prend en compte les interactions entre molécules et aérosols.

Le signal moléculaire L_p^{mol} est facilement modélisable une fois l'épaisseur optique moléculaire connue (dépendante du profil de pression et de température atmosphérique).

La contribution de la surface L_p^{surf} est modélisée par une fonction semi empirique de distribution bidirectionnelle polarisée dépendante de la géométrie de visée, du type de surface ainsi que de l'indice de végétation par différence normalisée (« Normalized Difference Vegetation Index » ou NDVI) [Nadal and Bréon, 1999].

En ce qui concerne la contribution des aérosols, on utilise 10 modèles de petits aérosols sphériques (la polarisation des grosses particules est négligeable) définis par une loi log-normale monomodale. Ces granulométries présentent des rayons effectifs de 0.05 à 0.15 μm par pas de 0.01 μm et un écart type de 0.403 pour un indice de réfraction fixe de 1.47 - 0.01 i (moyenne des indices de réfraction d'aérosols de type « urbain/industriel » et « biomass burning » d'après Dubovik et al. [2002]). Grâce à ces modèles d'aérosols, il est possible d'élaborer les tables de luminances pré-simulées (ou LUT, présentées plus haut). L'inversion POLDER-2 consiste alors à chercher le modèle d'aérosol qui minimise l'écart ε entre luminances simulées $Lp_{i\lambda}^{sim}$ et mesurées $Lp_{i\lambda}^{mes}$ dans les $i=1$ à N directions de visée et les 2 longueurs d'onde λ tel que:

$$\varepsilon = \sqrt{\frac{1}{2N} \sum_{\lambda=1}^2 \sum_{i=1}^N (Lp_{i\lambda}^{mes} - Lp_{i\lambda}^{sim})^2} \quad (2.11)$$

Une fois identifié le modèle d'aérosol qui minimise l'écart ε , on peut en déduire une épaisseur optique, produit de l'inversion aérosol.

Parmi les produits non directionnels de niveau 2 (paramètres physiques après inversion) concernant les aérosols continentaux (aussi appelés produits « L2TLGC ») et calculés à partir des produits de niveau 1 (mesures de luminances polarisées) pour chaque « SuperPixel » POLDER (21Km x 18Km), nous avons principalement utilisé dans cette thèse:

- Les coordonnées géographiques du pixel considéré (référéncé par son centre), c'est-à-dire la latitude et la longitude et le temps d'acquisition de la mesure,
- L'AOT à 865 nm correspondant aux particules polarisantes (en majorité anthropiques et dans le mode d'accumulation),
- Le Coefficient d'Angström (entre 865 et 670 nm) du modèle d'aérosol et
- Les Indices de qualité (de 0 à 100 pour une mauvaise à bonne qualité respectivement) sur les conditions de géométrie de visée (IQV) et sur la minimisation de l'écart ε décrit plus haut (IQP, aussi appelé indice de qualité sur l'inversion des réflectances polarisées).

Ces derniers paramètres sont définis de la façon suivante :

$$IQP = 1 - [Moy_{mes}^{sim} / (Moy_{atm}^{mol} + 0.002)] \quad (2.12)$$

où Moy_{mes}^{sim} est la moyenne entre le signal mesuré et simulé et Moy_{atm}^{mol} est la moyenne de la différence entre la composante atmosphérique et moléculaire interpolée.

$$IQV = 0.4 \times [(\Delta\Theta/100) + ((75 - \theta_s)/75) + ((N_{\theta_v} \times N_{\lambda}) / (N_{\theta_v}^{Max} \times \lambda))] \quad (2.13)$$

où $\Delta\Theta$ est la différence entre les angles de diffusion maximum et minimum, θ_s est l'angle zénithal solaire, N_{θ_v} est le nombre de direction de visées valides, N_{λ} est le nombre de

longueurs d'onde, $N_{\theta_v}^{Max}$ est le nombre de direction de visées maximal et λ , la longueur d'onde considérée.

La figure (2.6) montre un exemple de carte globale d'épaisseur optique des aérosols du mode fin dérivées de POLDER-3 à 550 nm pour le 30 août 2005. Rappelons que la carte d'AOT de la figure (2.6) est celle des particules fines uniquement puisque, celles-ci sont seules capables de polariser le rayonnement solaire incident [Vermeulen *et al.*, 2000]. Bien que les 2 types de mesures soient présentés sur la même figure (2.6), il est important de souligner que les algorithmes de restitution des paramètres optiques POLDER-3 sont différents au-dessus des terres et des océans.

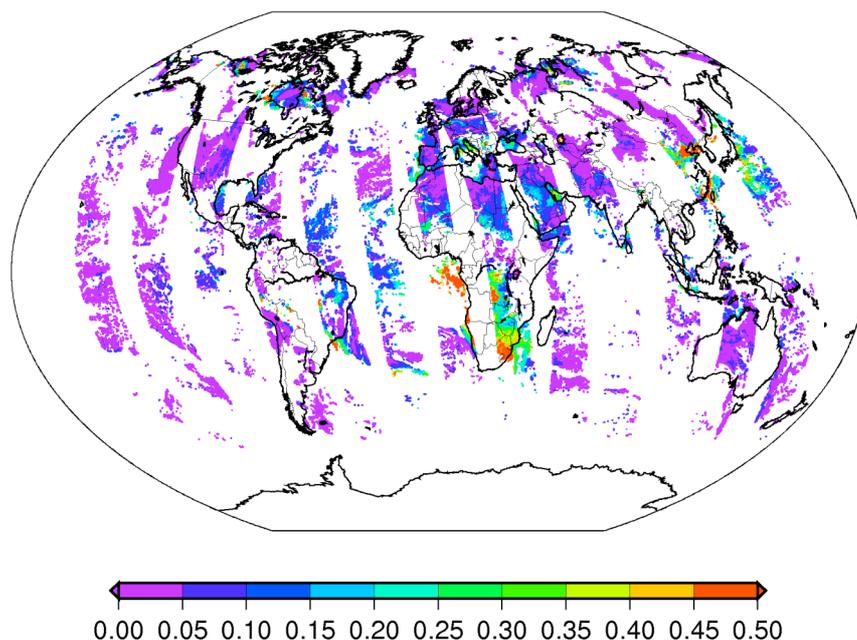


Figure 2.6 : Carte globale d'AOT POLDER-3 du mode fin à 550 nm (dérivée du produit AOT POLDER à 865 nm et du coefficient d'Angström entre 865 et 670 nm) le 30 août 2005.

2.4.3.2. Algorithme d'inversion MODIS

Contrairement au radiomètre POLDER, le radiomètre MODIS ne mesure que des luminances totales dans une seule direction. Par conséquent, l'algorithme MODIS à la base de la télédétection des aérosols troposphériques au-dessus de surfaces terrestres [Kaufman and Tanré, 1998] est très différent de celui de POLDER.

L'algorithme d'inversion des aérosols MODIS au-dessus des continents (détaillé dans Remer *et al.* [2005]) est basé sur les mesures de luminances spectrales à 466, 644 et 2119 nm [Kaufman *et al.*, 1997-a]. Deux hypothèses sont utilisées pour s'affranchir de la contribution de la surface :

- Le signal atmosphérique (molécules et aérosols) est supposé négligeable à 2119 nm et
- On suppose qu'il existe une relation linéaire entre les réflectances de surface des 3 canaux (466, 644 et 2119 nm) d'après Kaufman *et al.* [1997-b].

Ainsi, la réflectance mesurée à 2119 nm correspond directement à celle de la surface. Voici les quelques étapes simplifiées de l'algorithme à la base de la restitution de l'AOT par MODIS :

a) On utilise les propriétés de faible opacité de la plupart des aérosols dans le moyen infrarouge pour mesurer la réflectance de surface à 2119 nm. On suppose donc

$$\rho_{surface}^{2119} = \rho_{mesurée}^{2119}$$

b) La réflectance de surface est linéairement dérivée aux 2 autres longueurs d'onde de la façon suivante :

$$\left. \begin{aligned} \rho_{surface}^{644} &= \frac{\rho_{surface}^{2119}}{2} \\ \rho_{surface}^{466} &= \frac{\rho_{surface}^{2119}}{4} \end{aligned} \right\} \quad (2.14)$$

c) On détermine, grâce à la réflectance de surface mesurée à 2119 nm $\rho_{surface}^{2119}$, la présence de surfaces « sombres » (comme la végétation) pour les canaux à 466 nm et à 644 nm. La contribution relative du signal atmosphérique (molécules et aérosols) au signal total est en effet plus forte au-dessus de surfaces « sombres » et peut être ainsi restitué de manière plus précise.

d) L'AOT est dérivé au-dessus de ces mêmes pixels sombres à 466 et 644 nm (indépendamment) à l'aide d'un modèle d'aérosols « continental » [Lenoble et Brogniez, 1984].

e) On emploie ensuite la méthode des « path radiance ». Pour chaque longueur d'onde on calcule la « path radiance » telle que :

$$\rho_{path}^{\lambda} = \omega^{\lambda} \tau^{\lambda} p^{\lambda} \quad (2.15)$$

où $\lambda = 466$ ou 644 nm, ω^{λ} et p^{λ} sont respectivement l'albédo de diffusion simple et la fonction de phase du modèle « continental » pour la géométrie d'observation MODIS et τ^{λ} est l'épaisseur optique dérivée du modèle continental (théorie de Mie).

Les particules observées pourront être classées selon la variation spectrale des « path radiance » et le rapport $R = \rho_{path}^{644} / \rho_{path}^{466}$ dans les 3 grandes catégories suivantes [Remer et al., 2005] : « Non dust » (aérosols de feux de biomasse et urbains/industriels), « Dust » (poussières désertiques) ou « Mixed » (mélange des 2 premiers types).

f) Les mesures des canaux à 466 et 644 nm sont à nouveau inversées mais, cette fois ci, à l'aide des modèles d'aérosols identifiés plus haut.

La solution de l'inversion est donc le modèle (ou le mélange de modèles) déterminé par la méthode de « path radiance » ainsi que l'épaisseur optique totale en aérosol obtenue à 466 nm et 644 nm et dérivée à 550 nm grâce au coefficient d'Angstrom entre 466 et 644 nm.

Il est important de noter quelques modifications récentes à cet algorithme MODIS lors du passage de la collection 4 à la collection 5 [Remer et al., 2005; Levy et al., 2007]. Un des changements les plus importants réside dans l'hypothèse de non-opacité du signal

atmosphérique à 2.12 μm . On suppose dorénavant que le canal 2.12 μm contient non seulement des informations sur la réflectance de surface mais aussi sur le mode grossier des particules atmosphériques. D'autres changements ont affecté les relations entre réflectance de surface mesurée à 2119 nm et dérivées aux autres canaux ainsi que les tables de luminances pré-simulées (ou LUT) à la base de l'inversion des mesures.

Dans cette thèse, nous avons utilisé la collection 4 de paramètres optiques MODIS puis, par la suite, la collection 5.

Parmi les produits de niveau 2 (paramètres physiques après inversion, « MOD04_L2 » pour TERRA et « MYD04_L2 » pour AQUA) concernant les aérosols au-dessus des continents et calculés à partir des produits de niveau 1 (mesures de luminances) pour chaque « SuperPixel » MODIS (10Km x 10Km), nous avons principalement utilisé dans cette thèse:

- Les coordonnées géographiques du pixel considéré (référéncé par son centre), c'est-à-dire la latitude et la longitude ainsi que le temps d'acquisition de la mesure,
- L'AOT à 470, 550 et 660 nm correspondant à la totalité de la distribution en taille des particules (« Corrected_Optical_Depth_Land », produit spectral recommandé par *Remer et al.* [2005] au-dessus des continents),
- Le Coefficient d'Angstrom calculé entre 470 et 670 nm (« Angstrom_Exponent_Land »),
- L'Angle de diffusion (Θ , voir figure 1.8 du chapitre précédent) entre 0 et 180 ° (« Scattering_Angle »),
- La réflectance moyenne au-dessus des continents à 470, 660, 870, 2130 et 3750 nm (« Mean_Reflectance_Land »),
- L'Indice de qualité de l'inversion au-dessus des continents (« Quality_Assurance_Land »),
- La fraction nuageuse au-dessus des continents (« Cloud_Fraction_Land ») et
- Le type d'aérosol au-dessus des continents (« Aersol_Type_Land », de 0 à 4 correspondant, par ordre croissant, aux type mixte, poussières désertiques, sulfates, feux de biomasse et feux de biomasse très absorbants),
- L'AOT de la fraction fine des particules à 550 nm correspondant à la multiplication du produit d'AOT de la totalité de la distribution en taille des particules (« Corrected_Optical_Depth_Land ») par le produit nommé « Optical_Depth_Ratio_Small_Land_And_Ocean ».

La figure (2.7) présente la carte d'AOT MODIS à 550 nm au-dessus du globe le 30 août 2005.

En comparaison avec la carte précédente d'AOT POLDER (figure 2.6), MODIS observe la totalité des tailles de particules alors que POLDER ne présente que l'AOT du mode fin. Rappelons que les algorithmes de restitution des paramètres optiques MODIS sont différents au-dessus des terres et des océans bien que les 2 types de mesures soient présentées sur la même figure (2.7).

Au-dessus des continents et pour le même jour (30 août 2005), on observe qualitativement d'avantage de données d'AOT MODIS que d'AOT POLDER reflétant une plus haute résolution spatiale (10 x 10Km pour le produit aérosol MODIS contre 19.5 x 15 Km pour POLDER-3) et par conséquent, un masque nuage moins restrictif.

De plus, les cartes d'AOT dérivées des 2 radiomètres semblent se compléter en termes d'information sur la taille des aérosols. En effet, on observe au-dessus de l'océan Atlantique au large de l'Afrique de l'Ouest, de forts contenus en aérosols d'après la carte d'AOT MODIS

(de l'ordre de 0.5 à 550 nm sur la figure 2.7) alors qu'ils n'apparaissent pas sur la carte d'AOT POLDER (figure 2.6, aucune mesure au-dessus de la même zone géographique) désignant des aérosols probablement de taille importante de type poussières sahariennes. Par contre, au-dessus de régions très urbanisées comme aux alentours de la ville de Pékin en Asie, les forts contenus en aérosols présents sur la carte POLDER (de l'ordre de 0.5 à 550 nm sur la figure 2.6) semblent désigner des particules fines de type pollution industrielle.

On note, de plus, l'absence d'inversion des luminances totales par le radiomètre MODIS au-dessus de surfaces très brillantes comme le désert saharien alors que l'inversion est effectuée au-dessus de la même zone géographique par le radiomètre POLDER.

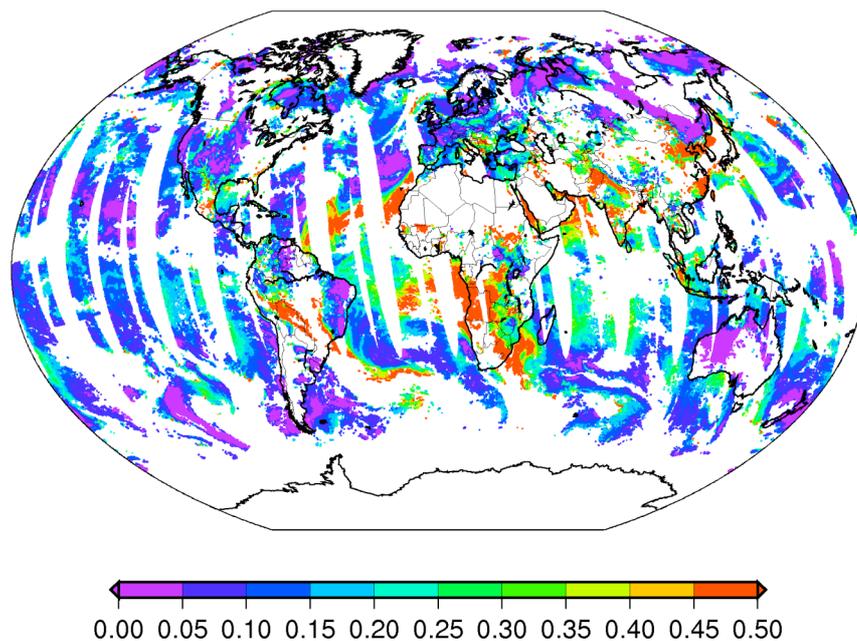


Figure 2.7 : Carte globale d'AOT MODIS à 550 nm (produit « *Optical_Depth_Land_And_Ocean_Mean* ») le 30 août 2005.

2.4.4. LIDAR CALIOP

LITE («Lidar In-space Technology Experiment») a été le premier LIDAR atmosphérique mis en orbite au-dessus de la Terre et embarqué sur la navette Discovery en 1994 [Winker et al., 1996]. Les 10 jours de données correspondantes (mesures à 3 longueurs d'onde : 1064, 532 et 356 nm) ont prouvé l'utilité de tels instruments de télédétection active spatiale pour le sondage atmosphérique.

La mission LITE est suivie de plusieurs lancements de LIDAR spatiaux dédiés aux mesures d'altimétrie au-dessus de la Terre (Shuttle Laser Altimeter », SLA en 1996 et 1997 ou « Geoscience Laser Altimeter System », GLAS en 2003), de la planète Mars (« Mars Orbital Laser Altimeter », MOLA) ou Mercure (Mercury Laser Altimeter », MLA).

Parmi ces derniers, GLAS [Schutz et al., 2005], dont la mission initiale est l'évaluation du bilan massique des glaces polaires, est le seul instrument à fournir des mesures utiles à la caractérisation de l'atmosphère (aérosols et nuages) [Spinhirne et al., 2005] grâce à ses canaux à 1064 nm mais aussi à 532 nm.

Ces différentes missions (spécialement GLAS et LITE) ont ouvert la voie à l'instrument CALIOP (« Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization », lancé en avril 2006) à bord du satellite franco-américain CALIPSO (compris dans « l'A-Train », voir section 2.4.1).

CALIOP est un lidar à 2 longueurs d'onde (532 nm, 1064 nm et sensible à la polarisation à 532 nm) dédié à l'observation des aérosols et des nuages depuis l'espace.

Les caractéristiques techniques du LIDAR CALIOP sont présentées dans le tableau (2.5). On y voit notamment qu'avec un angle de vue du télescope (à 705 Km d'altitude) de 130 μ radians et une émission pulsée de 20 nanosecondes toutes les \sim 50 millisecondes (fréquence de 20.16 Hz), CALIOP produit une empreinte au sol de 90 m de diamètre tous les 333m le long de sa trace au sol.

Type de LIDAR	Nd-YAG, pompage par diode, Q-switched, doubleur de fréquence
Longueurs d'onde	532 et 1064 nm
Temps d'impulsion	20 nsec
Fréquence	20.27 Hz
Diamètre du télescope	1 m
Angle de vue du télescope	130 μ rad
Résolution horizontale	333m
Résolution verticale	30m du sol à 8 Km d'altitude puis 60 Km de 8 à 20 Km d'altitude

Tableau 2.5 : Caractéristiques techniques du LIDAR CALIOP embarqué sur le satellite CALIPSO.

On peut observer sur la figure (2.8) ci-après la faible couverture spatiale du LIDAR CALIOP (de jour en rouge et de nuit en bleu). L'orbite est contrôlée afin de repasser sur la même trace au sol (à \pm 10 Km) tous les 16 jours. A droite de la figure 2.8, on présente la trace journalière CALIOP la plus proche de la ville de Lille le 13 juin 2006.

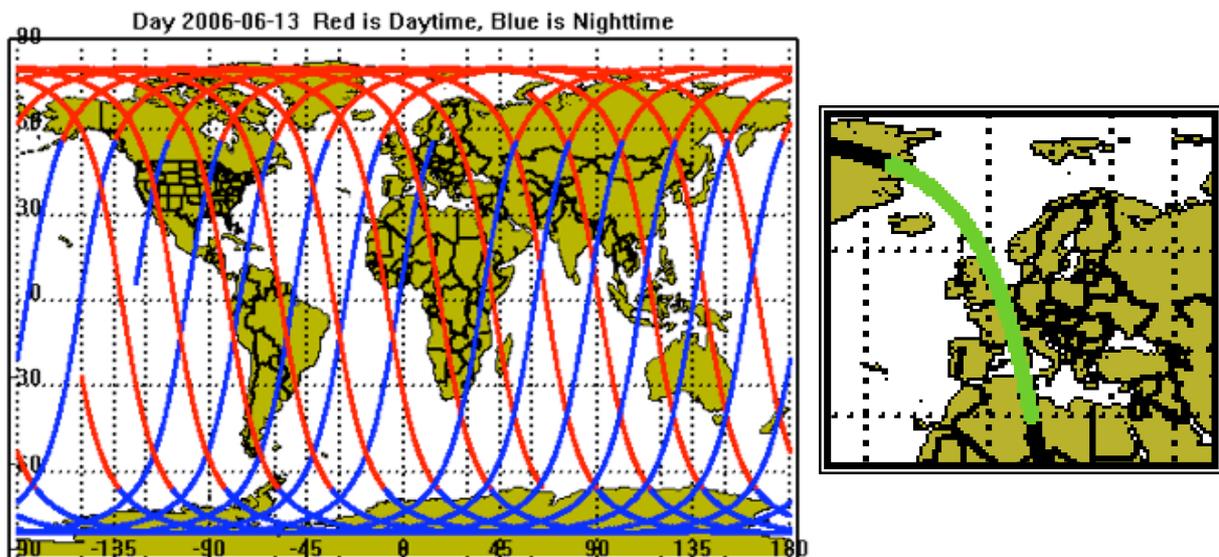


Figure 2.8 : Couverture spatiale du LIDAR CALIOP (de jour en rouge et de nuit en bleu) le 13 juin 2006 (d'après le site Internet de la NASA Langley) à gauche et à droite, zoom sur l'orbite journalière CALIOP dont la trace au sol est la plus proche de la ville de Lille le 13 juin 2006.

Le rayonnement émis à 532 et 1064 nm par le faisceau laser est diffusé par l'atmosphère (molécules et particules) puis recueilli par le télescope pour être transformé en signal électrique (puis converti en signal numérique).

Si on suppose le LIDAR à l'altitude $z=0$ et la couche diffusante à l'altitude z , la mesure du temps de vol t entre l'émission et la détection permet le calcul de la distance z entre le LIDAR et la zone diffusante tel que : $2z = c \times t$ où c est la vitesse de la lumière.

Le signal LIDAR d'une couche diffusante à l'altitude z , exprimé en puissance optique $P(z)$, est fonction d'une constante instrumentale K , du coefficient de rétrodiffusion $\beta(z)$ et de la transmission aller-retour $T(0,z)^2$ entre le lidar (à l'altitude $z=0$) et la zone diffusante de la manière suivante :

$$P(z) = \frac{K}{z^2} \beta(z) T(0,z)^2 \quad (2.16)$$

où la transmission atmosphérique, $T(0,z)$, entre le LIDAR et la zone diffusante située à l'altitude z est fonction du profil de coefficient d'extinction $\sigma_{ext}(z)$:

$$T(0,z) = \exp\left(-\int_0^z \sigma_{ext}(z') dz'\right) \quad (2.17)$$

Rappelons, d'après l'équation (1.9), que l'épaisseur optique d'extinction $\tau_{ext}(z)$ entre 2 couches atmosphériques est l'intégrale du coefficient d'extinction $\sigma_{ext}(z)$ entre ces 2 mêmes couches.

Le signal LIDAR est finalement déterminé par la constante d'étalonnage K et les profils de rétrodiffusion $\beta(z)$ et d'épaisseur optique d'extinction $\tau_{ext}(z)$ de l'atmosphère (aérosols et molécules).

La détermination de la constante instrumentale K de l'équation (2.16) est possible à une altitude z_0 où la contribution des particules au signal du LIDAR est négligeable et la contribution moléculaire connue. En effet, les profils d'extinction $\tau_{ext}(z)$ et de rétrodiffusion $\beta(z)$ moléculaires peuvent être calculés à une certaine longueur d'onde λ au moyen des informations de pression et de température (connues par capteurs in situ ou radiosondage) et à partir d'équations dérivées de la théorie de Rayleigh et de la loi des gaz parfaits [*Measures*, 1984].

Dans le cas de CALIOP, z_0 se situe entre 30 et 34 Km. A cette altitude se trouvent très peu d'aérosols, spécialement aux moyennes et hautes latitudes. Une fois la constante K déterminée pour les 3 canaux CALIOP, le signal est alors « calibré ».

Le produit CALIOP de niveau 1b [*CALIPSO Data Product Catalog*, 2006] est constitué de profils lidar étalonnés, à savoir les profils verticaux des coefficients de rétrodiffusion atténués et corrigés de la distance de mesure.

Le profil vertical du coefficient de rétrodiffusion atténué $\beta^{att}(z)$ (ou « Attenuated Backscatter ») s'écarte de celui du coefficient de rétrodiffusion $\beta(z)$ par l'effet de la transmission aller-retour $T(z_0,z)$ entre l'altitude z_0 (où la contribution des particules est négligeable) et l'altitude z de la couche atmosphérique diffusante. Il s'écrit de la façon suivante :

$$\beta^{att}(z) = \frac{P(z) \times z^2}{P(z_0) \times z_0^2} \times \beta^m(z_0)$$

$$\Rightarrow \beta^{att}(z) = \beta(z) \times T(z_0, z)^2 \quad (2.18)$$

où $\beta^m(z_0)$ est le coefficient de rétrodiffusion moléculaire à l'altitude z_0 .

Le coefficient de rétrodiffusion atténué peut être obtenu directement à partir des signaux LIDAR et dépend fondamentalement de la distribution verticale des diffuseurs (aérosols, nuages ou molécules).

Les produits de niveau 1b CALIOP, issus des mesures de profils de coefficient de rétrodiffusion total à 1064 nm $\beta_{1064,Total}(z)$ ainsi qu'orthogonal et parallèle à l'axe de polarisation de l'émission laser à 532 nm (respectivement, $\beta_{532,\perp}(z)$ et $\beta_{532,\parallel}(z)$), sont listés ci-dessous:

- Le profil de coefficient de rétrodiffusion total atténué à 532 nm $\beta_{532,Total}^{att}(z)$,
- Le profil de coefficient de rétrodiffusion perpendiculaire (c'est-à-dire orthogonal à l'axe de polarisation de l'émission laser, autrement dit, axe de dépolarisation) atténué à 532 nm $\beta_{532,\perp}^{att}(z)$ et
- Le profil de coefficient de rétrodiffusion total atténué à 1064 nm $\beta_{1064,Total}^{att}(z)$

D'après la relation (2.16), ces produits sont définis par les relations suivantes :

$$\left. \begin{aligned} \beta_{532,Total}^{att} &= (\beta_{532,\parallel} + \beta_{532,\perp}) T_{532}^2(z) \\ \beta_{532,\perp}^{att} &= \beta_{532,\perp} T_{532}^2(z) \\ \beta_{1064,Total}^{att} &= \beta_{1064,Total} T_{1064}^2(z) \end{aligned} \right\} \quad (2.19)$$

Notons que la comparaison des profils de rétrodiffusion atténuée à 2 longueurs d'onde renseigne sur la taille des particules. En effet, une variation spectrale négligeable (entre 532 et 1064 nm) du profil de coefficient de rétrodiffusion atténué, c'est-à-dire des valeurs de $\beta_{532,Total}^{att}(z)$ similaires à celles de $\beta_{1064,Total}^{att}(z)$, désigne des particules de taille importante (c'est-à-dire des cirrus dans le cas de nuages ou des poussières désertiques dans le cas d'aérosols). Par contre, une grande variation spectrale du coefficient de rétrodiffusion atténué total caractérise des particules d'aérosols plus fines (de type feux de végétation ou pollution urbaine/ industrielle).

De plus, la mesure de dépolarisation du signal rétrodiffusé par les composants atmosphériques, déterminée par la valeur du profil $\beta_{532,\perp}^{att}(z)$, permet l'approximation de la forme des particules (aérosols ou nuages) en types sphériques ou non sphériques [Sassen, 1991]. En effet, lorsqu'une scène atmosphérique présente une dépolarisation nulle ($\beta_{532,\perp}^{att}(z)=0$), il pourrait s'agir de particules de forme sphérique telles que des gouttes d'eau nuageuses (si les particules sont de taille importante). Par contre, lorsque la dépolarisation est importante, la forme des particules a de fortes chances d'être asphérique telles que celles composant les cirrus ou les poussières désertiques.

Par ailleurs, les produits de niveau 2a correspondent à la structure des scènes atmosphériques observées. L'algorithme de restitution ainsi que les différents produits de niveau 2a sont décrits dans Vaughan et al. [2004]. Grâce à ces produits, il est notamment

possible de distinguer une couche atmosphérique diffusante comme étant composée d'aérosols et une information est fournie sur le type de ces derniers (parmi 8 catégories possibles).

Les produits de niveau 2b (pas encore disponible à ce jour) sont, dans le cas de la présence d'aérosols, l'épaisseur optique et les profils de rétrodiffusion et d'extinction.

Une description synthétique est disponible sur la page CALIPSO du site Internet de la NASA Langley (<http://www-calipso.larc.nasa.gov/products/>) ainsi que sur celle du pôle ICARE (<http://www-icare.univ-lille1.fr/calipso/products.php>).

A titre d'exemple, les 3 produits aérosols dérivés du LIDAR CALIOP utilisés dans cette thèse (les profils $\beta_{532,Total}^{att}(z)$, $\beta_{532,\perp}^{att}(z)$ et $\beta_{1064,Total}^{att}(z)$) sont présentés sur la figure (2.9) pour la journée du 13 Juin 2006. La trace au sol correspondante à ces données (latitude et longitude en abscisse des 3 graphes de la figure 2.9) est présentée à droite de la figure (2.8).

Les fortes valeurs de $\beta_{532,Total}^{att}(z)$ ainsi que de $\beta_{1064,Total}^{att}(z)$ entre 10 et 12Km au-dessus du Nord de la France (rectangles noirs sur la figure 2.9, profil haut et bas) pourraient s'expliquer par la présence d'une couche diffusante importante, à priori nuageuse. De plus, un fort signal $\beta_{532,\perp}^{att}(z)$ sur la même zone (rectangle noir sur profil du milieu de la figure 2.9) montre une dépolarisation toute particulière, probablement due à la présence de nuages de glace de type cirrus.

Par contre, au-dessus de la même région mais entre 0 et 2 Km (cercles noirs sur la figure 2.9), les aérosols semblent composés de particules fines secondaires de type anthropique puisque présentant des valeurs non négligeables de $\beta_{532,Total}^{att}(z)$ (profil du haut de la figure 2.9) et aucun signal concernant les autres profils $\beta_{532,\perp}^{att}(z)$ et $\beta_{1064,Total}^{att}(z)$ (profils du milieu et du bas de la figure 2.9).

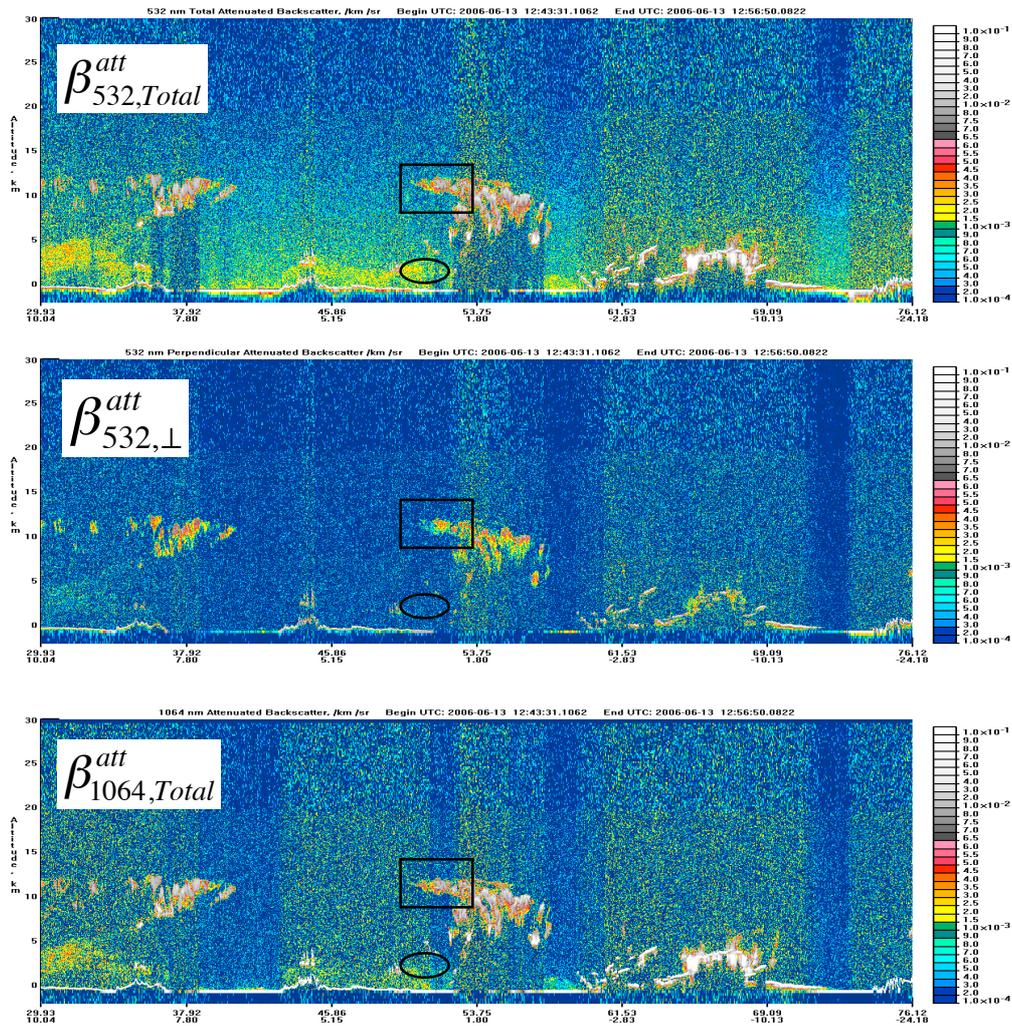


Figure 2.9 : De haut en bas, profils de coefficient de rétrodiffusion atténué total à 532 nm $\beta_{532,Total}^{att}(z)$, perpendiculaire à l'axe de polarisation de l'émission laser à 532 nm, $\beta_{532,\perp}^{att}(z)$ et total à 1064 nm, $\beta_{1064,Total}^{att}(z)$ le 13 juin 2006. En abscisse, on observe le trajet de la trace au sol de la figure 2.8 (droite). Lille se trouve très proche du carré noir.

2.5. Conclusions et Stratégie

Le tableau (2.6) regroupe les différents instruments utilisés dans cette thèse et leurs caractéristiques (mesure principale, résolution spatiale, cadence d'échantillonnage et traitement de co-localisation spatiale avec un autre instrument au sol).

Instruments	Mesure principale utilisée	Resolution au sol	Cadence d'échantillonnage	Colocalisation spatiale
TEOM	PM _{2.5}	Ponctuelle	Plusieurs mesures par min	Aucun traitement
Photomètre	AOT, propriétés optiques et microphysiques	Ponctuelle	Une mesure directe toutes les 15 min en ciel clair	Aucun traitement
Radiomètre MODIS (TERRA/AQUA)	AOT	10 x 10 Km	Une mesure par jour en ciel clair	Moyenne dans carré de x Km de côté centré sur la station de mesure au sol
Radiomètre POLDER (2 ou 3)	AOT	21 x 18 Km (POLDER-2) 19.5 x 15 Km (POLDER-3)	Une mesure par jour en ciel clair	Moyenne dans carré de x Km de côté centré sur la station de mesure au sol
LIDAR CALIOP	Profil de coefficient de rétrodiffusion	90 m de diamètre tous les 333m	Une mesure +/- proche tous les 16 jours	Moyenne entre 2 latitudes de distance x Km

Tableau 2.6 : Récapitulatif des différents instruments utilisés dans cette thèse et principales mesures correspondantes ainsi que résolution spatiale et temporelle et co-localisation spatiale entre l'instrument considéré et un autre instrument au sol.

L'objectif principal de cette thèse est d'évaluer la capacité des radiomètres satellitaires (POLDER et MODIS) à quantifier la pollution en aérosols en termes de PM_{2.5} au sol, utilisé comme standard de la qualité de l'air selon l'E.P.A.

On observe, d'après le tableau (2.6), qu'il est techniquement plus aisé de comparer, dans un premier temps, les mesures de PM_{2.5} et d'AOT photométriques au sol. Cette première étape permet d'étudier la relation entre ces deux types de mesures à caractère très locales et à haute cadence d'échantillonnage tout en minimisant les erreurs sur les mesures d'AOT. On s'affranchit, en effet, de toute erreur d'inversion lors des mesures directes solaires et la mesure d'AOT photométrique inverse n'est pas influencée, comme celle des radiomètres satellitaires, par une mauvaise modélisation éventuelle de la surface. Nous ne pouvons pas découpler, à ce stade, l'effet d'un changement de propriétés optiques et microphysiques des aérosols et l'effet d'une variation de la répartition verticale des particules sur la relation entre AOT photométrique et PM_{2.5} au sol. Cependant, les mesures inverses photométriques du réseau AERONET/PHOTONS nous ont permis, dans un premier temps d'étudier la caractérisation et l'étude d'un changement éventuel d'une saison à l'autre des propriétés optiques et microphysiques des aérosols au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest grâce aux.

La suite de cette thèse porte sur la comparaison directe entre mesures d'AOT satellitaires et de PM_{2.5} au sol. En parallèle d'une validation régionale des produits satellitaires au cours de notre période et au-dessus de notre zone d'étude, il est nécessaire, d'après le tableau (2.6), d'étudier la co-localisation temporelle et spatiale des mesures satellitaires et de PM_{2.5}. En effet, la faible résolution des radiomètres satellitaires (spécialement dans le cas de POLDER, tableau 2.6), ainsi qu'une mesure effectuée uniquement en ciel clair, entraîne un nombre de points considérablement réduit par rapport aux mesures journalières de PM_{2.5} au sol, effectuées en continu quelle que soit la couverture nuageuse. De plus, d'après le tableau (2.6), alors que la mesure de PM_{2.5} est locale, la mesure satellitaire correspond, dans le cas de POLDER-2, à une surface au sol de 21 x 18 Km. Ainsi, le bon accord entre mesures au sol de PM et d'AOT satellitaires du radiomètre POLDER-2 ne

peut se produire que dans le cas d'un épisode de pollution dont la superficie au-dessus du site de mesure est, au minimum, de l'ordre de 21 x 18 Km.

Nous avons finalement étudié l'apport de la prise en compte de la distribution verticale des aérosols. À cette fin, après l'utilisation de profils de concentration massique dérivés du modèle de chimie-transport CHIMERE (ne figurant pas dans le tableau 2.6 mais présenté par la suite), nous nous servons des mesures de profil de rétrodiffusion restituées par le LIDAR CALIOP. Cette dernière étude est basée sur la co-localisation de l'ensemble des mesures du tableau (2.6) (ainsi que les mesures fournies par une station météorologique et un LIDAR au sol) au cours de trois journées d'études spécifiques au-dessus de la région de Lille. Cela nous a permis de mettre en évidence l'importance d'un changement de distribution verticale des aérosols sur la relation entre AOT satellitaire et $PM_{2.5}$.

3. Analyse des mesures au sol

Rappelons que les mesures au sol utilisées dans cette thèse sont, d'une part, les épaisseurs optiques photométriques du réseau AERONET ($AOT_{AERONET}$) et, d'autre part, les mesures en concentration massique des particules de diamètre aérodynamique inférieur à $2.5 \mu\text{m}$ ($PM_{2.5}$) effectuées par les instruments gravimétriques TEOM.

Nous avons étudié l'évolution annuelle des PM_{10} en France de 1998 à 2006 puis comparé le cycle saisonnier des années 2002 à 2004 et l'évolution journalière des mesures de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET}$ en 2003 à Lille. Notre attention se porte tout particulièrement sur l'année 2003. Cette année correspond, en effet, à la période d'opération du radiomètre POLDER-2 dont les mesures étaient les seules disponibles au début de cette thèse.

Il s'en suit la comparaison entre les mesures de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET}$ à Lille au cours de la période estivale et hivernale 2003 et l'observation d'une relation très différente entre ces deux types de mesures d'une saison à l'autre. Nous avons alors investigué, grâce aux mesures inverses photométriques, la possibilité d'un éventuel changement des propriétés optiques et microphysiques pouvant expliquer cette différence de relation entre mesures de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET}$ au cours de la période hivernale et estivale de l'année 2003 à Lille.

Dans un premier temps, nous avons dressé une caractérisation optique et microphysique moyenne des aérosols présents au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest de 1994 à 2007. Puis, nous avons comparé les propriétés optiques et microphysiques moyennes des particules à Lille en été et hiver 2003. Pour cela, nous avons moyenné les mesures inverses photométriques sur des périodes qui affichent, par ailleurs, une forte variabilité journalière de mesures d' $AOT_{AERONET}$. Il nous a donc semblé judicieux de se concentrer, par la suite, sur les événements affichants de fortes valeurs d' $AOT_{AERONET}$ au cours de l'année 2003. À cette fin, nous avons sélectionné les 5 % de valeurs d' $AOT_{AERONET}$ les plus fortes par station photométrique au-dessus de l'Europe de l'Ouest. Nous avons pu, ainsi, caractériser et comparer les propriétés optiques et microphysiques de tels événements de pollution en été ou hiver 2003 au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest.

3.1. Variabilité temporelle de la pollution particulaire

3.1.1. Évolution annuelle des PM en France

Les stations de mesures en PM sont classées par catégorie selon leur distance aux sources d'émission en particules. Ainsi, celles de type « rurales » (resp. « péri-urbaines ») sont à une distance comprise entre 10 Km et 50 Km (3 Km et 10 Km) de toute source importante d'émission en particules alors que les stations de type « urbaines » sont proches d'axes routiers présentant un nombre inférieur à 2500 véhicules par jour dans un rayon de 50 m. Finalement, les stations sont dites de type « trafic » lorsqu'elles sont situées à même le bas-côté d'un axe de circulation automobile.

La figure (3.1) présente l'évolution des moyennes annuelles de PM_{10} de 1998 à 2006 au-dessus de la France par type de station de mesure (c'est-à-dire suivant sa localisation géographique). Les stations de mesure en PM_{10} à la base de la figure (3.1), dont le nombre varie chaque année, sont distribuées en France de la manière suivante :

- 72% des stations sont urbaines ou périurbaines,
- 13 % des stations sont proches du trafic automobile,

- 12.5 % sont proches de complexes industriels et
- 2.5% des stations sont rurales.

La figure (3.1) montre que seules les stations de qualité de l'air en France de type rurales (courbe mauve) montrent des concentrations annuelles en PM_{10} inférieures au seuil de $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$, valeur annuelle de PM_{10} à respecter à partir de 2010 selon la Directive 1999/30/CE du conseil du 22 avril 1999 (section 2.2 du chapitre précédent).

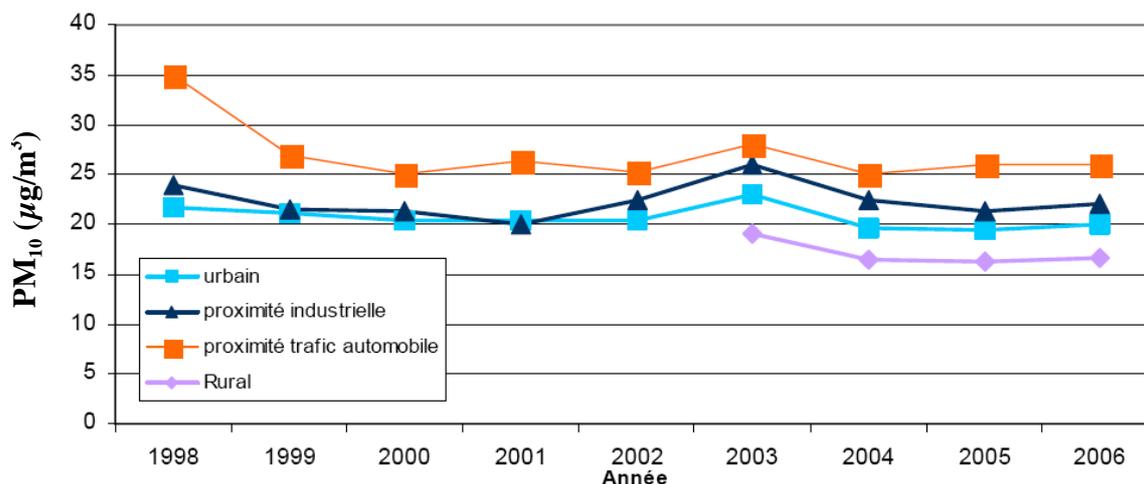


Figure 3.1: Evolution des moyennes annuelles de PM_{10} ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) de 1998 à 2006 en France par type de station (en bleu clair, urbaine ; en bleu foncé, à proximité industrielle ; en rouge, à proximité du trafic ; en mauve, rurale); figure adaptée d'une communication de Aymoz et al. [2007].

Depuis 1998, les stations de mesures en PM_{10} de types urbaines, rurales et à proximité industrielles présentent, en France, une baisse moins marquée que les stations proches du trafic automobile. De plus, depuis 2004, les valeurs annuelles en PM_{10} ont tendance à stagner pour les 4 types de stations de la figure (3.1). Cette dernière information est confirmée au-dessus des stations urbaines et périurbaines par Bouallala et al. [2006].

D'après la figure (3.1), l'année 2003 se démarque des autres années par de fortes moyennes annuelles en PM_{10} pour les stations rurales ($\sim 19 \mu\text{g}/\text{m}^3$), urbaines ($\sim 23 \mu\text{g}/\text{m}^3$), à proximité industrielles ($\sim 25 \mu\text{g}/\text{m}^3$) et à proximité du trafic ($\sim 28 \mu\text{g}/\text{m}^3$). D'après Bouallala et al. [2004], la qualité de l'air est apparue moins bonne en 2003, tout particulièrement au cours de la période estivale à cause de conditions météorologiques caniculaires. De même, le bulletin *Airparif Actualité* [2004] reporte une légère remontée des niveaux moyens de particules fines en 2003 au-dessus de la région d'Ile de France alors que ces derniers ont été très stables de 1998 à 2002.

Dans la suite de cette thèse, les mesures provenant de stations à proximité du trafic automobile seront écartées afin de privilégier des épisodes de pollution particulière d'échelle plus régionale. En effet, un événement de pollution très localisé en aérosols n'est pas aisément détectable par les observations satellitaires puisque ces dernières sont limitées par leur résolution spatiale (tableau 2.6 du chapitre précédent).

3.1.2. Évolution temporelle des PM et AOT à Lille

3.1.2.1. Cycle saisonnier

D'après une étude au niveau européen [Van Dingenen *et al.*, 2004] portant sur 10 années et 11 stations de mesures, il a été observé une corrélation très forte entre $PM_{2.5}$ et PM_{10} (coefficient de corrélation supérieur à 0.98) et un rapport quasi-constant entre $PM_{2.5}$ et PM_{10} (entre 57 et 89%) pour chaque site individuel. En comparant les mesures de concentration en $PM_{2.5}$ et PM_{10} au-dessus de Lille, nous avons non seulement observé un coefficient de corrélation très satisfaisant de 0.97 mais aussi un rapport entre ces deux mesures de 70 à 76 % suivant que l'on soit respectivement en période hivernale ou estivale de l'année 2003. Dans la suite de cette thèse, nous mettons de côté les mesures de PM_{10} pour nous concentrer sur les mesures de $PM_{2.5}$ au sol, plus pertinentes quant à leur impact sur la santé puisque, comme nous l'avons vu à la section (1.2.2), les particules de plus petit diamètre s'immiscent plus profondément dans les bronches et y restent davantage de temps causant des dégâts plus importants.

Nous choisissons, à présent, d'étudier les évolutions temporelles des mesures en concentration massique ($PM_{2.5}$) et photométriques du réseau AERONET/PHOTONS au sol dans la région de Lille (Nord-Pas-de-Calais). Cette localisation présente l'avantage d'offrir une distance inférieure à 5 Km entre les deux types d'instruments de mesure. Notons, de plus, la commodité d'utiliser les mesures photométriques provenant du site de Lille (sur le toit du Laboratoire d'Optique Atmosphérique à Villeneuve d'Ascq), où est basée l'équipe PHOTONS qui pilote la composante française du réseau de photomètres AERONET.

La station de mesure en concentration massique proche de Lille (Faidherbe), à la base des moyennes mensuelles de $PM_{2.5}$ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) de la figure (3.2) est de type urbaine. Ces moyennes mensuelles ne sont valides que si l'on dispose de 75 % des mesures horaires de $PM_{2.5}$ dans le mois considéré ; ce qui n'est pas le cas, par exemple, des mois de novembre et décembre 2004.

D'après la figure (3.2), le cycle saisonnier des $PM_{2.5}$ à Lille au cours des années 2002 à 2004 présente une évolution bimodale formée de 2 pics de pollution majeurs, en hiver (février pour 2003 et mars pour 2002 et 2004), et en été (août pour 2003 et septembre pour 2002 et 2004). Notons, tout de même que l'année 2003 montre, quant à elle, un 3^{ème} pic de pollution de moindre importance en juin.

À l'égal des évolutions annuelles des mesures en PM_{10} de la figure (3.1), d'après la figure (3.2), l'année 2003 se démarque par des pics hivernaux ($23 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en hiver 2003 contre $18 \mu\text{g}/\text{m}^3$ et $17 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en hiver 2002 et 2004) et estivaux ($19 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en été 2003 contre $16 \mu\text{g}/\text{m}^3$ et $12 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en été 2002 et 2004) de plus forte amplitude.

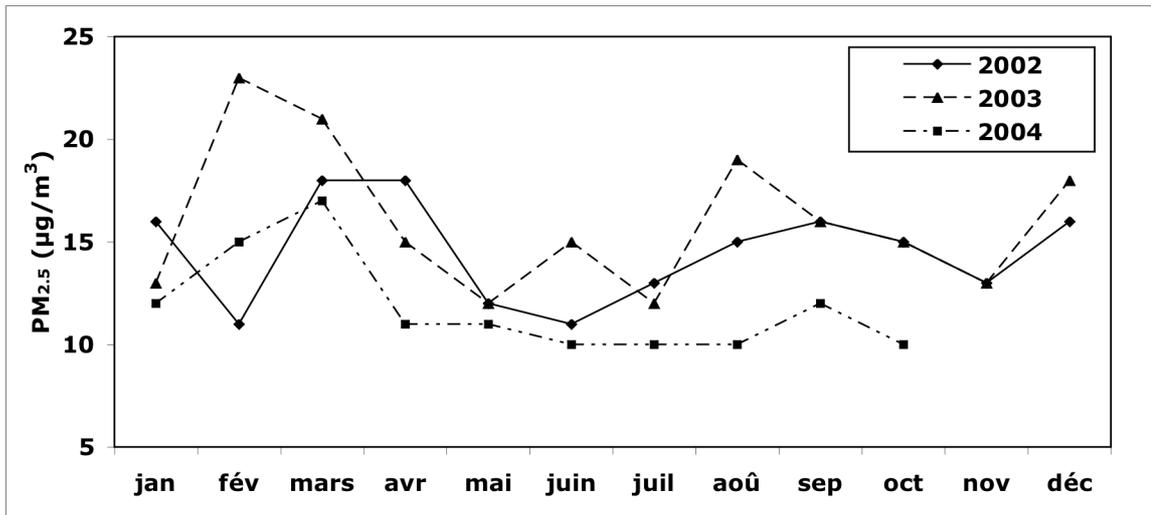


Figure 3.2: Moyennes mensuelles (si nombre de mesures horaires > 75% du nombre total dans le mois considéré) de PM_{2.5} (µg/m³) à Lille (Faidherbe, site n°11024) de 2002 à 2004.

De plus, sur les 3 années de mesures de la figure (3.2), nous observons un pic maximal de concentration en PM_{2.5} plus fort en hiver qu'en été. Des observations similaires au niveau européen [Putaud *et al.*, 2003] ont montré qu'au niveau des sites pollués, les concentrations en PM_{2.5} sont nettement supérieures en hiver. Ceci serait au moins partiellement dû à la météorologie : la dispersion des polluants est moindre en hiver lorsque la couche limite est plus basse.

En effet, un épisode « hivernal » est généralement caractérisé par peu de vent et de fortes inversions de température le matin c'est-à-dire des températures au sol plus fraîches qu'en altitude, créant un couvercle d'air plus chaud sous lequel s'accumulent les polluants au lieu d'être dispersés dans l'atmosphère. De plus, certaines mesures ont montré que la condensation des composés semi-volatiles (comme le nitrate ou composants organiques) est favorisée par de basses températures entraînant un contenu en particules généralement plus important en hiver qu'en été [Putaud *et al.*, 2004].

La figure (3.3) présente les moyennes mensuelles (pondérées par le nombre d'observations journalières) d'AOT_{AERONET,Total} à 440 nm au-dessus de Lille de 2002 à 2004. Les mesures d'AOT_{AERONET,Total} de la figure (3.3) sont de niveau 2 (le masque nuage est appliqué ainsi que l'étalonnage final et les données sont inspectées manuellement) et ont été effectuées par visée directe solaire. Elles concernent, par conséquent, la totalité de la distribution en taille des aérosols (et non uniquement les particules de diamètres aérodynamiques inférieurs à 2.5 µm comme pour les PM_{2.5}).

Les moyennes mensuelles pondérées d'AOT_{AERONET,Total} à la base de la figure (3.3) sont fonction des moyennes journalières qui sont, elles-mêmes, calculées lorsqu'il existe au moins 3 mesures horaires dans la journée.

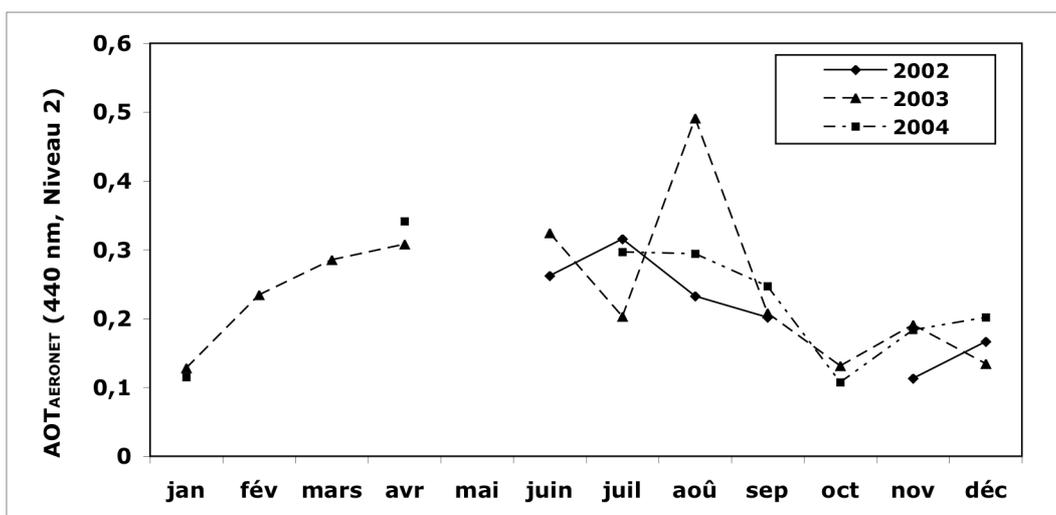


Figure 3.3: Moyennes mensuelles pondérées d' $AOT_{AERONET,Total}$ à 440 nm au-dessus de Lille de 2002 à 2004. Les données sont de niveau 2 et pour un mois m , la moyenne mensuelle (\bar{X}_m) est fonction de la moyenne journalière (\bar{X}_j) et du nombre d'observations (N_j) au cours du jour j tel que :

$$\bar{X}_m = \sum_j (\bar{X}_j \times N_j) / \sum_j (N_j).$$

Du fait de l'absence de certaines moyennes mensuelles (particulièrement en période hivernale), rien ne peut-être écrit sur une bi-modalité éventuelle du cycle saisonnier d' $AOT_{AERONET,Total}$ à 440 nm. Le pic hivernal particulièrement intense à Lille dans le cas des mesures de $PM_{2.5}$ ne peut pas être observé sur les mesures d'AOT du fait du manque de données en hiver (problème de couverture nuageuse).

Alors qu'on observe, à l'égal des mesures de $PM_{2.5}$, un pic estival au cours de chaque année (en août 2003 et en Juillet 2002 et 2004), celui de l'année 2003 se démarque par son intensité (égale à 0.49 à 440 nm). Par contre, les moyennes mensuelles d' $AOT_{AERONET,Total}$ ne présentent pas de pic hivernal (de grande amplitude dans le cas des mesures de $PM_{2.5}$) dû à un manque important de mesures au cours du mois de mai 2003 et des années 2002 et 2004.

3.1.2.2. Évolution journalière en 2003

Les résultats des figures (3.1) à (3.3) montrent qu'il est important de nous concentrer, en premier lieu, sur l'année 2003 caractérisée par de forts contenus en aérosols (fortes valeurs annuelles de PM_{10} en France et fortes valeurs mensuelles de $PM_{2.5}$ et d'AOT photométrique au sol à Lille).

La figure (3.4) présente les moyennes journalières de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET,Total}$ au cours de l'année 2003 à Lille.

Les mesures d' $AOT_{AERONET,Total}$ à la base de la figure (3.4) ont été choisies de qualité maximale c'est-à-dire de niveau 2, bien qu'il y ait d'avantage de données de niveau 1.5 (152 mesures journalières de niveau 2 contre 188 mesures journalières de niveau 1.5 au cours de l'année 2003).

De la même façon que pour les valeurs mensuelles de $PM_{2.5}$ de la figure (3.2), les mesures journalières de $PM_{2.5}$ à la base de la figure (3.4) ne sont valides que si l'on dispose d'au moins 75% des mesures horaires dans la journée considérée.

En ce qui concerne les mesures journalières d' $AOT_{AERONET,Total}$, elles sont calculées si on dispose d'au moins 3 mesures horaires dans la journée.

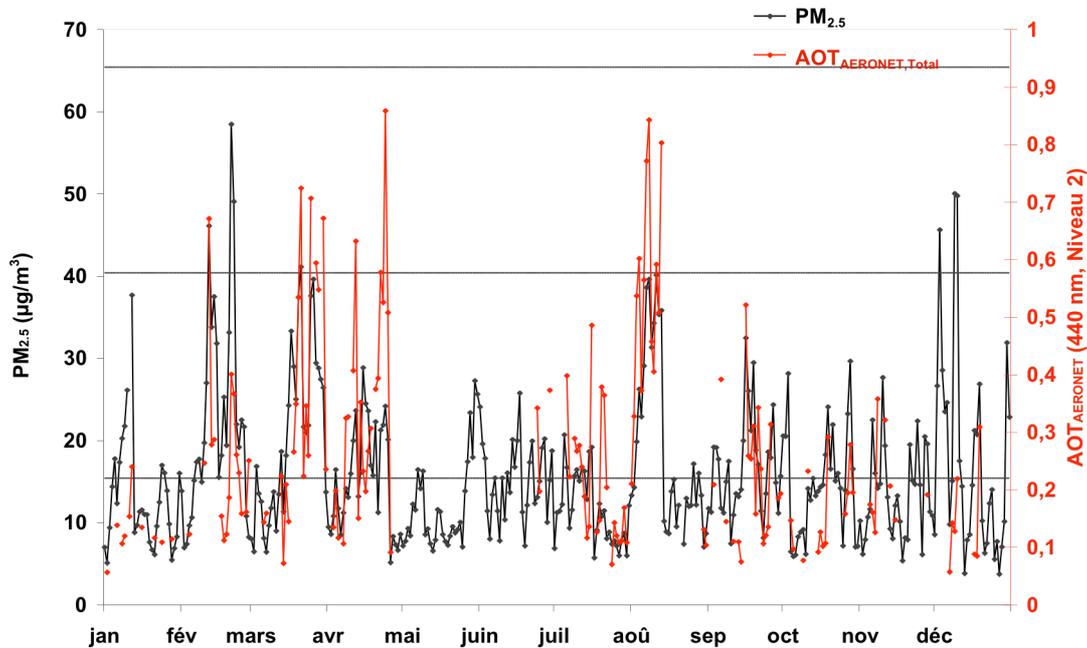


Figure 3.4: Moyennes journalières de $PM_{2.5}$ ($\mu g/m^3$, en noir) et d' $AOT_{AERONET,Total}$ à 440 nm (niveau 2, par visée directe, en rouge) à Lille au cours de l'année 2003. Le photomètre et l'instrument TEOM sont distants de 4.2 Km. Les traits horizontaux indiquent la limite supérieure de la catégorie de qualité de l'air (CQA) « bonne » ($15.4 \mu g/m^3$), la limite supérieure de la CQA « modérée » ($40.4 \mu g/m^3$) et la limite supérieure de la CQA « conditions à risques pour certains groupes de personnes » ($65.4 \mu g/m^3$) d'après les standards de l'E.P.A.

Les mesures photométriques, en plus de s'effectuer uniquement par ciel clair, s'opèrent uniquement de jour alors que les moyennes journalières de $PM_{2.5}$ sont calculées à partir de mesures instantanées de 0:00 à 24:00. L'impact de la couverture nuageuse ainsi que la prise en compte de mesures sur des périodes de temps différentes au cours de la journée réduit considérablement le nombre de mesures d' $AOT_{AERONET,Total}$ par rapport à celui de $PM_{2.5}$. En effet, on observe 363 moyennes journalières de $PM_{2.5}$ contre 152 moyennes journalières d' $AOT_{AERONET,Total}$ de niveau 2 sur la figure (3.4). Soit une différence de 211 journées de mesures, c'est-à-dire 58 % de données d' $AOT_{AERONET,Total}$ (en rouge) en moins en comparaison aux mesures de $PM_{2.5}$ (en noir) sur la figure (3.4). Notons, de plus, que le nombre de mesures d' $AOT_{AERONET,Total}$ est d'autant plus réduit en hiver (36 jours par rapport à 152 journées au total, soit 24% d'observations du 21 décembre au 21 mars 2003) par rapport à l'été 2003 (52 jours, soit 34% d'observations du 21 juin au 21 septembre 2003).

On présente, dans le tableau (3.1), les moyennes journalières de $PM_{2.5}$ de la figure (3.4) dépassant le seuil de $40.4 \mu g/m^3$, qui délimite les conditions de qualité de l'air « modérées » et « à risques pour certains groupes de personnes », ainsi que les valeurs journalières d' $AOT_{AERONET}$ correspondantes à Lille en 2003.

Le tableau (3.1) montre que l'année 2003 à Lille totalise 7 journées de conditions de pollution particulaire à risque pour certains groupes de personnes. Ces 7 journées se situent en hiver, le maximum absolu étant mesuré le 21 février 2003 avec une valeur journalière de $PM_{2.5}$ de $58.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Journées de qualité de l'air à risques		
Date	$PM_{2.5} \geq 40.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$	$AOT_{AERONET,Total}$ (440 nm)
12/02/03	46,1	0,67
21/02/03	58,5	0,40
22/02/03	49,1	0,37
21/03/03	41,1	0,72
3/12/03	45,6	N.D.
9/12/03	50,0	0,13
10/12/03	49,8	0,22

Tableau 3.1 : Moyennes journalières des $PM_{2.5}$ à Lille dépassant le seuil de $40.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ correspondant à la catégorie de qualité de l'air « Conditions à risques pour certains groupes de personnes comme les enfants en bas âge ou les personnes âgées » et valeurs d' $AOT_{AERONET,Total}$ correspondantes à 440 nm, par visée directe solaire et de niveau 2 ; « N.D. » : Non Disponible.

D'après la figure (3.4), une certaine similitude temporelle (l'amplitude peut être, par contre, très différente) entre les évolutions de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET}$ est observée à l'échelle de l'événement en aérosols alors qu'elle ne l'est pas forcément à l'échelle de la journée (voir le tableau 3.1). En effet, si les journées du 9 et 10 décembre 2003 du tableau (3.1) affichent des moyennes journalières bien supérieures au seuil de $40.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$, les valeurs des moyennes journalières d' $AOT_{AERONET,Total}$ correspondantes demeurent assez faibles (respectivement 0.13 et 0.22).

Nous retenons de l'étude de variabilité temporelle de la pollution particulaire, une année 2003 qui se démarque des autres années par de fortes valeurs de $PM_{2.5}$ et d' AOT photométriques. De plus, le cycle saisonnier des $PM_{2.5}$ est généralement bi-modal et formé principalement de deux pics de pollution majeurs en été et en hiver. Le pic en $PM_{2.5}$ est de plus forte amplitude en hiver dû, en partie, à une inversion des températures qui se produit lors de faibles températures. Par ailleurs, la bi-modalité du cycle saisonnier des mesures d' AOT photométriques ainsi que le pic hivernal n'a pu être vérifié dû à un manque de mesures photométriques par rapport aux mesures de $PM_{2.5}$. Finalement, nous observons une bonne correspondance entre mesures de concentration massique et photométrique au sol à l'échelle de l'événement de pollution en aérosols à Lille au cours de l'année 2003. Ce qui n'est pas nécessairement le cas à l'échelle de la journée.

3.2. Relation PM/AOT AERONET

Nous choisissons de comparer (figure 3.5) les mesures de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET}$ au-dessus de Lille au cours de l'année 2003 (103 mesures coïncidentes).

Le peu de stations de mesures de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET}$ situées proches l'une de l'autre (avec une distance inférieure ou égale à 5 Km entre elles) ainsi que le manque de mesures fournies par certaines stations photométriques ou de qualité de l'air rend les comparaisons entre mesures de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET}$ difficiles au-dessus d'autres zones géographiques en

France au cours de l'année 2003. En effet, parmi les stations de mesures distantes de moins de 5 Km, le site de Bordeaux est le seul à présenter, non seulement des mesures inverses d' $AOT_{AERONET}$ mais aussi des mesures en $PM_{2.5}$ en 2003. Cependant, les mesures d' $AOT_{AERONET}$ provenant du site de Bordeaux représentent seulement un total de 11 jours au cours de l'année 2003.

Les mesures photométriques d' $AOT_{AERONET}$ à 440 nm à la base de la figure (3.5) ont les caractéristiques suivantes :

- Nous utilisons les mesures de niveau 1.5 puisqu'elles fournissent plus de valeurs,
- Elles sont effectuées dans l'almucantar par inversion de distribution angulaire de luminance du ciel,
- Elles satisfont trois critères parmi ceux recommandés par *Dubovik et al.* [2000] pour une meilleure restitution des paramètres optiques et microphysiques: les angles zénithaux solaires θ_s sont supérieurs ou égaux à 45° , la différence entre luminance simulée et mesurée est inférieure ou égale à 5 % et le nombre d'angles de diffusion est supérieur ou égal à 21 (figure (2.3) du chapitre précédent),

Les mesures d' $AOT_{AERONET}$ de la figure (3.5) correspondent, en gris, à la totalité de la distribution en taille des particules (de 0.05 à 15 μm , $AOT_{AERONET,Total}$) et, en noir, aux particules de rayon physique inférieur ou égal à 1 μm ($AOT_{AERONET,Fin}$).

D'après la relation (1.1) et une densité des particules fixée à 1.7 g.cm^{-3} pour les particules solubles autres qu'organiques [*Sloane, 1984 ; Boucher et Anderson, 1995, Chazette et Lioussse, 2001*], un diamètre aérodynamique de 2.5 μm correspond à un diamètre physique d'environ 2 μm et donc à un rayon physique d'environ 1 μm . La mesure d' $AOT_{AERONET,Fin}$ des particules de rayon inférieur ou égal à 1 μm (en noir) présente donc l'avantage de correspondre au même ensemble de tailles de particules que celui mesuré par les $PM_{2.5}$.

Les mesures d' $AOT_{AERONET,Fin}$ à la base de la figure (3.5) ont été calculées à l'aide d'un code de Mie où nous avons imposé, en entrée, la distribution en taille des particules et l'indice de réfraction η dérivés des mesures d'inversion photométriques ainsi qu'une longueur d'onde fixée à 440 nm.

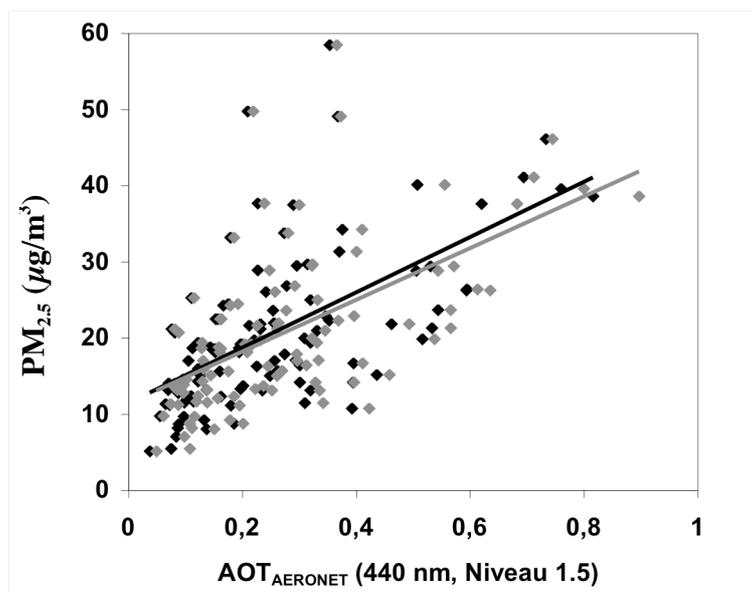


Figure 3.5 : Comparaison entre moyennes journalières d' $AOT_{AERONET}$ (de niveau 1.5, version 2, $\theta_s \geq 45^\circ$, $L_{sim} - L_{mes} \leq 5\%$ et nombre d'angle de diffusion, $\Theta \geq 21$) à 440 nm et moyennes journalières de

$PM_{2.5}$ à Lille en 2003. Les mesures d' $AOT_{AERONET}$ correspondent, soit aux particules de rayon entre $0.05 \mu m$ et $15 \mu m$ (en gris), soit aux particules de rayon entre $0.05 \mu m$ et $1 \mu m$ (en noir). Le nombre total de points est de 103 et la distance entre les 2 instruments de mesure est de 4.2 Km.

- En gris, $PM_{2.5} = 33.94 \pm 5 \times AOT_{AERONET,Total} + 11.39 \pm 1$, $R=0.59$, $RMS= 8.35$,
- En noir, $PM_{2.5} = 35.69 \pm 5 \times AOT_{AERONET,Fin} + 11.54 \pm 1$, $R=0.60$, $RMS= 8.12$.

Aucune contrainte n'a été imposée sur le nombre de mesures horaires à la base du calcul des moyennes journalières de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET}$ de la figure (3.5). La suppression des moyennes journalières de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET}$ basées sur un faible nombre de mesures horaires (inférieur ou égal à respectivement 9 et 3) réduit considérablement le nombre de points (60 mesures coïncidentes de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET}$ au-dessus de Lille en 2003 au lieu de 103 pour la figure 3.5). De plus, appliquer des contraintes sur les mesures à la base de la figure (3.5) tend à diminuer le coefficient de corrélation. En effet, dans le cas, par exemple, de l'utilisation des mesures d' $AOT_{AERONET,Fin}$, le coefficient de corrélation est alors de 0.53 ($PM_{2.5} = 31.79 \pm 7 \times AOT_{AERONET,Fin} + 14.40 \pm 2$, $R=0.53$, $RMS= 8.71$ pour $N=60$) au lieu de 0.60 en noir sur la figure (3.5).

D'après la figure (3.5), on observe une corrélation significative entre les mesures de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET,Total}$ (coefficient de corrélation $R=0.59$) et entre les mesures de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET,Fin}$ ($R=0.60$) à Lille en 2003. En comparant les 2 ensembles de données (points gris et noirs sur la figure 3.5), il semble revenir au même de comparer des mesures de $PM_{2.5}$ à des mesures d' $AOT_{AERONET,Total}$ ou à des mesures d' $AOT_{AERONET,Fin}$. On observe, en effet, en plus d'un coefficient de corrélation très similaire (R entre 0.59 et 0.60), des pentes et ordonnées à l'origine des droites de régression très proches l'une de l'autre (respectivement entre 34 et 36 et entre 11 et 12). Cette observation, on le verra plus tard, semble s'expliquer, en grande partie, par une distribution en taille des particules dominée, au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest et en moyenne, par des aérosols de petite taille.

En comparaison à notre corrélation entre mesures de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET,Total}$ (à 440 nm) au-dessus de Lille en 2003 ($R=0.59$), l'étude de *Smirnov et al.* [2000] présente un accord beaucoup plus satisfaisant entre mesures de concentration massique des poussières désertiques et $AOT_{AERONET,Total}$ (à 870 nm) au-dessus de la Barbade au cours des années 1998 et 1999 ($R=0.71$ avec 269 moyennes journalières et $R=0.93$ avec 11 moyennes mensuelles coïncidentes). Il est à noter toutefois que les mesures de concentration massique au sol de l'étude de *Smirnov et al.* [2000] diffèrent fortement des mesures de $PM_{2.5}$ de notre étude puisqu'elles sont constituées principalement de poussières désertiques, espèce dominante dans cette région. Par ailleurs, une étude de *Chu et al.* [2003] au-dessus d'Ispre (nord de l'Italie) montre une corrélation encore meilleure que celle de *Smirnov et al.* [2000] entre moyennes journalières de PM_{10} et d' $AOT_{AERONET}$ d'août à octobre 2000 ($R= 0.82$ et $PM_{10} = 54.7 \times AOT_{AERONET} + 8$). Outre la période d'étude plus restreinte, ce fort accord pourrait être largement dû aux conditions géographiques et, par conséquent, météorologiques d'un tel site de mesures. En effet, cette région de l'Italie du Nord est entourée de forts reliefs montagneux. Cette topographie en forme de « cuvette » où les conditions atmosphériques sont stables et où les sources de polluants sont bien connues privilégie l'accumulation de polluants particuliers et évite le mélange avec d'autres types d'aérosols.

Par contre, l'étude de *Ramachandran* [2005] où la comparaison entre mesures de $PM_{2.5}$ et d' AOT photométriques au-dessus de la côte de l'Inde, de la mer d'Arabie et de l'Océan Indien Tropical a montré des faibles coefficients de corrélation de 0.3 au cours des saisons de mousson hivernale (décembre à avril) de 1996 à 2000. Mentionnons finalement qu'une étude de *Corbin et al.* [2002] au-dessus du site urbain de Washington, D. C. (États-Unis) montre un

faible accord entre $PM_{2.5}$ et $AOT_{AERONET}$ de 1995 à 1996 (95 moyennes journalières coïncidentes) avec un coefficient de corrélation de 0.46. L'accord moins prononcé de *Corbin et al.* [2002] pourrait être dû, en grande partie, à la distance de 25 Km (contre 5 Km dans notre cas) entre le site de prélèvement des $PM_{2.5}$ et le site photométrique et la variation journalière non négligeable des concentrations en aérosols à petite échelle. Ajoutons que le fait de comparer des mesures d' $AOT_{AERONET}$ effectuées sous des conditions atmosphériques ambiantes (avec un certain pourcentage d'humidité relative) à des mesures de $PM_{2.5}$ « sèches » à 0 % d'humidité relative peut introduire de la dispersion. Cependant, l'étude de *Corbin et al.* [2002] n'a montré qu'un faible changement dans les corrélations entre mesures de $PM_{2.5}$ et mesures d' $AOT_{AERONET}$ lorsque la mesure « sèche » de $PM_{2.5}$ est artificiellement hydratée au-dessus du site urbain de Washington, D. C. (États-Unis) de 1995 à 1996 (coefficient de corrélation $R=0.55$ contre 0.46 pour 95 moyennes journalières coïncidentes).

La dispersion observée sur la figure (3.5) et les coefficients de corrélations de 0.59 et 0.60 peuvent avoir de multiples explications. Rappelons tout d'abord, comme il a été vu à la section (2.1), l'importance des propriétés optiques et microphysiques du type d'aérosol considéré (la densité volumique ρ de la particule, la section efficace d'extinction, $s_{ext}(\lambda)$, l'indice de réfraction, η et la distribution en taille des particules $n(r)$) ainsi que la répartition verticale des aérosols dans la relation entre les mesures d' AOT et de $PM_{2.5}$ au sol.

En plus de l'impact important d'un changement de distribution verticale et de propriétés des aérosols, notons l'influence possible des erreurs des instruments sur les mesures. Ainsi, nous avons limité, dans notre étude, les erreurs d'inversions sur les mesures photométriques par l'application de certains critères de précision ($\theta_s \geq 45^\circ$, $L_{sim} - L_{mes} \leq 5\%$ et le nombre d'angles de diffusion, $\Theta \geq 21$) mais, comme il a été vu à la section (2.2), les concentrations en $PM_{2.5}$ mesurées par l'instrument TEOM sous-estiment le contenu réel en aérosols de 20 à 50 % selon la station et la saison (sous-estimation plus forte en hiver).

Notons, de même, le biais induit par les moyennes temporelles des deux types de mesures. En effet, alors que les mesures de $PM_{2.5}$ représentent, au maximum, l'intégralité de la journée, les mesures d' $AOT_{AERONET}$ ne s'effectuent qu'en présence de lumière du jour et qu'en ciel clair, ce qui réduit considérablement le nombre de mesures d' $AOT_{AERONET}$ en comparaison aux mesures de $PM_{2.5}$.

De plus, bien que les contraintes (notamment $\theta_s \geq 45^\circ$) imposées sur les mesures inverses photométriques augmentent la précision de la restitution des propriétés optiques et microphysiques, elles pourraient biaiser les moyennes journalières des mesures d' $AOT_{AERONET}$ et ceci, particulièrement en été 2003. Une grande majorité des journées d'été (21 juin au 21 septembre) présentent un angle solaire zénithal supérieur à 45° entre l'heure du lever du soleil et environ 9h du matin puis entre environ 16h et le coucher du soleil. Ces tranches horaires correspondent, par ailleurs, aux heures de trafic automobile où il est souvent enregistré de fortes valeurs de $PM_{2.5}$ au sol. Nous comparons donc, dans le cas d'une contrainte imposée sur l'angle θ_s ($\geq 45^\circ$), des valeurs de $PM_{2.5}$ représentatives de la journée à des valeurs d' $AOT_{AERONET}$ caractéristiques de ces heures de fort contenu en aérosols.

Cependant, en choisissant de n'imposer aucun critère de précision sur les mesures inverses photométriques, nous avons observé un nombre plus important de mesures coïncidentes de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET,Fin}$ (123 points au cours de l'année 2003 au lieu de 103 sur la figure 3.5) mais aucun changement significatif au niveau des droites de régression et des coefficients de corrélations.

Nous procédons, à présent, à la même comparaison que celle présentée sur la figure (3.5) en séparant cette fois la période estivale (21 juin au 21 septembre, 33 données coïncidentes) de la période hivernale (21 décembre au 21 mars, 26 données coïncidentes) de l'année 2003 (figure 3.6).

À la base de la figure 3.6, par souci de lisibilité, nous n'avons présenté que les mesures d' $AOT_{AERONET,Fin}$ concernant les particules de rayon entre 0.05 et 1 μm .

D'après la figure (3.6), on observe des corrélations entre mesures de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET,Fin}$ à Lille plus satisfaisantes en hiver ($R=0.75$) ou en été ($R=0.72$) qu'au cours de la totalité de l'année 2003 ($R=0.60$ sur la figure 3.5).

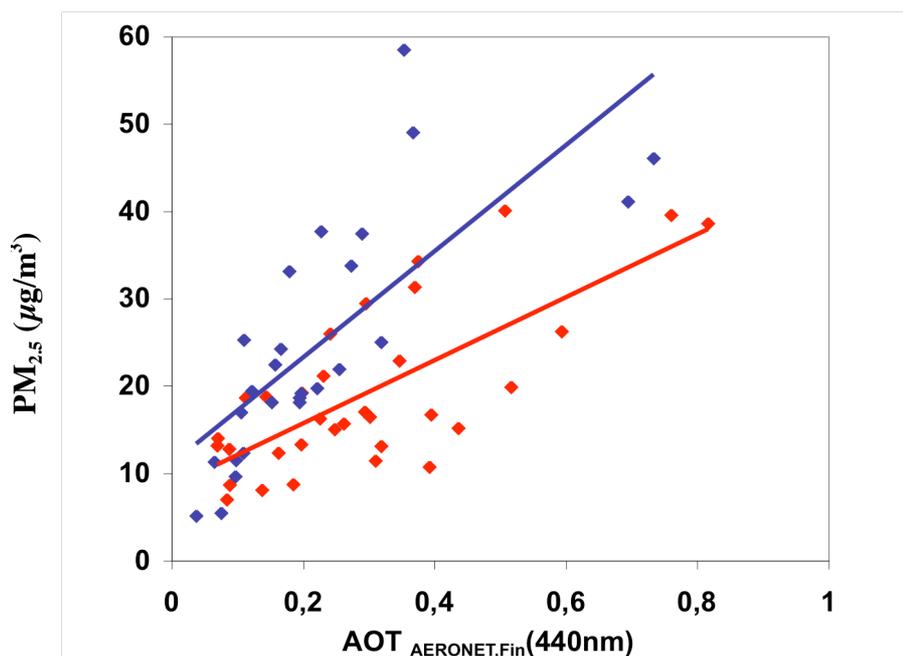


Figure 3.6 : Comparaison entre moyennes journalières d' $AOT_{AERONET,Fin}$ (de niveau 1.5, version 2, $\theta_s \geq 45^\circ$, $L_{sim} - L_{mes} \leq 5\%$ et nombre d'angle de diffusion, $\Theta \geq 21$) à 440 nm et moyennes journalières de $PM_{2.5}$ à Lille en hiver 2003 (en bleu du 21 décembre au 21 mars, 26 données coïncidentes) et été 2003 (en rouge du 21 juin au 21 septembre, 33 points). Les mesures d' $AOT_{AERONET,Fin}$ correspondent aux particules de rayon entre 0.05 μm et 1 μm . Les 2 instruments de mesure sont distants de 4.2 Km.

- En hiver (bleu), $PM_{2.5} = 60.78 \pm 11 \times AOT_{AERONET,Fin} + 11.16 \pm 3$ avec $R=0.75$ et $RMS= 9.27$,
- En été (rouge), $PM_{2.5} = 36.12 \pm 6 \times AOT_{AERONET,Fin} + 8.48 \pm 2$ avec $R=0.72$ et $RMS= 6.49$.

Bien que très proches l'une de l'autre, la corrélation entre mesures de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET,Fin}$ semble légèrement plus satisfaisante en hiver ($R=0.75$, $N=26$) qu'en été 2003 ($R=0.72$, $N=33$) à Lille.

Par ailleurs, nous soulignons sur la figure (3.6) une relation très différente en été et hiver 2003 entre les mesures de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET,Fin}$. On observe, en effet, une pente plus forte (d'un facteur d'environ 1.7) entre mesures de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET,Fin}$ en hiver (en bleu, 60.8) qu'en été 2003 (en rouge, 36.1) à Lille.

Autrement dit, pour un même contenu en particules dans la colonne atmosphérique (par exemple, une mesure d' $AOT_{AERONET,Fin}$ de 0.4 à 440 nm), on observe une valeur au sol de $PM_{2.5}$ beaucoup plus importante en hiver ($\sim 35.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$) qu'en été ($\sim 22.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$). En supposant un même contenu en aérosols dans la colonne verticale et une couche limite atmosphérique comprenant la majorité des particules, une concentration en aérosols au sol

plus importante en hiver peut s'expliquer, en partie, par une couche limite atmosphérique généralement plus basse qu'en été dû à l'effet d'inversion des températures.

Cependant, comme il a été dit à la section (2.4), les facteurs capables d'intervenir dans la relation entre les mesures de $PM_{2,5}$ et d'AOT sont, non seulement la distribution verticale des particules dans la colonne atmosphérique mais aussi les propriétés optiques et microphysiques de ces mêmes aérosols, influant sur leur capacité à diffuser et absorber le rayonnement solaire incident. C'est à ce dernier facteur que l'on s'intéresse dans la section suivante.

Nous retenons de l'étude de la relation entre mesures de PM et d'AOT au sol, la corrélation significative entre ces deux types de mesures à Lille au cours de l'année 2003 ainsi que la corrélation encore plus satisfaisante en séparant les périodes estivales et hivernales de l'année 2003. De plus, nous mettons en évidence une relation très différente entre ces deux types de mesures en été et en hiver 2003 à Lille. Nous avons investigué, dans la section suivante, si un changement des propriétés optiques et microphysiques des aérosols pouvait expliquer la différence de relation observée entre mesures de $PM_{2,5}$ et d'AOT d'une saison à l'autre.

3.3. Étude des propriétés optiques et microphysiques de l'aérosol

3.3.1. Climatologie en Europe de l'Ouest (1994-2007)

Nous dressons, dans un premier temps, une climatologie moyenne des particules au-dessus de notre zone d'étude à laquelle il sera possible de se référer par la suite.

Nous avons choisi de caractériser les propriétés optiques et microphysiques des particules au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest (entre $35^{\circ}N$ et $57.5^{\circ}N$ de latitude et entre $10.5^{\circ}W$ et $22.5^{\circ}E$ de longitude). Cette zone géographique (figure 3.7), comprend 71 stations photométriques du réseau AERONET/PHOTONS au sol. Parmi ces stations, 38 sont à l'intérieur des terres alors que 33 sont situées proches des côtes.

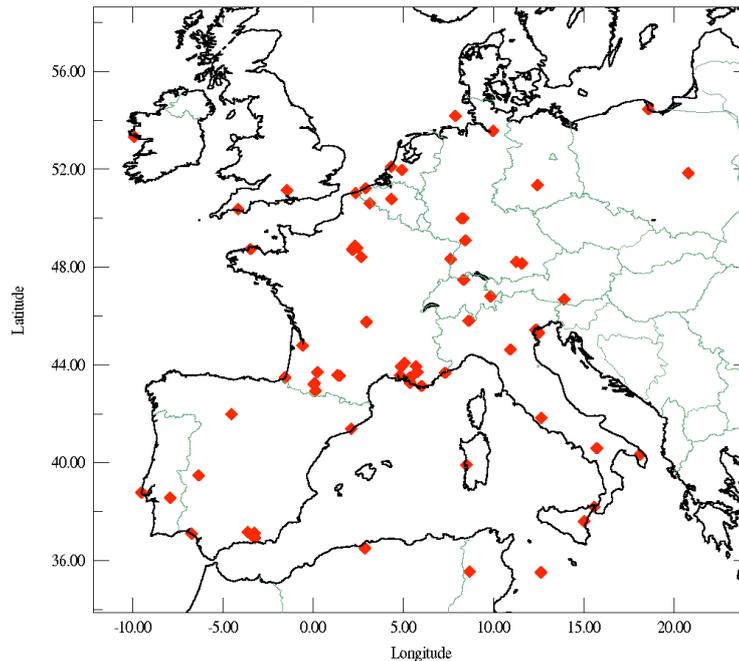


Figure 3.7: Localisation des 71 stations AERONET en Europe de l'Ouest à la base de l'étude de caractérisation des propriétés optiques et microphysiques des particules de 1994 à 2007.

Les mesures inverses photométriques à la base de la figure (3.8) ont les caractéristiques suivantes :

- Elles sont de niveau 1.5 et proviennent de 71 stations en Europe de l'Ouest (17245 moyennes journalières),
- Nous avons appliqué les trois mêmes recommandations que pour les figures (3.5) et (3.6) précédentes.
- Les mesures sont préalablement moyennées sur la journée puis de 1994 à 2007 par station de mesure.
- La moyenne de certains paramètres extensifs \bar{X} tels que l'indice de réfraction (partie réelle et imaginaire) et l'albédo de diffusion simple est pondérée par l'épaisseur optique.

Grâce à ces mesures, nous avons pu élaborer le tableau (3.2) montrant les valeurs moyennes des propriétés optiques et microphysiques des aérosols. La figure (3.8) montre la distribution en volume moyenne ainsi que les écarts-types à cette moyenne au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest de 1994 à 2007.

AOT_{AERONET,Total} (440 nm)	0.22 ± 0.14
AOT_{AERONET,Fin} (440 nm)	0.19 ± 0.13
α Total (440-676 nm)	1.43 ± 0.34
V_{0,Totale} (μm³/μm²)	0.06 ± 0.05
V_{0,Fin} (μm³/μm²)	0.03 ± 0.02
r_{eff,Total} (μm)	0.32 ± 0.13
r_{eff,Fin} (μm)	0.15 ± 0.02
r_{eff,Grossier} (μm)	2.11 ± 0.47
Re (η)	1.44 ± 0.20
Im (η)	0.013 ± 0.003
ω₀ (440 nm)	0.91 ± 0.14

Tableau 3.2: Propriétés optiques et microphysiques moyennes au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest (71 stations AERONET) de 1994 à 2007 : épaisseur optique d'extinction AOT à 440 nm (total et du mode fin), coefficient d'Angström, α, entre 440 et 676 nm, concentration en volume (totale ou du mode fin) V₀, rayon effectif (total, du mode fin ou grossier) r_{eff}, partie réelle et imaginaire de l'indice de réfraction, η et albédo de diffusion simple, ω₀, à 440 nm. Le rayon délimitant le « mode fin » du « mode grossier » est ici défini par le point d'inflexion de la distribution en volume des particules.

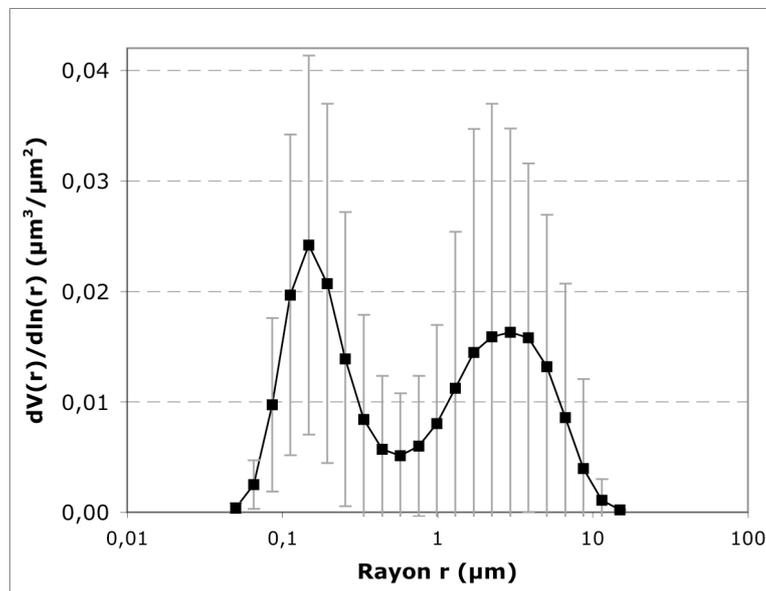


Figure 3.8: Distribution en volume moyenne (noir) et les barres d'erreurs correspondantes (± écart-type en gris). Les mesures AERONET à la base de cette figure sont de niveau 1.5 avec $\theta_s \geq 45^\circ$, $L_{sim} - L_{mes} \leq 5\%$ et le nombre d'angles de diffusion, $\Theta \geq 21$.

D'après la figure (3.8), on observe, en moyenne, une claire domination des particules fines au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest (zone géographique présentée sur la figure 3.7). En effet, la distribution en volume moyenne des particules de 1994 à 2007 (en noir) montre un pic beaucoup plus important autour de 0.15 μm. De plus, la valeur moyenne

d'AOT_{AERONET,Fin} du tableau (3.2) représente ~ 86 % de la valeur d'AOT_{AERONET>Total} et le coefficient d'Angström (égal à 1.43 en moyenne) est représentatif de fines particules.

Notons qu'en séparant les stations proches des côtes de celles à l'intérieur des terres (étude non présentée), nous avons observé, comme nous l'attendions, un mode grossier beaucoup plus prononcé aux endroits où les particules les plus abondantes sont de type sels marins. De plus, les stations proches des côtes (33 stations) montrent, en moyenne, une concentration en volume du mode grossier des particules représentant environ 57% de la concentration en volume totale (contre 50 % dans le cas des 38 stations à l'intérieur des terres).

Il est important de noter la forte dispersion des points à la moyenne de la distribution en volume (barres d'erreur de la figure 3.8) ainsi que certaines valeurs élevées d'écart-types aux moyennes des propriétés optiques et microphysiques du tableau (3.2) (comme l'écart-type de 0.05 sur une concentration en volume total moyenne de 0.06). Cette dispersion est probablement due, en grande partie, au regroupement de stations du réseau AERONET présentant des caractéristiques géographiques parfois très différentes et qui sont sous l'influence de diverses sources de particules (sels marins, poussières minérales, aérosol de pollution,...).

Notre étude des propriétés optiques et microphysiques moyennes des particules sur 9 ans et au-dessus de 71 stations de l'Europe de l'Ouest peut être comparée à celle, plus globale, de *Dubovik et al.* [2002] qui porte sur les mesures inverses photométriques dérivées de 12 stations dans le monde où les conditions météorologiques et les types d'aérosols prédominants sont connus. Notons que les mesures photométriques à la base de l'étude de *Dubovik et al.* [2002] ont subi, en plus des mêmes critères de précision que le tableau (3.2), une contrainte sur la mesure d'AOT_{AERONET} (≥ 0.5) et celle du coefficient d'Angström (≤ 0.6).

Le tableau (3.3) confronte quelques-uns de nos résultats à ceux de *Dubovik et al.* [2002]. Nos résultats semblent ainsi assez proches de ceux obtenus au-dessus de Créteil (40 mesures coïncidentes en 1999) et du site de la NASA à Greenbelt (Goddard Space Flight Center, GSFC) aux Etats-Unis (200 mesures coïncidentes de 1993 à 2000).

Propriétés moyennes	Europe de l'Ouest 1994-2007	Créteil, 1999 [<i>Dubovik et al.</i> , 2002]	GSFC, 1993-2000 [<i>Dubovik et al.</i> , 2002]
AOT_{AERONET>Total} (440nm)	0.22 ± 0.14	0.26	0.24
V_{0,Fin} (µm³/µm²)	0.03 ± 0.02	0.04 ± 0.03	0.04 ± 0.04
r_{eff,Fin} (µm)	0.15 ± 0.02	0.15 ± 0.03	0.15 ± 0.03
Re (η)	1.44 ± 0.20	1.40 ± 0.03	1.40 ± 0.01
Im (η)	0.013 ± 0.003	0.009 ± 0.004	0.003 ± 0.003
ω₀ (440 nm)	0.91 ± 0.14	0.94 ± 0.03	0.98 ± 0.02

Tableau 3.3 : Propriétés optiques et microphysiques moyennes (voir la légende du tableau 3.2) au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest (71 stations AERONET, 17245 moyennes journalières) de 1994 à 2007 et dans le cadre de l'étude de *Dubovik et al.* [2002] au-dessus de Créteil en 1999 (40 mesures) et du site GSFC de 1993 à 2000 (200 mesures). La rayon délimitant le « mode fin » du « mode grossier » est ici défini par le point d'inflexion de la distribution en volume des particules. Les mesures sont de niveau 1.5 avec $\theta_s \geq 45^\circ$, $L_{sim} - L_{mes} \leq 5\%$ et le nombre d'angles de diffusion, $\Theta \geq 21$. Au-dessus de Créteil et du site GSFC, il a été imposé les contraintes suivantes : AOT_{AERONET} ≥ 0.5 et coefficient d'Angström ≤ 0.6 . Les 2 dernière colonnes sont adaptées de *Dubovik et al.* [2002].

Certains des paramètres de notre étude (tableau 3.3) sont très proches de ceux obtenus par *Dubovik et al.* [2002] au-dessus de Créteil ou du GSFC ($AOT_{AERONET,Total}$ de 0.22 contre respectivement 0.26 et 0.24 et $V_{0,Fin}$ de 0.03 contre 0.04) ou même égaux dans le cas du rayon effectif moyen du mode fin ($r_{eff,Fin}$ de 0.15). On observe, de plus, une différence entre valeurs moyennes de $Re(\eta)$ de l'ordre de la précision sur les mesures photométriques inverses (égale à 0.04, tableau 2.3). Il en est de même pour les valeurs moyennes de $Im(\eta)$ et de ω_0 entre notre étude et celle effectuée au-dessus de Créteil dans le tableau (3.3) (différence respective d'environ 30% et de 0.03).

On remarque, par contre, des particules légèrement plus absorbantes dans le cas de notre étude par rapport à celle effectuée au-dessus du GSFC d'après une différence plus grande des valeurs de $Im(\eta)$ et de ω_0 (respectivement égale à environ 77 % et à 0.07). Notons, par ailleurs, que cette différence est de l'ordre de l'écart-type sur la moyenne dans le cas de $Im(\eta)$ et largement inférieure à l'écart-type dans le cas de ω_0 .

Finalement, l'aérosol moyen au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest semble composé d'une majorité de particules fines faiblement absorbantes.

3.3.2. Étude saisonnière en 2003 à Lille

Rappelons qu'il a été observé une relation très différente entre les mesures de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET,Fin}$ en été et en hiver 2003 au-dessus de Lille (section 3.2). Le tableau (3.4) et la figure (3.9) montrent les propriétés optiques et microphysiques moyennes au-dessus de Lille en été (33 mesures), en hiver (26 mesures) et au cours de l'année 2003 (103 mesures).

Lille	Été 2003	Hiver 2003	Année 2003
$AOT_{AERONET,Total}$ (440 nm)	0,32 ± 0.20	0,24 ± 0.17	0,28 ± 0.18
$AOT_{AERONET,Fin}$ (440 nm)	0,29 ± 0.18	0,22 ± 0.17	0,25 ± 0.17
α (440-676nm)	1,37 ± 0.20	1,31 ± 0.37	1,35 ± 0.28
$V_{0, Totale}$ ($\mu m^3/\mu m^2$)	0,08 ± 0.05	0,05 ± 0.03	0,07 ± 0.04
$V_{0, Fin}$ ($\mu m^3/\mu m^2$)	0,04 ± 0.03	0,03 ± 0.03	0,04 ± 0.03
$r_{eff, Total}$ (μm)	0,30 ± 0.07	0,31 ± 0.15	0,31 ± 0.12
$r_{eff, Fin}$ (μm)	0,16 ± 0.03	0,17 ± 0.03	0,16 ± 0.03
$r_{eff, Grossier}$ (μm)	2,20 ± 0.41	2,20 ± 0.61	2,16 ± 0.49
Re (η)	1,43 ± 0.29	1,44 ± 0.24	1,44 ± 0.26
Im (η)	0,017 ± 0.002	0,019 ± 0.003	0,017 ± 0.002
ω_0 (440nm)	0,88 ± 0.18	0,88 ± 0.16	0,88 ± 0.17

Tableau 3.4: Propriétés optiques et microphysiques moyennes à Lille en été (21 juin au 21 septembre, 33 points), hiver (21 décembre au 21 mars, 26 points) et au cours de l'année 2003 (103). Voir légende du tableau (3.2).

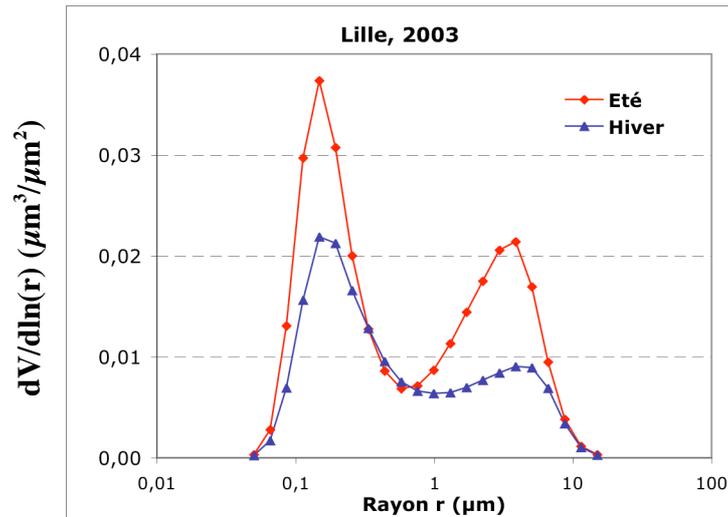


Figure 3.9: Distribution en volume moyenne au cours de l'hiver 2003 (21 décembre au 21 mars, bleu) et en été 2003 (21 juin au 21 septembre, rouge). Voir la légende de la figure (3.8).

En comparant les propriétés optiques et microphysiques moyennes au cours de l'année 2003 à Lille (tableau 3.4) et au-dessus des 71 stations européennes de 1994 à 2007 (tableau 3.2), on note:

- Une valeur d' $AOT_{AERONET,Total}$ légèrement plus importante (0.28 contre 0.22) au cours de l'année 2003 à Lille qu'au-dessus des 71 stations européennes de 1997 à 2003,
- Des aérosols en moyenne de taille similaire et dominés par de fines particules à Lille au cours de l'année 2003 et au-dessus des 71 stations européennes de 1997 à 2003 (α entre 1.35 et 1.43, $r_{eff,Fin}$ et $r_{eff,Grossier}$ similaires et la valeur d' $AOT_{AERONET,Fin}$ représente entre 86% et 89 % de la valeur d' $AOT_{AERONET,Total}$),
- Une partie réelle de l'indice de réfraction similaire (1.44),
- Des propriétés d'absorption moyennes des particules similaires à Lille en 2003 et au-dessus des 71 stations (1994-2007) (différence de $Im(\eta)$ et ω_0 respectivement inférieure et de l'ordre de la précision sur les mesures inverses photométriques).

En comparant les propriétés optiques et microphysiques moyennes au cours de l'été et de l'hiver 2003 à Lille (figure 3.9 et tableau 3.4), on observe:

- Des particules de taille moyenne similaire (α entre 1.31 et 1.37 et des rayons modaux et effectifs du mode fin et du mode grossier quasi-similaires) en été et hiver 2003,
- Une domination des particules fines que ce soit en été ou en hiver 2003. Les distributions moyennes en volume (figure 3.9) hivernales (bleu) et estivales (rouge) présentent un pic maximal à $0,15 \mu m$ et les valeurs moyennes d' $AOT_{AERONET,Fin}$ (tableau 3.4) représentent 91 à 92 % des valeurs moyennes d' $AOT_{AERONET,Total}$ en hiver et été 2003,
- Une valeur moyenne d' $AOT_{AERONET,Total}$ plus forte en été 2003 (0.32 contre 0.24 en hiver 2003) se traduisant par un contenu en aérosols plus important (augmentation de 40 % du pic du mode fin et de 57 % du pic du mode grossier de l'hiver à l'été 2003),
- Un contenu en particules fines plus important en hiver 2003 qu'en été 2003 ($V_{0,Fin}$ représente 60% de $V_{0,Totale}$ en hiver contre 50% en été 2003),
- Une valeur moyenne de $Re(\eta)$ (entre 1.43 et 1.44) et une capacité moyenne d'absorption de la lumière par les particules quasiment similaire (ω_0 de 0.88 et différence de $Im(\eta)$)

d'environ 10% c'est-à-dire bien inférieure à la précision sur cette mesure inverse) entre les deux saisons 2003.

Finalement, que ce soit au-dessus de Lille en 2003 ou au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest de 1994 à 2007, les aérosols semblent composés d'une majorité de fines particules faiblement absorbantes de taille et de propriétés optiques similaires. C'est le cas, de même, lorsqu'on compare les propriétés optiques et microphysiques moyennes des particules en été et hiver 2003 au-dessus de Lille. La seule différence entre les périodes hivernales et estivales à Lille en 2003 semble résider en un contenu en particules plus fort en été (qui se traduit par une valeur moyenne d' $AOT_{AERONET,Total}$ plus forte).

3.3.3. Caractéristiques des pics d'aérosols en Europe de l'Ouest

La section précédente se concentre sur l'investigation d'un changement de propriétés optiques des particules, cause éventuelle de la différence saisonnière (été et hiver) observée entre les mesures de $PM_{2,5}$ et d' $AOT_{AERONET}$. Pour cela, nous avons étudié les moyennes des propriétés optiques au cours de la période estivale et hivernale de l'année 2003 à Lille.

On note, cependant, une forte variabilité des mesures d' $AOT_{AERONET}$ au cours de ces 2 périodes (voir figure 3.4). Nous avons donc concentré notre étude sur les pics de fortes valeurs d' $AOT_{AERONET}$ afin d'en analyser les caractéristiques optiques et microphysiques. L'objectif est d'étudier l'accompagnement éventuel de ces pics en aérosols d'un changement de propriétés optiques des particules.

Alors que les propriétés des particules sont tout simplement moyennées au cours des périodes estivales et hivernales dans la section précédente, nous utilisons, à présent, une méthode statistique de sélection rigoureuse d'événements de pollution particulaire grâce aux mesures photométriques d' $AOT_{AERONET,Fin}$. Notons qu'utiliser les mesures photométriques d'épaisseur optique du mode fin ($AOT_{AERONET,Fin}$) plutôt que celles de la totalité des tailles de particules ($AOT_{AERONET,Total}$) permet de diminuer, en premier lieu, l'influence des particules de taille importante comme lors du transport à grande échelle de poussières désertiques en provenance d'Afrique. Nous privilégions, en effet, la pollution urbaine/industrielle composée, en majorité, de fines particules et plus facilement décelable au sol par les mesures de concentrations massiques en $PM_{2,5}$.

Parmi l'ensemble des mesures journalières d' $AOT_{AERONET,Fin}$ de chaque station, nous considérons, de façon arbitraire, que les 5 % des valeurs les plus fortes représentent des événements de pollution particulaire majeurs. On note $Z_{max,5\%}$, la valeur au-dessus de laquelle il nous reste 5 % de la totalité des mesures par station. Les valeurs $Z_{max,5\%}$ sont calculées (méthode de calcul décrite en annexe 1) pour chacune des 71 stations photométriques de la figure (3.7) puis moyennées par station et au cours de l'été (87 mesures) et l'hiver (14 mesures) 2003. Le tableau (3.5) présente les mesures moyennes des propriétés optiques et microphysiques dans le cas d'événements de pollution particulaire ($AOT_{AERONET,Fin} \geq Z_{max,5\%}$) en hiver et en été 2003.

AOT_{AERONET,Fin} ≥ Z_{Max,5%} par station		
Propriétés Moyennes	Été 2003	Hiver 2003
AOT_{AERONET,Total} (440 nm)	0,56 ± 0.21	0,62 ± 0.14
AOT_{AERONET,Fin} (440 nm)	0,51 ± 0.20	0,61 ± 0.14
α (440-676 nm)	1,56 ± 0.24	1,23 ± 0.25
V_{0,Totale} (μm³/μm²)	0,14 ± 0.05	0,10 ± 0.03
V_{0,Fin} (μm³/μm²)	0,08 ± 0.03	0,08 ± 0.02
r_{eff,Total} (μm)	0,24 ± 0.05	0,28 ± 0.05
r_{eff,Fin} (μm)	0,15 ± 0.03	0,23 ± 0.03
r_{eff,Grossier} (μm)	2,15 ± 0.33	2,62 ± 0.31
Re (η)	1,41 ± 0.05	1,44 ± 0.05
Im (η)	0,010 ± 0.004	0,012 ± 0.007
ω₀ (440 nm)	0,92 ± 0.03	0,93 ± 0.03
Nombre de Mesures	87	14

Tableau 3.5: Propriétés optiques et microphysiques moyennes (voir la légende du tableau 3.2) au-dessus des 71 stations de la figure (3.7) dans le cas d'événements de pollution définis comme faisant partie des 5 % de mesures d'AOT_{AERONET,Fin} de plus forte valeur par station en été (21 juin au 21 septembre, 87 points) et hiver (21 décembre au 21 mars, 14 points) 2003.

On observe, d'après le tableau (3.5), une mesure moyenne d'AOT_{AERONET,Total} plus forte lors d'événements de pollution en aérosols en hiver 2003 (0.62 contre 0.56 en été). Notons qu'on observe, cependant, un contenu en particules plus important en été qu'en hiver 2003 (V_{0,Totale} de 0.14 μm³/μm² contre 0.10 μm³/μm² en hiver).

Ainsi, mis à part une valeur moyenne d'AOT_{AERONET,Total} plus importante cette fois-ci en hiver (par rapport au tableau 3.4) et une taille des particules légèrement plus fine en été qu'en hiver 2003, cette étude plus approfondie ne vient que confirmer les résultats obtenus précédemment à Lille. En effet, nous pouvons noter les résultats suivants entre été et hiver 2003 concernant les 71 stations de la figure (3.7) :

- Une domination des particules fines, que ce soit en été ou en hiver 2003 (AOT_{AERONET,Fin} représentent plus de 90 % d'AOT_{AERONET,Total} et V_{0,Fin} représente plus de 50% de V_{0,Totale}),
- Des particules, en moyenne, légèrement plus fines en été qu'en hiver 2003 (différence de α supérieure à l'écart-type sur la mesure et α plus important en été ainsi que r_{eff,Total}, r_{eff,Fin} et r_{eff,Grossier} plus faibles en été),
- Un contenu en particules fines plus important en hiver qu'en été 2003 (V_{0,Fin} représente 80% de V_{0,Totale} en hiver contre 57% en été 2003),
- Un changement négligeable des propriétés d'absorption des particules (différence de Im(η) d'environ 17 % et de ω₀ égale à 0.01, dans les deux cas inférieure à la précision sur la mesure),

Finalement, les 5% de valeurs d'AOT_{AERONET,Fin} les plus fortes par station photométrique affichent, en moyenne, une domination des particules fines, que ce soit en été ou en hiver 2003. Par ailleurs, les particules sont observées légèrement plus fines en été qu'en hiver 2003 lors des pics d'AOT_{AERONET,Fin} et il est noté aucun changement significatif des propriétés d'absorption des particules entre été et hiver 2003. La légère variation de la taille des particules d'une saison à l'autre lors de pics de pollution ne semble, cependant, pas suffire à entièrement expliquer le changement de relation entre mesures d'AOT_{AERONET} et de PM_{2,5}

observé en été et hiver 2003 à Lille. Nous en déduisons une influence beaucoup plus importante de la distribution verticale des aérosols sur la relation entre concentration massique au sol et AOT photométriques.

3.4. Conclusions

Nous retenons de l'étude de variabilité temporelle de la pollution particulaire, une année 2003 à la qualité de l'air particulièrement mauvaise au-dessus de tous types de stations de mesures par rapport aux années 1998 à 2006. L'année 2003 est à la base de nombreuses études dans la suite de cette thèse. Elle correspond à la période active du radiomètre satellitaire POLDER-2.

De plus, le cycle saisonnier des $PM_{2.5}$ est bi-modal et formé principalement de deux pics de pollution majeurs en été et en hiver, le pic en $PM_{2.5}$ hivernal étant de plus forte amplitude (dû, en partie, à une inversion thermique lors de faibles températures). Par contre, la bi-modalité du cycle saisonnier des mesures d'AOT photométriques ainsi que le pic hivernal n'a pu être vérifié dû à un manque de mesures photométriques et cela, particulièrement en hiver.

Nous observons une bonne correspondance entre mesures de concentration massique et photométrique au sol à l'échelle de l'événement de pollution en aérosols à Lille au cours de l'année 2003. Ce qui n'est pas nécessairement le cas à l'échelle de la journée.

Lorsqu'on compare les mesures de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET}$ à Lille, on observe une corrélation significative ($R=0.60$) au cours de l'année 2003. De plus, il semble équivalent de comparer des mesures de $PM_{2.5}$ à des mesures d' $AOT_{AERONET,Total}$ ou à des mesures d' $AOT_{AERONET,Fin}$. Cette observation s'explique, en grande partie, par une domination des fines particules à Lille (comme au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest).

Les facteurs susceptibles d'induire de la dispersion dans la relation entre mesures de $PM_{2.5}$ et d'AOT photométriques ($AOT_{AERONET,Fin}$) sont les suivants:

- Un changement de propriétés optiques et microphysiques du type d'aérosol considéré (c'est-à-dire la densité volumique de la particule, la section efficace d'extinction, l'indice de réfraction et la distribution en taille des particules),
- Un changement de répartition verticale des aérosols,
- Une sous-estimation des mesures de concentration en $PM_{2.5}$ par l'instrument TEOM (de 20 à 50 % selon la station et la saison),
- Des moyennes temporelles des mesures de PM et d'AOT calculées sur deux périodes de temps différentes dans la journée et une réduction considérable du nombre de mesures d' $AOT_{AERONET}$ (les mesures de $PM_{2.5}$ représentent, au maximum, l'intégralité de la journée alors que les mesures d' $AOT_{AERONET}$ ne s'effectuent qu'en présence de lumière du jour et qu'en ciel clair),
- Des conditions d'humidité relative différentes pour les 2 types de mesures (prise de mesures d' $AOT_{AERONET}$ sous des conditions atmosphériques ambiantes et de $PM_{2.5}$ à 0 % d'humidité relative).

On observe des corrélations entre mesures de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET,Fin}$ à Lille plus satisfaisantes en hiver ($R=0.75$) ou en été ($R=0.72$) qu'au cours de la totalité de l'année 2003. De plus, on montre une relation très différente en été et hiver 2003 à Lille entre les mesures de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET,Fin}$ avec une pente plus forte (d'un facteur d'environ 1.7) en hiver qu'en été 2003.

Lorsqu'on se penche sur la caractérisation optique et microphysique des aérosols au-dessus de notre zone d'étude, on observe un aérosol moyen composé d'une majorité de particules fines faiblement absorbantes au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest (1994-2007) et, plus particulièrement, au-dessus de la station photométrique de Lille en 2003. Les propriétés optiques et microphysiques des particules au-dessus de l'Europe de l'Ouest (1994-2007) sont quasi-similaires à celles de l'étude de *Dubovik et al.* [2002] au-dessus de Créteil (1999) (ou du GSFC (1993-2000), mis à part une légère différence concernant l'absorption moyenne des particules).

Que ce soit en moyenne ou lors des 5% de valeurs d' $AOT_{AERONET}$ les plus fortes au cours des périodes d'été et d'hiver 2003, aucune différence majeure n'a été décelée entre les propriétés optiques moyennes des particules d'une saison à l'autre. De plus, la variation de la taille des particules entre les deux saisons lors de pics de pollution ne semble pas suffire à entièrement expliquer le changement de relation entre mesures d' $AOT_{AERONET}$ et de $PM_{2.5}$ observé entre l'été et l'hiver 2003 à Lille. Nous en déduisons une influence beaucoup plus importante de la distribution verticale des aérosols sur la relation entre concentration massique au sol et AOT photométrique.

Bien que nous n'ayons pas décelé de changement significatif des propriétés optiques et microphysiques moyennes, il est important de noter que nous n'éliminons pas la possibilité d'une influence de ces paramètres à l'échelle de la journée où ils peuvent présenter de fortes variations et entraîner de forts changements dans les mesures d'AOT.

4. Application des observations satellitaires au suivi de la pollution particulaire

L'étude précédente montre, malgré certaines limitations, une corrélation significative entre mesures d'AOT (dans ce cas, photométriques du réseau AERONET/PHOTONS) et mesures de concentration massique en $PM_{2.5}$. Nous nous intéressons dorénavant à la comparaison entre ces mêmes mesures en $PM_{2.5}$ au sol et les mesures d'AOT satellitaires.

L'utilisation de mesures d'AOT satellitaires plutôt que photométriques induit de nombreux facteurs supplémentaires susceptibles d'entraver une telle comparaison. Il faut, en effet, ajouter aux facteurs déjà existants influençant la relation entre mesures d'AOT photométriques et mesures de $PM_{2.5}$ l'influence d'une mauvaise modélisation possible de la surface et d'une co-localisation spatiale et temporelle éventuellement non appropriée entre la station au sol et le radiomètre satellitaire.

La co-localisation temporelle soulève la question de la comparaison d'une mesure satellitaire unique par jour à des mesures au sol à haute cadence d'échantillonnage. En effet, la mesure satellitaire doit-elle être comparée à une moyenne centrée sur l'heure de passage du satellite ou peut-elle être confrontée à une moyenne journalière des mesures au sol? Afin de répondre à cette question, nous comparons les moyennes journalières des mesures au sol et les valeurs de ces mêmes mesures centrées sur l'heure de passage du satellite. Cette étude est approfondie grâce à l'analyse de la variation diurne des mesures d'AOT photométriques et de concentration massique. Dans le même objectif d'analyse de la représentativité de la mesure unique satellitaire par rapport à la variation journalière du contenu en particules, nous avons étudié l'apport de deux mesures d'AOT satellitaires par jour provenant du radiomètre MODIS (à bord des plateformes TERRA et AQUA).

Nous traitons, par la suite, les difficultés qu'entraîne la comparaison d'une observation satellitaire couvrant une zone géographique représentant jusqu'à 21 x 18 Km au sol dans le cas du radiomètre POLDER à une mesure de $PM_{2.5}$ au caractère très local.

Un autre aspect important de cette étude est de valider les mesures satellitaires grâce aux mesures photométriques du réseau AERONET/PHOTONS au-dessus de notre zone et de notre période d'étude.

Nous confrontons, finalement, les mesures de $PM_{2.5}$ au sol aux observations satellitaires de plusieurs radiomètres (POLDER-2, MODIS-TERRA et POLDER-3) au cours de périodes différentes : d'avril à octobre 2003 dans le cas des radiomètres POLDER-2 et MODIS-TERRA et d'avril à octobre ainsi qu'au cours de la période hivernale des années 2005 et 2006 dans le cas de POLDER-3.

4.1. Co-localisation des mesures

4.1.1. Représentativité d'une mesure à l'heure du passage du satellite

Notre objectif est de comparer des mesures satellitaires à des mesures au sol (photométriques et de concentration en $PM_{2.5}$). Comme il a été vu dans le tableau (2.6) du chapitre précédent, les mesures au sol ont une cadence d'échantillonnage beaucoup plus importante (par exemple, plusieurs mesures de $PM_{2.5}$ par minute) que les mesures satellitaires (une mesure par jour pour les radiomètres MODIS et POLDER). Il serait donc possible de co-localiser temporellement la mesure unique satellitaire à la mesure au sol correspondant

précisément à l'heure de passage du satellite. Cela n'aurait cependant que peu de sens puisque l'atmosphère est constamment en mouvement, et une masse d'air observée lors de la fauchée horizontale du radiomètre satellitaire couvrant une surface de l'ordre du pixel est enregistrée par les instruments au sol (contenu dans la fauchée satellitaire) au cours d'une certaine période de temps. Les mesures au sol ne peuvent donc qu'être choisies au moins centrées autour de l'heure du passage du satellite.

Nous comparons, dans un premier temps, les moyennes journalières des mesures au sol aux moyennes horaires centrées sur le passage du satellite dans l'objectif de déterminer si la mesure satellitaire unique journalière est représentative de la moyenne journalière au sol. Notons que l'heure de passage du satellite est définie en heure « locale » (« Local Time » ou « LT », autrement dit l'heure solaire) et que les mesures au sol, que ce soit de concentration massique ou photométriques, sont fournies en heure GMT (appelées aussi UTC).

Afin de co-localiser temporellement les mesures au sol et satellitaires, il nous faut donc savoir quelle est la tranche horaire, en heure GMT, de passage des radiomètres satellitaires au-dessus d'une zone considérée au sol (définie par ses latitudes et longitudes). Nous rappelons dans le tableau (4.1) les sens et heures de passage des radiomètres POLDER (à bord des plates-formes ADEOS-2 et PARASOL) et MODIS (à bord des plates-formes AQUA et TERRA) au-dessus de l'équateur en « heure locale » (aussi appelée « LT »). On y présente aussi les tranches horaires (en heure « GMT ») approximatives de passage de ces derniers au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest (latitudes entre $\sim 35^\circ$ et $\sim 57.5^\circ$ et longitudes entre -10.5° et 22.5°) grâce au calcul présenté en annexe 2.

	POLDER-2 sur ADEOS-2	POLDER-3 sur PARASOL	MODIS sur TERRA	MODIS sur AQUA
Période active	avril 2003 - octobre 2003	décembre 2004 - aujourd'hui	décembre 1999 - aujourd'hui	avril 2002 - aujourd'hui
Heure de passage équateur	10h30 LT	13h30 LT	10h30 LT	13h30 LT
Sens de Passage équateur	Descendant	Ascendant	Descendant	Ascendant
Heures de passage Europe de l'Ouest (*)	9h-11h GMT	12h-14h GMT	9h-11h GMT	12h-14h GMT

Tableau 4.1: Période active, heure (« LT ») et sens de passage au-dessus de l'équateur des 4 radiomètres POLDER et MODIS utilisés dans cette étude. Les tranches horaires approximatives (en heure « GMT ») correspondant au passage du satellite au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest (latitudes entre $\sim 35^\circ$ et 57.5° et longitudes entre $\sim -10.5^\circ$ et 22.5°) calculées d'après la relation (4.1) sont indiquées.*

La figure (4.1) montre la comparaison entre moyennes journalières des mesures au sol ($PM_{2.5}$, et $AOT_{AERONET,Total}$) et valeurs de ces mêmes mesures centrées sur l'heure de passage du satellite (tableau 4.1) :

- À gauche, les valeurs moyennes des mesures horaires (resp. individuelles) de $PM_{2.5}$ en haut (resp. d' $AOT_{AERONET,Total}$ en bas) entre 9h et 11h d'avril à octobre 2003 (période

active de POLDER-2, tableau 4.1). Les données de $PM_{2.5}$ proviennent de 29 sites et celles d' $AOT_{AERONET,Total}$ de 8 stations photométriques.

- A droite, les valeurs moyennes des mesures horaires (resp. individuelles) de $PM_{2.5}$ en haut (resp. d' $AOT_{AERONET,Total}$ en bas) entre 12h et 14h du 1^{er} janvier 2005 au 31 décembre 2006 (début de la période active de POLDER-3). Les données de $PM_{2.5}$ proviennent de 45 stations et celles d' $AOT_{AERONET,Total}$ de 11 sites photométriques.

Les mesures d' $AOT_{AERONET,Total}$ à la base de la figure (4.1, bas) ont été effectuées par visée directe solaire et sont de niveau 2. Nous avons imposé un nombre minimum de 3 mesures individuelles d' $AOT_{AERONET,Total}$ (mesures horaires de $PM_{2.5}$) par jour et au moins une mesure individuelle d' $AOT_{AERONET,Total}$ (mesure horaire de $PM_{2.5}$) en dehors de la tranche horaire considérée (9h-11h ou 12-14h).

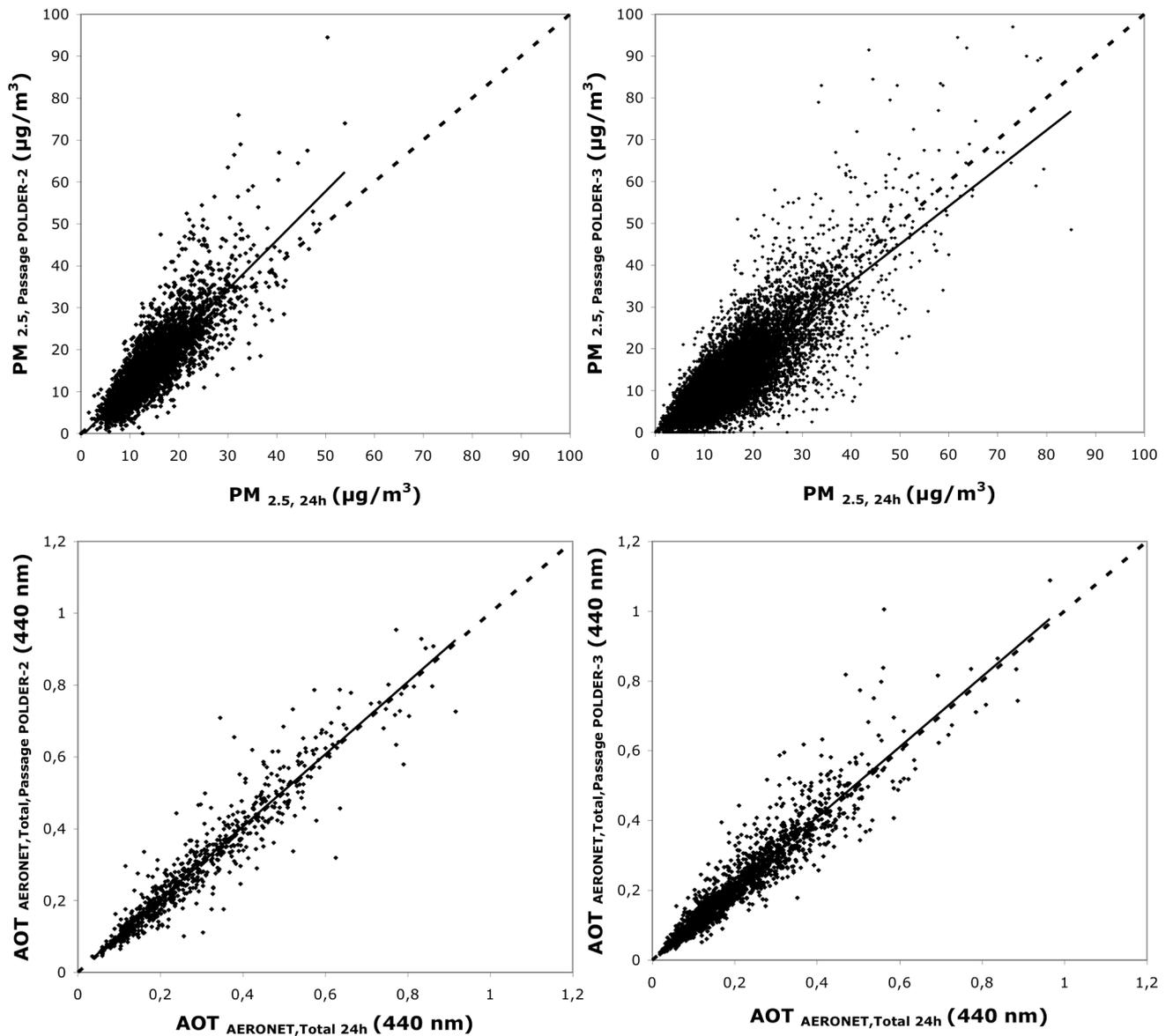


Figure 4.1: Comparaisons entre moyennes journalières de $PM_{2.5}$ (en haut, hors stations proches de grands axes de circulation) ou d' $AOT_{AERONET,Total}$ (en bas) et moyennes des mêmes mesures centrées sur l'heure de passage des satellites POLDER-2 et 3 (respectivement entre 9h et 11h à gauche ou entre 12h et 14h à droite) au-dessus de la France. Pour la tranche de 9h à 11h, la période est d'avril à octobre 2003 alors que de 12h à 14h, la période comprend les années 2005 et 2006.

- En haut à gauche, $PM_{2.5, 9h-11h} = 1.17 \pm 0.01 \times PM_{2.5, 24h} - 0.81 \pm 0.16$ avec $R = 0.85$, $RMS = 4.60$ et $N = 4883$,
- En haut à droite, $PM_{2.5, 12h-14h} = 0.91 \pm 0.00 \times PM_{2.5, 24h} - 0.50 \pm 0.06$ avec $R = 0.82$, $RMS = 4.65$ et $N = 22813$.
- En bas à gauche, $AOT_{AERONET,Total,9h-11h} = 1.006 \pm 0.012 \times AOT_{AERONET,Total,24h} + 0.003 \pm 0.004$ avec $R = 0.95$, $RMS = 0.05$ et $N = 771$,
- En bas à droite, $AOT_{AERONET,Total,12h-14h} = 1.008 \pm 0.008 \times AOT_{AERONET,Total,24h} + 0.005 \pm 0.002$ avec $R = 0.94$, $RMS = 0.04$ et $N = 1973$,

D'après les 4 graphes de la figure (4.1), en ce qui concerne les mesures au sol (de $PM_{2.5}$ ou d' $AOT_{AERONET,Total}$), que l'on compare les moyennes journalières aux moyennes horaires

centrées sur le passage des 2 radiomètres POLDER (9h-11h ou 12-14h), les pentes des droites de régression sont généralement proches de 1, les ordonnées à l'origine négligeables et le coefficient de corrélation supérieur à 0.80. La moyenne horaire centrée sur le passage des 2 radiomètres semble donc bien représenter, du moins en première approximation, la moyenne journalière des contenus en particules.

Cependant, on note une meilleure représentation du passage du satellite par la moyenne journalière d' $AOT_{AERONET,Total}$ que par la moyenne journalière de $PM_{2.5}$ au sol ($R > 0.90$ contre $R > 0.80$). D'après la figure (4.1), les mesures de $PM_{2.5,12h-14h}$ et de $PM_{2.5,24h}$ présentent la plus faible corrélation ($R=0.82$).

De plus, alors que la moyenne horaire de $PM_{2.5}$ entre 9h et 11h semble légèrement surestimer la moyenne journalière, on observe l'inverse entre les mesures de $PM_{2.5}$ et de $PM_{2.5, 12h-14h}$. Nous tenterons d'expliquer ces observations par la suite grâce à l'étude des cycles journaliers de mesures de $PM_{2.5}$ au sol.

Nous avons donc montré un bon accord général entre moyennes journalières et moyennes horaires centrées sur l'heure de passage des satellites des mesures au sol de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET,Total}$. Ce résultat est encourageant quant à l'éventuelle capacité des radiomètres satellitaires à évaluer le contenu en aérosols représentatif de la journée. Cela justifie, en partie, notre choix de confronter, par la suite, des mesures satellitaires uniques à des moyennes journalières de concentrations massiques au sol.

4.1.2. Variation diurne de l'AOT

Nous avons précédemment observé un bon accord général entre moyennes journalières des mesures au sol et moyennes centrées sur l'heure de passage du satellite. Il est important de noter que ce résultat est obtenu en comparant un grand nombre de mesures au-dessus de la France et pendant une longue période de temps. Certains jours montrent néanmoins de fortes variations horaires des mesures au sol. Nous nous intéressons donc à étudier le cycle journalier des mesures au sol afin d'en quantifier la variation moyenne au cours de la journée et d'en souligner d'éventuelles tendances particulières.

Nous présentons sur la figure (4.2) les cycles diurnes moyens des mesures d' $AOT_{AERONET,Total}$ à 440 nm. Ces valeurs ont été préalablement moyennées par station (7 à 10 sites photométriques) puis sur l'ensemble des sites de mesure disponibles au cours des années 2003 (507 mesures), 2005 (660 mesures) et 2006 (328 mesures) en France. À la base des mesures de la figure (4.2), nous avons imposé un minimum de 3 mesures individuelles d' $AOT_{AERONET,Total}$ par heure enregistrées par, au moins, une station de mesure au cours d'un minimum de 15 % des jours d'une année (minimum de 162 mesures individuelles à la base de chaque point).

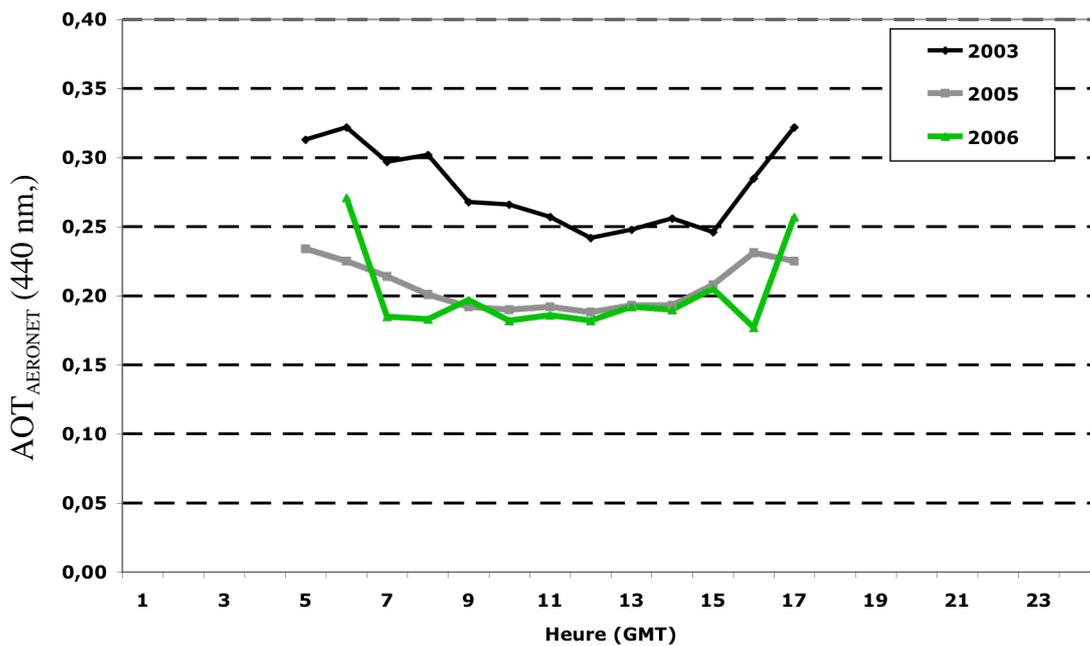


Figure 4.2: Cycles diurnes moyens des mesures d' $AOT_{AERONET,Total}$ (mesures directes de niveau 2 et de version 2 à 440 nm) en France en 2003 (noir), 2005 (gris foncé) et 2006 (gris clair). Les moyennes d' $AOT_{AERONET,Total}$ correspondent à au moins 162 mesures individuelles dans l'année par station.

Les cycles diurnes moyens d' $AOT_{AERONET,Total}$ (figure 4.2) semblent présenter, que ce soit en 2003, 2005 et 2006 (dans une moindre mesure), une diminution générale de 5h du matin à 12h puis une augmentation de 12h à 17h. Cette observation diffère de celle de *Smirnov et al.* [2002], où il est montré une croissance continue des mesures d' $AOT_{AERONET,Total}$ au cours de la journée au-dessus de la plupart des stations de type urbaine/industrielle du réseau AERONET et spécialement au-dessus du site du Goddard Space Flight Center (GFSC/NASA) à Washington de 1993 à 2001.

Les cycles moyens diurnes d' $AOT_{AERONET,Total}$ montrent une domination en intensité de l'année 2003 (en noir, figure 4.2) avec des valeurs extrêmes supérieures de 0.31 à 5h du matin (contre 0.23 à 5h 2005 et 0.27 à 6h en 2006), diminuant vers 0.24 à 12h (contre, à midi, 0.19 en 2005 et 0.18 en 2006) pour ensuite remonter vers une valeur moyenne de 0.32 à 17h (contre 0.23 à 16h en 2005 et 0.26 à 17h en 2006).

Comme sur la figure (4.2), nous présentons (figure 4.3) les cycles diurnes moyens des mesures d' $AOT_{AERONET,Total}$ (mesures directes totales de niveau 2 à 440 nm) au cours des périodes estivales (21 juin au 21 septembre) et hivernales (21 décembre au 21 mars) des années 2003, 2005 et 2006 en France. Les valeurs de la figure (4.3) ont subi les mêmes contraintes que celles à la base de la figure (4.2).

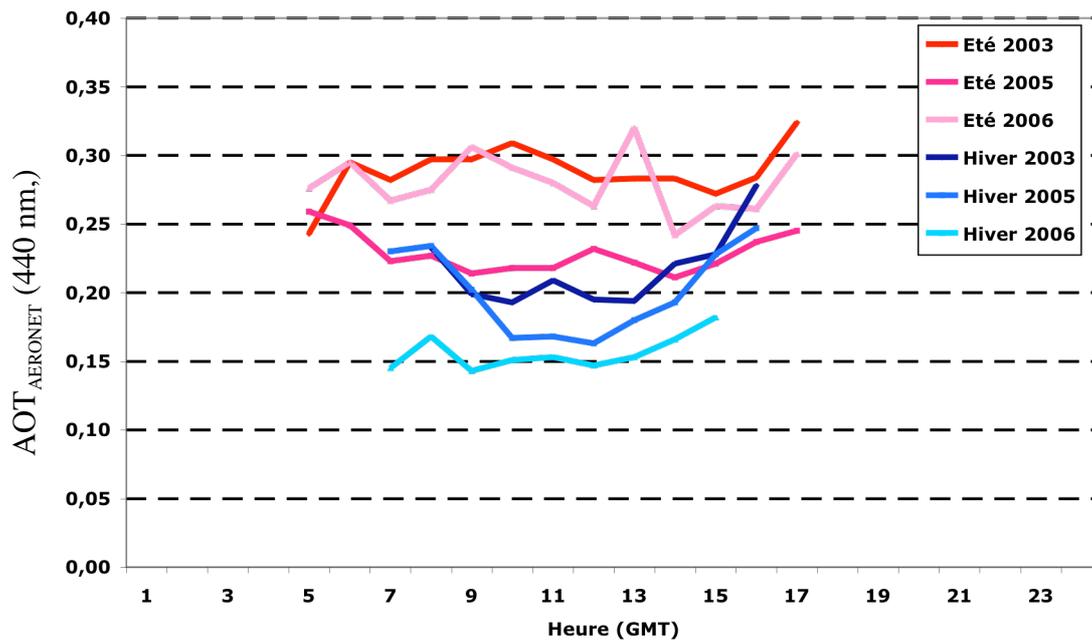


Figure 4.3: Cycles diurnes moyens des mesures d' $AOT_{AERONET,Total}$ (mesures directes de niveau 2 et de version 2 à 440 nm) en France en été (21 juin au 21 septembre, rouge-rose) et en hiver (21 décembre au 21 mars, bleu) 2003, 2005 et 2006. Les moyennes d' $AOT_{AERONET,Total}$ correspondent à au moins 39 mesures individuelles dans l'année par station.

D'après la figure (4.3), que ce soit en 2003, 2005 ou 2006, les mesures d' $AOT_{AERONET,Total}$ affichent des valeurs généralement plus faibles en hiver par rapport à l'été. Le tableau (3.4) du chapitre précédent souligne ce résultat en montrant une valeur moyenne d' $AOT_{AERONET,Total}$ plus faible en hiver par rapport à l'été 2003 à Lille. Rappelons qu'à l'inverse, nous avons montré des moyennes mensuelles et journalières de $PM_{2.5}$ au sol (figures 3.2 et 3.4) plus fortes en hiver 2003 par rapport à l'été 2003 à Lille.

Les valeurs du tableau (4.2) sont calculées à partir des figures (4.2) et (4.3) en regroupant les 3 années (2003, 2005 et 2006). Le tableau (4.2) montre l'écart entre les valeurs extrêmes, la moyenne ainsi que la variation (différence par rapport à la moyenne en %) du cycle diurne des mesures d' $AOT_{AERONET,Total}$ au-dessus de la France.

Cycle moyen diurne		AOT _{AERONET,Total} (440 nm)		
		Différence	Moyenne	Variation (%)
En moyenne (2003;05;06)	Ete	0,07	0,27	26
	Hiver	0,07	0,19	35
	Année	0,07	0,23	33

Tableau 4.2: Ecart entre valeurs extrêmes, valeur moyenne et variabilité moyenne diurne (en %) des mesures horaires d'AOT_{AERONET,Total} en France (7 à 10 sites photométriques) au cours de la période estivale, hivernale ou de l'année. L'étude est basée sur les années 2003, 2005 et 2006 réunies.

Comme les mesures photométriques ne s'effectuent qu'en ciel clair, des conditions plus humides pourraient néanmoins mettre en évidence un cycle journalier de mesures d'AOT_{AERONET,Total} plus prononcé.

D'après le tableau (4.2), on observe, en moyenne au cours des années 2003, 2005 et 2006 réunies, une variabilité moyenne diurne d'AOT_{AERONET,Total} de 33 %. Cette variation du cycle diurne est plus forte en hiver (35%) qu'en été (26%) en moyenne sur les 3 années.

Finalement, d'après le tableau (4.2), la variation moyenne d'AOT_{AERONET,Total} au cours des années 2003, 2005 et 2006 réunies (33%) ne représente qu'une variation moyenne de 0.07 au cours de la journée. Ceci semble indiquer, en première approximation et en plus des bons accords entre mesures journalières et mesures horaires centrées sur l'heure de passage du satellite (bas de la figure 4.1), une variation au cours de la journée en moyenne assez faible sur l'année pour que l'on puisse concevoir une comparaison entre une mesure unique journalière d'AOT satellitaire et une moyenne journalière d'AOT photométrique.

La figure (4.4) montre les cycles diurnes moyens des mesures d'AOT_{AERONET,Total} à 440 nm par classe de valeur d'AOT_{AERONET,Total} (moyennes journalières comprises entre 0 et 1 à 440 nm) au-dessus de la France au cours des années 2003, 2005 et 2006 réunies.

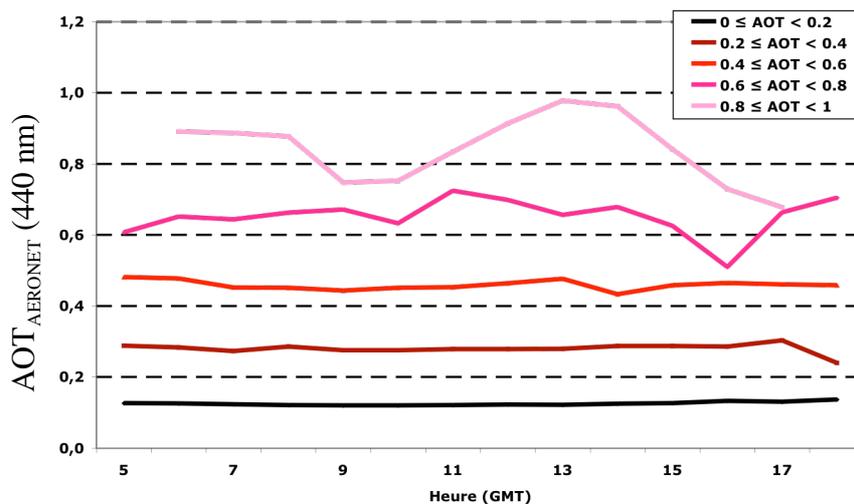


Figure 4.4 : Cycle moyen diurne par classes de valeur d' $AOT_{AERONET,Total}$ (5 classes basées sur les moyennes journalières d' $AOT_{AERONET,Total}$ comprises entre 0 et 1) au-dessus de la France au cours des années 2003, 2005 et 2006 réunies.

D'après la figure (4.4), une augmentation des moyennes journalières d' $AOT_{AERONET,Total}$ s'accompagne d'une variation croissante du cycle moyen diurne des mesures d' $AOT_{AERONET,Total}$. On montre, par exemple, une différence de 0.02 entre les maxima du cycle moyen diurne appartenant à la classe de plus faibles moyennes journalières d' $AOT_{AERONET,Total}$ (inférieures à 0.20, en noir) alors qu'elle est égale à 0.30 pour les plus fortes moyennes journalières d' $AOT_{AERONET,Total}$ (comprises entre 0.80 et 1, en rose). De plus, la différence moyenne de 0.07 observée dans le tableau (4.2) n'est atteinte qu'à partir de moyennes journalières d' $AOT_{AERONET,Total}$ supérieures à 0.60. La figure (4.4) souligne la faible variation des mesures d' $AOT_{AERONET,Total}$ et cela, tout particulièrement, au cours de journées présentant un faible contenu en aérosols dans la colonne atmosphérique.

Ce résultat a également été observé à partir des mesures des radiomètres MODIS-AQUA (survol de l'équateur l'après midi) et MODIS-TERRA (survol de l'équateur le matin) par *Ichoku et al.* [2005]. En effet, d'après cette étude, l'amplitude de la variation journalière des mesures d'AOT entre le matin (TERRA) et l'après-midi (AQUA) varie suivant les différentes régions du globe, mais augmente systématiquement avec l'épaisseur optique. De plus, ils n'observent aucune tendance particulière à l'augmentation ou à la diminution des AOT entre le matin et l'après-midi par région. Ils montrent, par ailleurs une différence en moyenne négligeable de 0.007 entre les mesures des deux radiomètres au-dessus de l'Europe de l'Ouest.

Nous avons vérifié ce résultat au cours de deux épisodes de pollution en Europe de l'Ouest défini, d'une part, entre le 10 et le 28 février 2003 et d'autre part, entre le 5 et le 28 août 2003. Notons que d'après la figure (3.4), ces deux épisodes montrent, en effet, de fortes valeurs de $PM_{2.5}$ et d'AOT photométriques à Lille ainsi qu'une certaine similitude à l'échelle de l'évènement.

La figure (4.5) présente la moyenne entre les mesures journalières d'AOT à 470 nm du radiomètre MODIS à bord des plateformes TERRA et AQUA au cours des épisodes hivernaux (à gauche) et estivaux (à droite) définis précédemment au-dessus des terres émergées d'une partie de l'Europe de l'Ouest.

L'épisode estival montre une carte moyenne (à gauche) bien plus fournie en mesures d'AOT satellitaires que l'épisode hivernal. Cette observation s'explique, non seulement, par une couverture nuageuse plus importante en hiver mais aussi par des mesures de luminances non inversées par le capteur MODIS au-dessus de surfaces très brillantes comme celles constituées de neige.

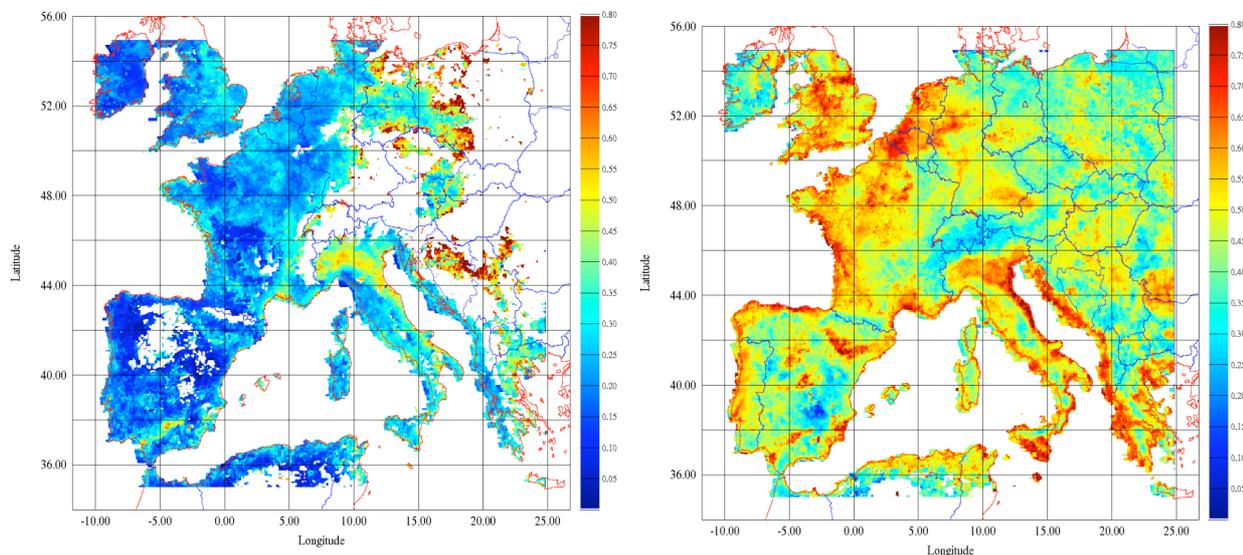


Figure 4.5 : Cartes moyennées d'AOT_{MODIS-TERRA/AQUA} à 470 nm dérivées du radiomètre MODIS (moyenne des mesures provenant des plateformes TERRA et AQUA) au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest au cours d'un épisode hivernal (10 au 28 février, à gauche) et estival (5 au 28 août, à droite) de pollution en aérosols au cours de l'année 2003. Les données utilisées sont celles de la collection 4.

On observe de fortes valeurs d'AOT au-dessus de l'Europe de l'Est en février. Remarquons, de même, que la plaine du Pô (zone au nord de l'Italie) présente les plus fortes valeurs d'AOT_{MODIS} que ce soit au cours de l'épisode de pollution estival ou hivernal (respectivement égales à environ 0.56 et 0.50). Les forts reliefs à l'entour et la zone géographique en forme de « cuvette » facilitent l'accumulation de particules polluantes au-dessus de cette région très industrialisée du nord de l'Italie. On remarque, de manière générale, de fortes valeurs d'AOT au-dessus de zones très industrialisées comme Marseille, la Grèce, les zones portuaires du sud des Pays-Bas (AOT de l'ordre de 0.30 en hiver et de 0.53 en été) et la Belgique, ou la côte Est de l'Angleterre (AOT de l'ordre de 0.24 en hiver et 0.41 en été). Ces fortes valeurs d'AOT satellitaires sont accompagnées de fortes valeurs de coefficient d'Angström, caractéristiques d'aérosols urbains ou industriels de faible taille (par exemple, de l'ordre de 1.00 en hiver et de 1.34 en été au-dessus de la Belgique et de la côte Est de l'Angleterre).

D'après la figure (4.5), notons qu'en plus de cartes moins fournies en mesures d'AOT satellitaires, l'épisode hivernal montre des valeurs d'AOT_{MODIS} généralement plus faibles qu'au cours de l'épisode estival. Ce résultat concorde avec les observations précédentes de plus faibles valeurs d'AOT photométriques sur la figure (4.3) en période hivernale par rapport à la période estivale.

En utilisant les mesures à la base des cartes de la figure (4.5), la valeur moyenne des différences entre les valeurs d'AOT provenant du radiomètre MODIS-TERRA et MODIS-AQUA à une résolution spatiale d'environ 10 x 10 Km est alors égale à 0.002 en période

hivernale et à 0.04 en période estivale. Cette variation plus forte en été, et par conséquent, lors de journées présentant généralement de plus forts contenus en aérosols, concorde avec les résultats de la figure (4.5).

La similitude des mesures d'AOT restituées par les radiomètres MODIS-TERRA et MODIS-AQUA survolant respectivement l'équateur le matin et l'après-midi confirme le peu de variabilité des mesures d'AOT photométriques précédemment observée entre 10h30 et 13h30 (figures 4.1 à 4.3 et tableau 4.2). Il semble, par conséquent, possible de concevoir une comparaison entre une mesure unique journalière d'AOT satellitaire et une mesure moyenne journalière d'AOT photométrique.

4.1.3. Variabilité temporelle et spatiale des PM

À l'égal du cycle diurne des mesures d'AOT photométriques de la figure (4.3), nous présentons (figure 4.6) les cycles diurnes moyens des mesures de $PM_{2.5}$ au cours des périodes estivales (21 juin au 21 septembre) et hivernales (21 décembre au 21 mars) des années 2003, 2005 et 2006 en France.

Les mesures de $PM_{2.5}$ ont été préalablement moyennées par station (21 à 31 stations de mesure de $PM_{2.5}$, éloignées des grands axes de circulation) puis sur l'ensemble des sites de mesure disponibles. Nous avons imposé un minimum d'une mesure horaire de $PM_{2.5}$ enregistrée par, au moins, une station de mesure au cours d'un minimum de 75 % des jours d'une saison.

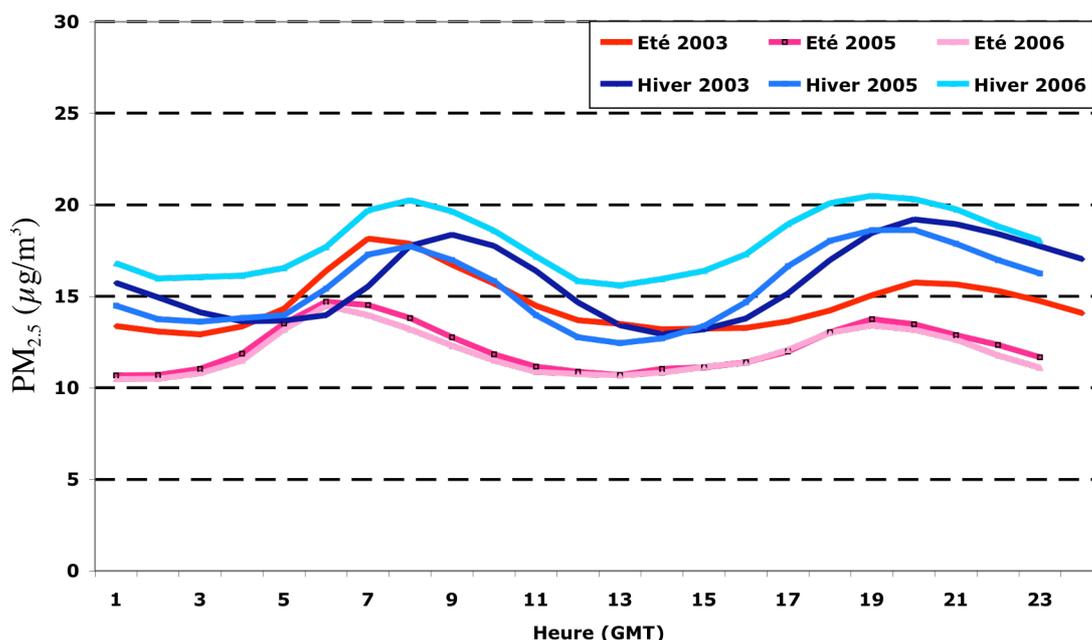


Figure 4.6: Cycles diurnes moyens des mesures de $PM_{2.5}$ (hors stations proches de grands axes de circulation) en France en été (rouge-rose) et en hiver (bleu) 2003, 2005 et 2006. Les moyennes de $PM_{2.5}$ correspondent à au moins 67 mesures individuelles dans l'année par station.

D'après la figure (4.6), que ce soit en période estivale ou hivernale, on observe une évolution bimodale du cycle diurne moyen de $PM_{2.5}$ en France en 2003, 2005 et 2006 avec un pic en début de matinée (entre 6 et 7h en été et entre 8 et 9h en hiver) et un pic en soirée (entre 19 et 20h pour les deux saisons).

Le pic en matinée observé sur la figure (4.6) s'explique par des températures généralement plus basses le matin en surface qu'en altitude facilitant des conditions atmosphériques stables et une hauteur de couche limite plus basse que le reste de la journée. Les heures de pointes matinales du trafic automobile viennent s'ajouter à ces conditions météorologiques idéales à l'accumulation de polluants. Ajoutons à cela les basses températures matinales (spécialement en hiver) favorisant la condensation des composés semi-volatiles (comme les nitrates ou les composants organiques) [Putaud *et al.*, 2004]. Ces types d'aérosols sont connus pour s'évaporer lors de la prise de mesure par le TEOM (ce qui contribue à la sous-estimation des $PM_{2.5}$) mais il est possible que cela ne concerne pas l'intégralité de la masse. De plus, le décalage d'environ une heure des pics de $PM_{2.5}$ en matinée entre la période hivernale et estivale semble confirmer l'influence du trafic automobile des heures de pointes sur l'augmentation des $PM_{2.5}$. En effet, on explique ce décalage temporel par la prise de mesures de $PM_{2.5}$ en heure GMT. Une heure légale typique des heures de pointes du trafic de $\sim 9h$ correspond, par exemple, à une heure GMT de $\sim 8h$ en hiver et de $\sim 7h$ en été.

Concernant le second pic de $PM_{2.5}$ observé en soirée, nous n'avons pas d'autre explication que l'émission de fines particules lors du trafic automobile des heures de pointe du soir. Cette explication est d'autant plus plausible que notre étude ne contient pas de stations rurales mais 84% des stations sont de type urbaine et 16 % de types périurbaines. Notons, par ailleurs, que le pic de $PM_{2.5}$ observé moins fort en soirée (particulièrement en période estivale) peut s'expliquer par une dispersion plus importante du trafic automobile par rapport à celui, mieux réglé, du matin.

D'après l'étude de *Janhäll et al.* [2006], le cycle moyen diurne hivernal (février à mars 2004) de concentrations massiques en fines particules (ainsi que du nombre de particules) montre un pic autour de 7h du matin dans la ville de Göteborg (Suède). Par contre, l'étude de *Janhäll et al.* [2006] ne met pas en évidence le pic que nous observons le soir. L'étude de *Wang and Christopher* [2003] qui porte sur les Etats-Unis (Alabama, 2002) montre, quant à elle, un cycle diurne moyen de $PM_{2.5}$ plus important en période estivale qu'en période hivernale. En toutes saisons, ces auteurs ont toute fois observé un pic de $PM_{2.5}$ le matin (7h en hiver et 6h en été) ainsi qu'un second pic moins intense en fin d'après-midi (resp. soirée) en été (resp. hiver).

Que ce soit en 2003, 2005 ou 2006, les mesures de $PM_{2.5}$ affichent des valeurs généralement plus fortes en hiver par rapport à l'été alors que nous avons observé l'inverse concernant le cycle saisonnier des mesures d' $AOT_{AERONET, Total}$ (figure 4.3). De plus, l'année 2006 présente les plus fortes valeurs de $PM_{2.5}$ en hiver.

La figure (4.6) semble, par ailleurs, expliquer la surestimation des mesures de $PM_{2.5}$ entre 9h et 11h par rapport à la moyenne journalière (figure 4.1) puisque le cycle moyen diurne affiche un pic matinal entre 6 et 9h dont les effets peuvent persister jusqu'à 11h. De même, la sous-estimation des mesures de $PM_{2.5}$ entre 12 et 14h s'explique par une absence de fortes valeurs à cette période de la journée.

À partir des valeurs à la base de la figure (4.6), il a été possible d'élaborer le tableau (4.3) suivant. On peut y observer la variation moyenne des cycles diurnes au cours de l'année, de la période estivale et hivernale en regroupant les années 2003, 2005 et 2006.

Cycle moyen diurne		PM _{2.5} (µg/m ³)		
		Différence	Moyenne	Variation (%)
En Moyenne (2003;05;06)	Ete	4,41	12,94	34
	Hiver	5,77	16,43	35
	Année	4,37	14,06	31

Tableau 4.3 : Différence entre valeurs minimales, maximales et les valeurs moyennes des cycles diurnes de PM_{2.5} (21 à 31 stations de mesure) en France ainsi que le pourcentage moyen de variation de ces mesures au cours de la journée en période estivale, hivernale ou au cours de l'années en regroupant les 3 années (2003, 2005 et 2006).

Le cycle diurne moyen des mesures de PM_{2.5} montre une variation similaire (31 % sur l'année et 35 % en hiver, tableau 4.3) à celle du cycle diurne moyen des mesures d'AOT photométriques (33% sur l'année et 35 % en hiver, tableau 4.2). Par contre, nous avons observé (tableau 4.2), une variation plus importante du cycle diurne moyen hivernal des mesures d'AOT_{AERONET} par rapport à la période estivale. Dans le cas des mesures de PM_{2.5}, la variation est quasi-similaire entre été et hiver (35 % en hiver contre 34 % en été). Finalement, la variation moyenne de PM_{2.5} au cours des années 2003, 2005 et 2006 réunies (31%) ne représente qu'une variation de ~ 4 µg/m³ au cours de la journée.

Ceci semble indiquer, en première approximation et en plus des bons accords entre mesures journalières et mesures horaires centrées sur l'heure de passage du satellite (figure 4.1), une variation des mesures de PM_{2.5} au cours de la journée en moyenne assez faible sur l'année.

Il est question, dans la suite de cette étude, de comparer des mesures dérivées de radiomètres satellitaires à des mesures photométriques ou de concentration massique en PM_{2.5} au sol, par définition, très locales. Comme il a été vu dans le chapitre 2 (tableau 2.6), les produits aérosols dérivés des radiomètres embarqués MODIS (à bord des plateformes TERRA et AQUA) et POLDER (à bord d'ADEOS-2 ou PARASOL) sont fournis à une résolution spatiale respective de 10 x 10 Km et de 21 x 18 Km.

L'utilisation de valeurs satellitaires moyennées au-dessus d'une zone géographique recouvrant plusieurs pixels autour de la station de mesure au sol permet alors, non seulement, de palier le manque de mesures satellitaires du fait de la couverture nuageuse mais aussi de privilégier davantage les épisodes de pollution à l'échelle régionale par rapport à ceux de caractère plus local. La condition nécessaire à un bon accord entre mesures d'AOT satellitaires et mesures au sol de PM_{2.5} est, cependant, une forte corrélation entre mesures dérivées de plusieurs stations au sein d'une zone géographique au sol dont la taille est à déterminer. Il nous reste donc à étudier la variabilité spatiale des mesures de concentration massique en fonction de la distance au sol pour valider l'approche satellitaire.

Parmi les 26 stations de mesure de $PM_{2.5}$ en France (en supprimant les stations proches de grands axes de circulation automobile) spatialement co-localisées d'au plus ~50 Km de distance entre elles, on peut utiliser 15 couples différents de stations fournissant au minimum 75 % (au moins 273 mesures co-localisées par an) de données au cours des années 2003, 2005 et 2006. Les mesures de $PM_{2.5}$ de cette étude sont des moyennes journalières faites à partir d'au moins 75 % de données (au moins 18 mesures par jour). Les 15 couples de stations ainsi utilisés sont listés dans le tableau (4.4) et représentés par un carré noir et un point rouge sur la carte de la figure (4.7).

1 ^{ere} Station ●			2 ^{eme} Station □			Distance (Km)
N°	Latitude (°) N	Longitude (°) E	N°	Latitude (°) N	Longitude (°) E	
7004	45,80	3,11	7008	45,78	3,10	2,21
5064	49,52	0,11	5074	49,49	0,10	3,19
12021	43,62	1,44	12030	43,59	1,44	3,92
25036	49,44	1,09	25043	49,40	1,10	4,46
11024	50,62	3,08	11029	50,64	3,02	5,57
4002	48,93	2,30	4055	48,86	2,35	8,24
4055	48,86	2,35	4156	48,90	2,45	8,65
4034	48,78	2,38	4055	48,86	2,35	9,97
4002	48,93	2,30	4156	48,90	2,45	11,82
4034	48,78	2,38	4156	48,90	2,45	14,83
4002	48,93	2,30	4034	48,78	2,38	18,07
10009	51,01	2,33	10025	50,95	1,86	33,56
4002	48,93	2,30	18043	49,26	2,47	38,85
4156	48,90	2,45	18043	49,26	2,47	39,89
4055	48,86	2,35	18043	49,26	2,47	44,91

Tableau 4.4: Couples de stations de mesures de $PM_{2.5}$ au sol en France (15 pour l'ensemble des années 2003, 2005 et 2006) désignées par leur numéro, localisées par leur latitude et longitude et dont la distance entre elles (dernière colonne) est inférieure à ~50 Km.

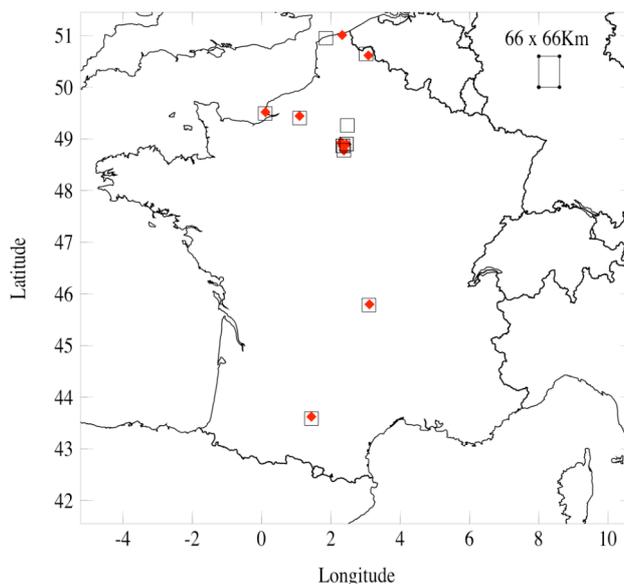


Figure 4.7 : Co-localisation des 15 couples de stations du tableau (4.4). Les stations désignées par des points rouges sont co-localisées aux stations désignées par des carrés noirs. En référence, on montre une surface au sol de 66 x 66 Km (carré noir en haut à droite) sur la figure de droite.

Nous avons comparé les mesures co-localisées de chaque couple de stations de $PM_{2.5}$ du tableau (4.4) au cours des années 2003, 2005 et 2006. Il en résulte la figure (4.8) présentant les coefficients de corrélation (figure 4.8a), les pentes des droites de régression (figure 4.8b) et les ordonnées à l'origine des droites de régression (figure 4.8c) concernant les 15 couples de stations du tableau (4.5).

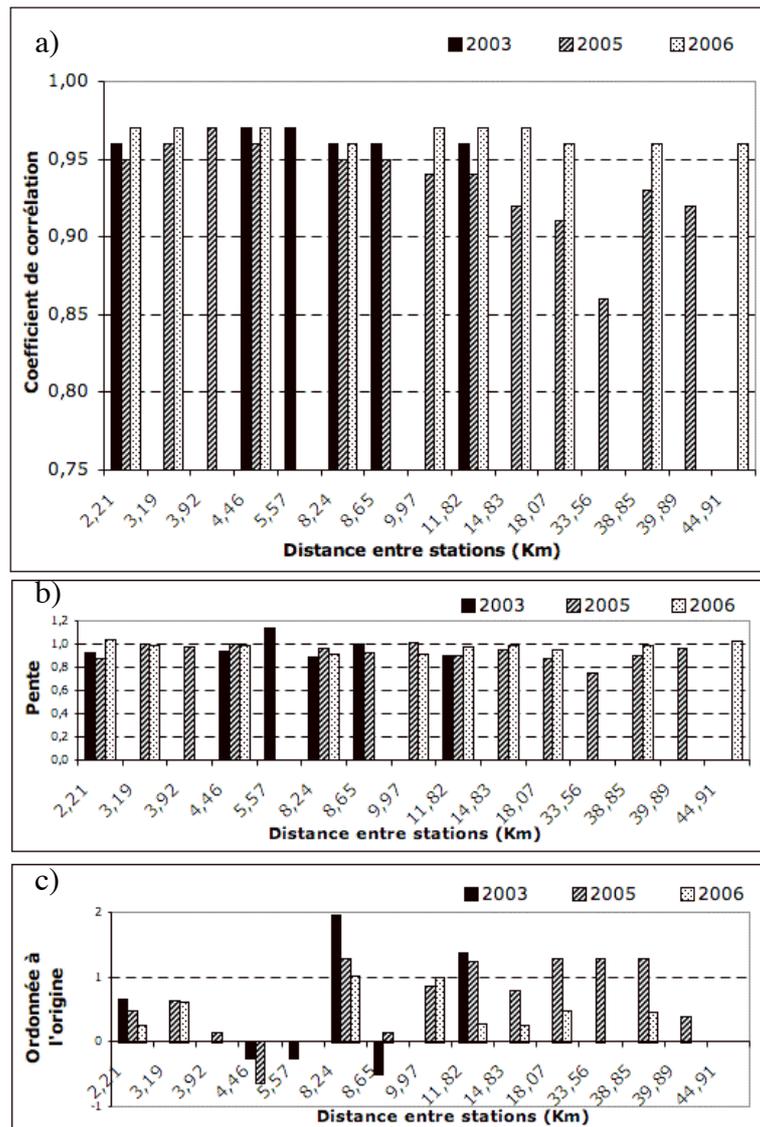


Figure 4.8: Résultats des corrélations entre moyennes journalières de $PM_{2.5}$ des 15 stations co-localisées de la figure (4.7) au cours des années 2003, 2005 et 2006 : Coefficient de corrélation (a), pente des droites de régression (b) et ordonnée à l'origine des droites de régression (c) par couple de stations et par année.

Davantage de stations de mesures dont la distance entre elles est inférieure à ~50 Km sont disponibles au cours des années 2005 et 2006 (respectivement 13 et 10 couples de stations) par rapport à l'année 2003 (6 couples de stations). Il en résulte, dans le cadre de notre étude, un nombre inférieur de mesures de $PM_{2.5}$ coïncidentes en 2003 (1995 au total) par rapport aux années 2005 et 2006 (respectivement 3966 et 2873 au total).

Pour chaque couple de stations (parmi 15), on moyenne les résultats de la figure (4.8) (coefficient de corrélation, pente et ordonnée à l'origine de la droite de régression) au cours des années 2003, 2005 et 2006 réunies. On observe les résultats suivants:

- Un grand nombre de coefficients de corrélation supérieurs ou égaux à 0.95 (80 % soit 12 couples de stations parmi les 15),

- Un grand nombre de valeurs de pentes de droites de régression entre 0.90 et 1.10 (87 % soit 13 couples de stations parmi les 15),
- Un grand nombre de valeurs d'ordonnées à l'origine des droites de régression comprises entre 1 et $-1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (87 % soit 13 couples de stations parmi les 15), donc relativement faibles.

Nous pouvons donc conclure par un accord satisfaisant de l'ensemble des données provenant des 15 couples de stations au cours des années 2003, 2005 et 2006. Autrement dit, on observe, dans l'ensemble, peu de variation spatiale des mesures de $\text{PM}_{2.5}$ dans un rayon au sol de 50 Km.

Nous pouvons, toutefois, nuancer cette conclusion en mentionnant que quelques couples de stations montrent une pente de droite de régression et un coefficient de corrélation plus faible ainsi qu'une ordonnée à l'origine non négligeable. C'est le cas du couple de stations distantes de 33.56 Km en région Nord-Pas-de-Calais (dans les villes de Petite Synthe, et de Sangatte) présentant un coefficient de corrélation de 0.86, une pente de 0.75 et une ordonnée à l'origine de 1.29) en 2005. Notons que ce coefficient de corrélation reste cependant satisfaisant. Cet accord moins prononcé pourrait provenir de conditions très particulières en termes de sources d'émission (stations à proximité industrielle) et de spécificités météorologiques (stations proches des côtes).

En 2006, le couple de stations de mesures de $\text{PM}_{2.5}$ distant notamment de 45 Km présente un coefficient de corrélation de 0.96, une pente proche de 1 et une ordonnée à l'origine négligeable (proche de 0) ainsi qu'un nombre significatif de mesures coïncidentes au cours de l'année (275). Ainsi, nous n'observons pas de dépendance claire entre la distance (jusqu'à ~ 50 Km) séparant deux stations de mesure et l'accord entre les mesures de celles-ci en 2006. Nous ne sommes pas en mesure de vérifier cette observation en 2003 dû à une absence de stations distantes de plus de 12 Km. Par contre, on note une légère diminution du coefficient de corrélation en 2005 (toujours supérieur à 0.85) lorsque la distance séparant les stations co-localisées est supérieure à 10 Km.

L'étude de *Ichoku et al.* [2002] propose une analyse et une validation spatio-temporelle des produits aérosols dérivés du radiomètre MODIS. Dans cette étude, il a été calculé la valeur satellitaire d'AOT moyennée au-dessus de plusieurs régions du monde dans un carré de côté plus ou moins important au sol (30 x 30 Km, 50 x 50 Km, 70 x 70 Km et 90 x 90 Km). D'après cette étude, la dépendance de la valeur d'AOT MODIS à la zone sur laquelle elle est moyennée est généralement faible et aucune tendance spécifique n'a été observée entre valeur moyenne d'AOT satellitaire et surface sur laquelle celle-ci est moyennée. *Ichoku et al.* [2002] ont donc choisi, dans la suite de leur étude, de moyenner les mesures d'AOT MODIS sur une zone au sol de 50 x 50 Km centrée sur la station photométrique, celle-ci présentant un nombre de données statistiques suffisant.

La variation spatiale généralement négligeable des mesures de $\text{PM}_{2.5}$ au sol montre, au moins en partie, qu'il est possible de comparer des mesures très locales à des observations satellitaires moyennées sur une zone géographique relativement étendue (rayon maximal de 50 Km). Nous choisissons, par la suite, de moyenner les mesures satellitaires dans un carré géographique au sol dont le centre est la station de mesure en $\text{PM}_{2.5}$ au sol. Un bon accord entre la mesure satellitaire et de $\text{PM}_{2.5}$ requiert donc, selon notre étude, une zone d'au plus ~ 70 Km x 70 Km (carré dont la diagonale est égale à 100 Km) centrée sur la station de mesure au sol. Nous choisissons, par la suite, de moyenner les mesures satellitaires sur une

zone géographique de 66 Km (ou 0.6° , voir carré noir sur la figure 4.7) de côté centrée sur la station de mesure considérée. Comme les pixels des radiomètres POLDER ou MODIS sont référencés par leur centre, cette surface au sol de 66 x 66 Km représente un maximum de 7 x 7 pixels MODIS et 3 x 4 pixels POLDER.

Notre étude de variabilité spatiale des mesures de $PM_{2.5}$ au sol est complétée dans la section suivante par une comparaison des données d'AOT satellitaires moyennées sur 2 zones différentes au sol ($\sim 66 \times 66$ Km et $\sim 18 \times 18$ Km) aux mesures locales photométriques issues de plusieurs stations en France et au cours des années 2003 (dans le cas du radiomètre POLDER-2 et MODIS-TERRA) et 2005-2006 (dans le cas du radiomètre PARASOL).

4.2. Validation régionale des produits satellitaires

Nous avons utilisé les mesures photométriques du réseau AERONET/PHOTONS pour valider les produits aérosols satellitaires des radiomètres POLDER-2, POLDER-3 et MODIS-TERRA. Les mesures d'AOT satellitaires sont confrontées, non seulement, aux mesures d'AOT photométriques mais aussi aux mesures d'intégration de la distribution en volume, V_0 , information intermédiaire entre la mesure optique et la concentration massique. Ces dernières renseignent, en effet, sur le contenu en particules de la colonne atmosphérique et sont, par là, plus proches d'une mesure de contenu en particules au sol de $PM_{2.5}$.

Les mesures photométriques du réseau AERONET/PHOTON utilisées dans cette étude répondent aux 3 premières contraintes de *Dubovik et al.* [2000] et leurs moyennes journalières correspondent à au moins 3 mesures inverses photométriques. Les mesures satellitaires sont moyennées sur un carré au sol de $0.6 \times 0.6^\circ$ (66 Km x 66 Km, centré sur la station photométrique considérée) comprenant au moins 6 pixels valides (non nuageux).

La figure (4.9) montre la comparaison entre mesures photométriques (du mode fin et du mode total des particules) et mesures d'AOT satellitaires au-dessus de 10 stations photométriques en France d'avril à octobre 2003 dans le cas de POLDER-2 (haut de la figure 4.9) et au-dessus de 8 stations en France au cours des années 2005 à 2006 dans le cas de POLDER-3 (bas de la figure 4.9).

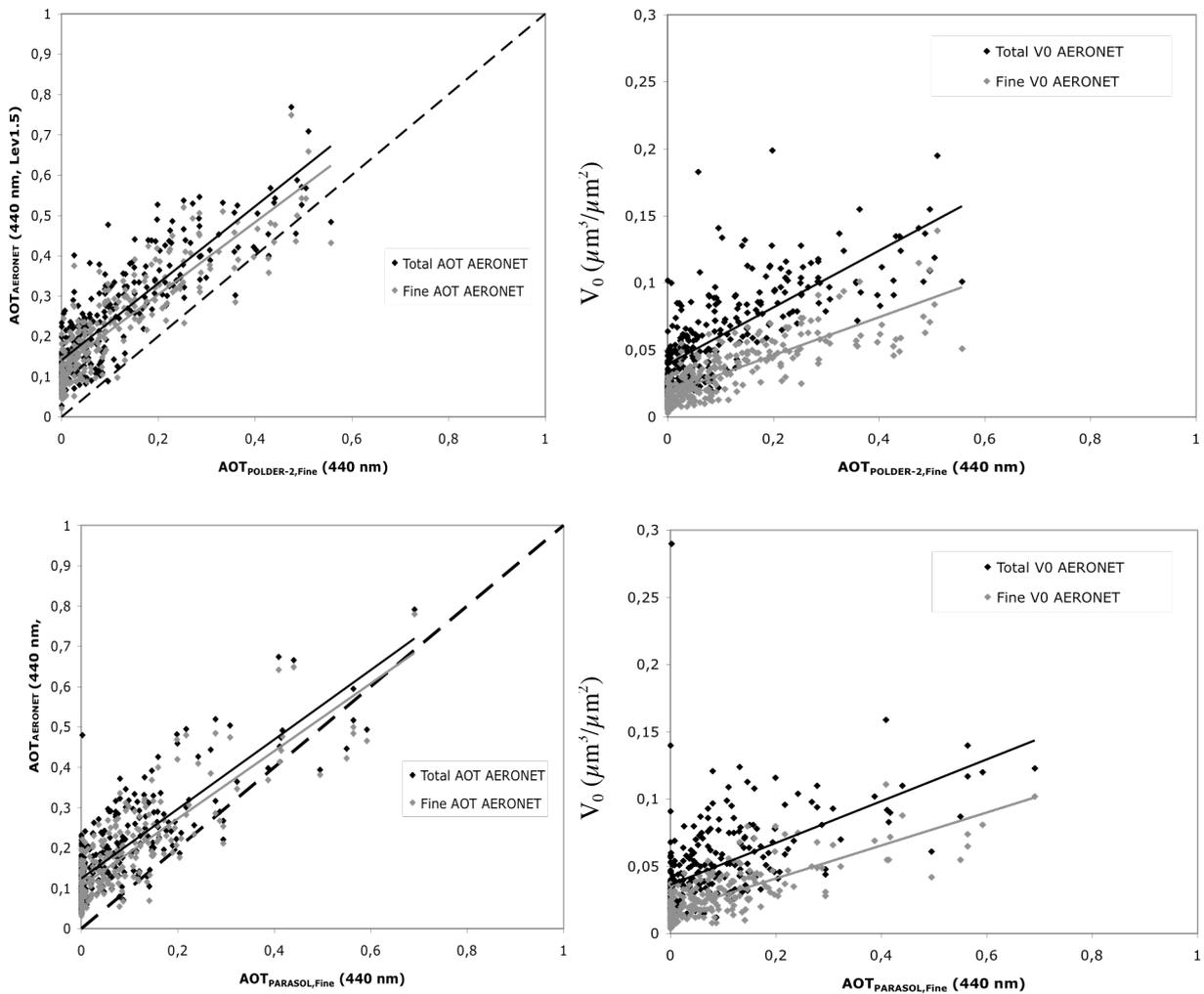


Figure 4.9 : Comparaison entre mesures photométriques (d' $AOT_{AERONET}$ à gauche et intégration de la distribution en volume, V_0 à droite) et mesures d'AOT satellitaires (POLDER-2 en haut et PARASOL en bas) au-dessus de la France (total de 23 stations photométriques) d'avril à octobre 2003 dans le cas de POLDER-2 et au cours des années 2005 à 2006 dans le cas de POLDER-3. Les mesures photométriques concernent la totalité (en noir) ou le mode fin (en gris, défini par le point d'inflexion) de la distribution en taille des particules. Les mesures journalières photométriques répondent aux 3 premiers critères de précision de Dubovik et al. [2000] et sont sélectionnées avec un minimum de 3 mesures inverses par jour. Les mesures d'AOT satellitaires sont moyennées dans un carré de 66 x 66 Km (centré sur la station photométrique) comportant au moins 6 pixels valides.

Le tableau (4.5) présente les résultats des corrélations de la figure (4.9) c'est-à-dire les droites de régression, le coefficient de corrélation et son erreur ainsi que le nombre de mesures co-localisées.

AOT satellitaire - Mesures Photométriques en France	
POLDER-2	$AOT_{AERONET,Total} = 0.95 \pm 0.03 AOT_{POLDER-2,Fin} + 0.14 \pm 0.00, R=0.86, RMS=0.07$
	$V_{0,AERONET,Total} = 0.21 \pm 0.01 AOT_{POLDER-2,Fin} + 0.04 \pm 0.00, R=0.74, RMS=0.024$
	$AOT_{AERONET,Fin} = 0.89 \pm 0.03 AOT_{POLDER-2,Fin} + 0.12 \pm 0.00, R=0.87, RMS=0.06$
	$V_{0,AERONET,Fin} = 0.14 \pm 0.00 AOT_{POLDER-2,Fin} + 0.02 \pm 0.00, R=0.81, RMS=0.01$
POLDER-3	$AOT_{AERONET,Total} = 0.86 \pm 0.04 AOT_{POLDER-3,Fin} + 0.12 \pm 0.00, R=0.81, RMS=0.07$
	$V_{0,AERONET,Total} = 0.15 \pm 0.01 AOT_{POLDER-3,Fin} + 0.04 \pm 0.00, R=0.57, RMS=0.03$
	$AOT_{AERONET,Fin} = 0.84 \pm 0.03 AOT_{POLDER-3,Fin} + 0.10 \pm 0.00, R=0.84, RMS=0.06$
	$V_{0,AERONET,Fin} = 0.12 \pm 0.01 AOT_{POLDER-3,Fin} + 0.02 \pm 0.00, R=0.77, RMS=0.01$

Tableau 4.5: Résultats des comparaisons entre mesures satellitaires et photométriques de la figure (4.9) concernant, de haut en bas, les radiomètres POLDER-2 (N=291) et POLDER-3 (N=271).

En ce qui concerne le radiomètre POLDER (POLDER-2 à bord d'ADEOS-2 et POLDER-3 à bord de PARASOL) :

- Que ce soit en utilisant les mesures d' $AOT_{AERONET}$ ou du contenu volumique de la colonne atmosphérique $V_{0,AERONET}$, on observe des corrélations généralement satisfaisantes affichant un coefficient de corrélation supérieur à 0.70 (mis à part la comparaison entre $AOT_{POLDER-3,Fin}$ et $V_{0,AERONET,Total}$ où $R=0.57$). De plus, lorsqu'on compare les mesures d'AOT satellitaires aux mesures d'AOT AERONET, on observe une pente généralement proche de 1 (entre 0.84 et 0.95) et une ordonnée à l'origine faible, comprise entre 0.10 et 0.14,
- Que ce soit en utilisant les mesures d' $AOT_{AERONET}$ ou de $V_{0,AERONET}$, on observe de plus fortes corrélations entre mesures d' AOT_{POLDER} (2 ou 3) et mesures photométriques du mode fin plutôt que du mode total des particules (Par exemple, $R=0.81$ entre $V_{0,AERONET,Fin}$ et $AOT_{POLDER-2,Fin}$ alors que $R=0.74$ entre $V_{0,AERONET,Total}$ et $AOT_{POLDER-2,Fin}$). Cette observation est cohérente avec le fait que le radiomètre POLDER se prête bien à la télédétection des fines particules. En effet, les fines particules polarisent le rayonnement solaire incident [Vermeulen et al., 2000] et le rayonnement polarisé reçu par le radiomètre POLDER provient donc en majeure partie des particules du mode d'accumulation.

La validation globale de la restitution des mesures d' $AOT_{POLDER-2}$ et $AOT_{POLDER-3}$ au-dessus des terres n'a pas encore été publiée. Par contre, il est observé une corrélation très satisfaisante entre $AOT_{POLDER-2,Total}$ et $AOT_{AERONET,Total}$ au-dessus des océans du globe d'après Goloub et al. [2005] (avec $R=0.94$, une pente de 1.11 et une ordonnée à l'origine négligeable). Certaines études régionales de validation des $AOT_{POLDER-2}$ et des $AOT_{POLDER-3}$ ont montré de fortes corrélations entre $AOT_{AERONET}$ et AOT_{POLDER} au-dessus des terres. C'est

le cas de l'étude de *Fan et al.* [2007], où il a été observé un accord général très satisfaisant entre $AOT_{AERONET,Fin}$ et $AOT_{PARASOL,Fin}$ au-dessus des villes de Beijing ($R=0.96$ avec $N=78$) et de Xianghe ($R=0.95$ et $N=70$) en Asie du Nord Est entre mars 2005 et mai 2006. D'après *Fan et al.* [2007], des résultats équivalents ($R=0.90$ et pente de 1.04) sont observés en utilisant les mesures d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ au-dessus de Beijing malgré un nombre de données co-localisées bien plus réduit (18 mesures d'avril à octobre 2003). De plus, d'après *Hodzic et al.* [2006], il a été observé une bonne corrélation entre $AOT_{POLDER-2,Fin}$ et $AOT_{AERONET,Fin}$ du 1^{er} au 15 août 2003 au-dessus de l'Europe ($R=0.72$ et $N=78$). Notons, finalement, que le site officiel du radiomètre POLDER (http://smc.cnes.fr/POLDER/Fr/A_produits_scie.htm) fournit des informations supplémentaires sur la comparaison entre mesures d' $AOT_{POLDER-2}$ et photométriques au-dessus de zones géographiques où dominant des particules de feux de végétation (Afrique Australe, Amazonie, Asie du Sud-Est), de pollution urbaine ou des poussières désertiques. Ces meilleurs résultats ont été obtenus en limitant le mode fin photométrique à un rayon de $0.35 \mu m$ alors que nous présentons (figure 4.9) le produit standard d'AOT du mode fin AERONET (défini par le point d'inflexion de la distribution en taille c'est-à-dire environ $0.6 \mu m$).

- Le radiomètre POLDER (2 et 3) semble légèrement sous-estimer les mesures photométriques (la majorité des points est au-dessus de la droite 1 : 1).
- On observe une validation des AOT satellitaires légèrement meilleure dans le cas du radiomètre POLDER-2 que dans le cas du radiomètre POLDER-3. Cette observation pourrait s'expliquer par des conditions atmosphériques différentes au cours des années 2005 et 2006 par rapport à la période d'avril à octobre 2003. Nous y reviendrons par la suite.

Le tableau (4.6) montre un échantillon des tests de sensibilité imposés aux mesures d' $AOT_{AERONET,Fin}$ et d'AOT satellitaires (radiomètre POLDER-2 en haut et POLDER-3 en bas). On peut y voir les paramètres de corrélation (pente, ordonnée à l'origine des droites de régression, coefficient de corrélation et le nombre de mesures co-localisées) entre mesures d' $AOT_{AERONET,Fin}$ et d' $AOT_{POLDER,Fin}$ à 440 nm dans le cas de l'application de différentes contraintes sur les mesures photométriques et/ou satellitaires.

En plus de l'application de plusieurs des contraintes de *Dubovik et al.*, [2000], nous choisissons de sélectionner les moyennes journalières d' $AOT_{AERONET,Fin}$ faites à partir d'un nombre de mesures inférieur ou égal à 3. En termes de co-localisation spatiale des mesures photométriques et satellitaires, nous avons choisi de moyenniser les mesures satellitaires successivement dans un carré de $0.60 \times 0.60^\circ$ (environ 3 x 4 pixels POLDER) puis de $0.16^\circ \times 0.16^\circ$ (environ 1 pixel POLDER). Au sein de cette zone géographique, nous avons imposé une contrainte sur le nombre de pixels (supérieur à 1 ou 6) à partir duquel est calculée la valeur moyenne satellitaire. Finalement, nous avons fait varier les indices de qualité sur l'inversion des réflectances polarisées (IQP) et sur les conditions de géométrie de visée des mesures (IQV) dérivées du radiomètre POLDER (2 et 3) et précédemment définis (formules 2.12 et 2.13).

France (23 stations, 04-10 2003)				
Mesures d'AOT _{POLDER-2,Fin} (440 nm)	Moyenne spatiale	Critères sur indices de qualité	Nombre de pixels	Mesures d'AOT _{AERONET, fin} (440 nm) (*)
	Carré de 0,16°x0,16° centré sur station	Aucun	1	0.79,0.13, 0.86 ,152
	Carré de 0,6°x0,6° centré sur station	Aucun	≥ 1	0.81,0.13, 0.84 ,355
			≥ 6	0.89,0.12, 0.87 ,289
		IQV ≥ 70% IQP ≥ 0%	≥ 6	0.88,0.12, 0.88 ,231
IQV ≥ 0% IQP ≥ 70%	≥ 6	0.81,0.14, 0.84 ,195		

France (23 stations, 2005-2006)				
Mesures d'AOT _{POLDER-3,Fin} (440 nm)	Moyenne spatiale	Critères sur indices de qualité	Nombre de pixels	Mesures d'AOT _{AERONET, fin} (440 nm) (*)
	Carré de 0,16°x0,16° centré sur station	Aucun	1	0.68,0.11, 0.75 ,216
	Carré de 0,6°x0,6° centré sur station	Aucun	≥ 1	0.78,0.11, 0.79 ,524
			≥ 6	0.84,0.11, 0.84 ,271
		IQV ≥ 70% IQP ≥ 0%	≥ 6	0.84,0.11, 0.85 ,231
IQV ≥ 0% IQP ≥ 70%	≥ 6	0.76,0.13, 0.82 ,110		

Tableau 4.6: De gauche à droite, pente et ordonnée à l'origine de la droite de régression, coefficient de corrélation et nombre de mesures co-localisées d'AOT_{AERONET} du mode fin et satellitaires (POLDER-2 en haut et POLDER-3 en bas) en imposant des contraintes sur les mesures photométriques et satellitaires. Les mesures d'AOT satellitaires peuvent être moyennées dans un carré de 0.6 x 0.6 ° (ou 0.16 x 0.16 °) centré sur la station de mesure photométrique et il peut être imposé un nombre de pixels valides d'au moins 6 dans ce même carré. Il est aussi possible de contraindre les indices de qualité en polarisation, IQP et en conditions de géométrie de visée, IQV. (*) Les critères de précision de Dubovik et al. [2000] imposés sur les mesures photométriques sont les suivants : $\theta_s \geq 45^\circ$, $L_{sim} - L_{mes} \leq 5\%$, nombre d'angle de diffusion, $\Theta \geq 21$ et les moyennes journalières d'AOT_{AERONET,Fin} sont effectuées à partir de 3 inversions dans la journée. La zone grisée correspond aux conditions à la base de la figure (4.9).

D'après le tableau (4.6), on note les résultats suivants:

- Moyenner les mesures satellitaires sur une zone 0.6° x 0.6° en imposant un nombre de pixels ≥ 6 (cases grisées dans le tableau 4.6) permet d'obtenir les corrélations les plus satisfaisantes (R=0.87 pour POLDER-2 et R=0.84 pour POLDER-3) tout en conservant un nombre de points significatif (N=289 pour POLDER-2 et 271 pour POLDER-3).
- On retrouve un accord très légèrement meilleur du radiomètre POLDER-2 par rapport au radiomètre POLDER-3 lorsque les mesures d'AOT satellitaires sont comparées aux

mesures photométriques. Par exemple, sans appliquer de contraintes sur les indices de qualité et le nombre de pixels dans un carré de $0.6^\circ \times 0.6^\circ$ sur lequel est moyenné la valeur d'AOT satellitaire, on observe un accord plus satisfaisant entre $AOT_{POLDER-2,Fin}$ et $AOT_{AERONET,Fin}$ ($R=0.84$) qu'entre $AOT_{POLDER-3,Fin}$ et $AOT_{AERONET,Fin}$ ($R=0.79$),

- Moyenner spatialement les mesures satellitaires dans un carré de $0.16^\circ \times 0.16^\circ$ (correspondant à un pixel POLDER) tend à réduire la corrélation dans le cas de l'utilisation des deux radiomètres,
- L'effet d'une contrainte sur les indices de qualité sur les mesures satellitaires POLDER est négligeable.

La figure (4.10) montre la comparaison entre mesures photométriques (du mode fin et du mode total des particules) et mesures d'AOT satellitaire du radiomètre MODIS-TERRA au-dessus de 10 stations photométriques en France d'avril à octobre 2003.

Le radiomètre POLDER (2 et 3) permet uniquement la mesure du mode fin des particules au-dessus des continents. Le radiomètre MODIS, quant à lui, fournit la mesure du mode fin ou du mode total des particules. Il est aussi capable de différencier quelques types d'aérosols grâce au produit « Aerosol_Type_Land » comme celui dit « mixte » (mélange de poussières désertiques et d'aérosols anthropiques), de poussière désertique, de sulfates, de fumée ou de fumée très absorbante (ce produit étant respectivement égal à 0, 1, 2, 3 ou 4). Sur la figure (4.10), les mesures d'AOT MODIS concernent tous les types d'aérosols décrits ci-dessus excepté celui des poussières désertiques (produit « Aerosol Type Land » différent de 1). La mesure d'AOT MODIS du mode total concerne le produit « Corrected_Optical_Depth_Land » à 550 nm alors que la mesure d'AOT MODIS du mode fin des particules concerne la multiplication du produit « Corrected Optical Depth Land » par le produit « Optical Depth Ratio Small Land And Ocean ».

On observe moins de mesures d' $AOT_{MODIS-TERRA,Fin}$ que d' $AOT_{MODIS-TERRA,Total}$ car la fraction fine de l'AOT ne peut être restituée avec précision dans les cas de très faibles valeurs d' $AOT_{MODIS-TERRA,Total}$ (< 0.2 à 550 nm) d'après *Levy et al.* [2007]. On observe en effet 349 mesures d' $AOT_{MODIS-TERRA,Total}$ lorsque les 10 stations sont réunies contre 262 mesures d' $AOT_{MODIS-TERRA,Fin}$, soit une différence d'environ 25 %.

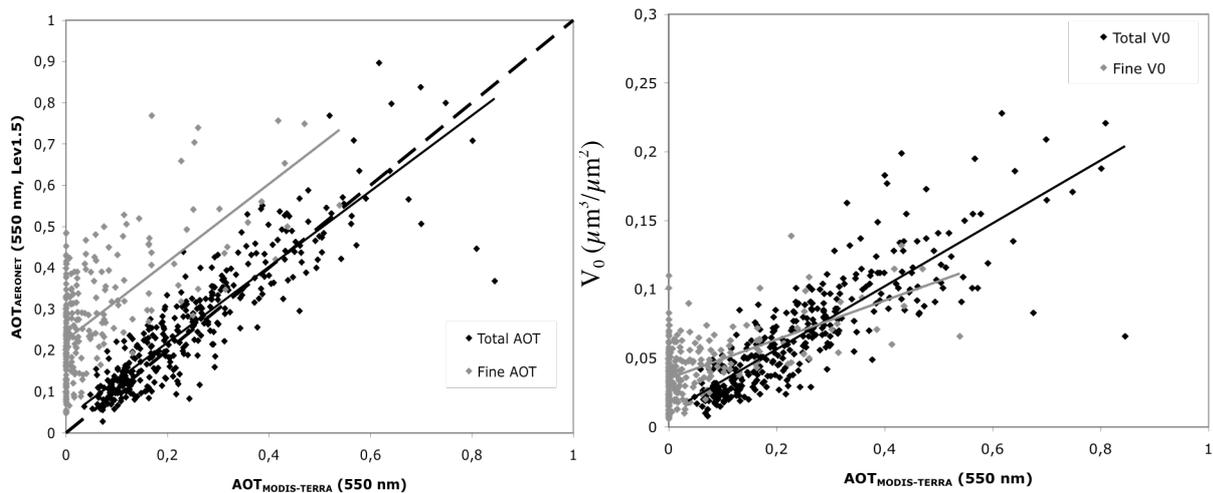


Figure 4.10 : Comparaison entre mesures photométriques (d' $AOT_{AERONET}$ à gauche et intégration de la distribution en volume, V_0 à droite) et mesures d'AOT satellitaire du radiomètre MODIS-TERRA au-dessus de la France (10 stations photométriques) d'avril à octobre 2003. Les mesures photométriques concernent la totalité (en noir) ou le mode fin (en gris, défini par le point d'inflexion) de la distribution en taille des particules. Les mesures journalières photométriques et satellitaires répondent aux mêmes critères que pour la figure (4.9). Les mesures d' $AOT_{MODIS-TERRA}$ (collection 5) concernent tous les types d'aérosols excepté celui des poussières désertiques (on impose le produit « Aerosol_Type_Land » différent de 1).

Le tableau (4.7) présente les résultats des corrélations de la figure (4.10) c'est-à-dire les droites de régression, le coefficient de corrélation et son erreur ainsi que le nombre de mesures co-localisées.

MODIS-TERRA	$AOT_{AERONET,Total} = 0.92 \pm 0.02 AOT_{MODIS-TERRA,Total} + 0.04 \pm 0.01, R = 0.89, RMS = 0.07$
	$V_{0,AERONET,Total} = 0.23 \pm 0.01 AOT_{MODIS-TERRA,Total} + 0.01 \pm 0.00, R = 0.85, RMS = 0.02$
	$AOT_{AERONET,Fin} = 0.94 \pm 0.07 AOT_{MODIS-TERRA,Fin} + 0.22 \pm 0.01, R = 0.65, RMS = 0.11$
	$V_{0,AERONET,Fin} = 0.14 \pm 0.01 AOT_{MODIS-TERRA,Fin} + 0.03 \pm 0.00, R = 0.58, RMS = 0.02$

Tableau 4.7: Résultats des comparaisons entre mesures satellitaires et photométriques de la figure (4.10) concernant le radiomètre MODIS ($N=349$ dans le cas des mesures du mode total et $N=262$ dans le cas des mesures du mode fin).

D'après le tableau (4.7), les corrélations entre mesures d' $AOT_{MODIS-TERRA,Total}$ et mesures d' $AOT_{AERONET,Total}$ (et $V_{0,AERONET,Total}$) présentent les coefficients de corrélation les plus satisfaisants de cette étude. Ce résultat est confirmé par la validation globale de *Remer et al.* [2005] (ainsi que l'étude de [Chu et al., 2003] concernant l'ancienne collection 4 MODIS) montrant un coefficient de corrélation de 0.80 (et $AOT_{MODIS,Total} = 0.78 AOT_{AERONET,Total} + 0.068$) entre $AOT_{MODIS,Total}$ et $AOT_{AERONET,Total}$ à 550 nm pour un ensemble de 5906 points co-localisés dans le monde entre août 2000 et 2002.

Par contre, on observe un coefficient de corrélation de 0.65 en utilisant le radiomètre MODIS alors qu'il était compris entre 0.84 et 0.87 pour le radiomètre POLDER.

En conclusion, les mesures satellitaires des radiomètres POLDER-2, POLDER-3 et MODIS montrent un bon accord général avec les mesures photométriques (mesures d'AOT totale ou du mode fin uniquement et de concentration en volume des particules) au-dessus de la France et au cours des périodes considérées (d'avril à octobre 2003 pour POLDER-2 et MODIS et au cours des années 2005 et 2006 pour POLDER-3).

On observe cependant une légère sous-estimation du contenu en particules par le radiomètre POLDER. De plus, dans le cas de ce radiomètre, on souligne un meilleur accord entre mesures satellitaires et photométriques au sol lorsque les observations satellitaires sont moyennées dans une zone géographique étendue (de $0.6 \times 0.6^\circ$ par rapport à $0.16^\circ \times 0.16^\circ$). Ajoutons que l'effet d'une contrainte sur les indices de qualité apparaît négligeable.

Nous retenons un accord très légèrement moins satisfaisant dans le cas du radiomètre POLDER-3, probablement dû à des périodes d'étude différentes.

Finalement, nous avons confirmé la sensibilité du radiomètre POLDER (2 et 3) aux fines particules. Le radiomètre POLDER semble, par conséquent, plus adéquat à la détection des aérosols de petites tailles que le radiomètre MODIS au-dessus de la France d'avril à octobre 2003.

4.3. Comparaison entre AOT satellitaire et PM sol

Au début de ce travail de thèse, nous disposions uniquement des mesures satellitaires POLDER-2. Nous avons donc directement comparé, en premier lieu, les valeurs d'AOT dérivées du radiomètre POLDER-2 aux mesures de $PM_{2.5}$ au sol. Cette étude nous a permis d'établir une première relation empirique entre mesures de concentration massique et d'AOT POLDER-2 entre avril et octobre 2003 au-dessus de la France. De cette relation a été dérivé un seuil d'AOT POLDER-2 au-dessus duquel la qualité de l'air peut, au minimum, être qualifiée de « Modérée » selon les standards de l'Environment Protection Agency (EPA). Cette étude a fait l'objet d'un article publié dans le journal *Atmospheric, Chemistry and Physics* [Kacenelenbogen et al., 2006].

Afin de comparer notre étude à la littérature, nous avons, par la suite, évalué la capacité du radiomètre MODIS (à bord de la plate-forme TERRA survolant l'équateur le matin, à l'égal de POLDER-2) à évaluer la qualité de l'air en termes de mesures de $PM_{2.5}$ au cours de la même période (avril à octobre 2003) et au-dessus des mêmes stations au sol. Pour une comparaison plus rigoureuse, nous avons sélectionné les jours présentant à la fois des mesures d'AOT_{POLDER2,Fin} et d'AOT_{MODIS-TERRA} (dans les deux cas à 550 nm, longueur d'onde la plus fréquemment utilisée dans la littérature).

Enfin, nous avons étudié la capacité du radiomètre POLDER-3 à surveiller la pollution en termes de $PM_{2.5}$ au cours des mois d'avril à octobre 2005-2006. Puis nous avons étendu l'étude précédente concernant le seuil d'AOT_{POLDER-2,Fin} qualifiant un épisode de pollution comme étant de Catégorie de Qualité de l'Air (ou « CQA ») « Modérée » au-dessus de la France d'avril à octobre, par l'établissement d'un second seuil élaboré, cette fois, en conditions hivernales (du 21 décembre au 21 mars 2005 et 2006 grâce aux mesures POLDER-3).

4.3.1. Analyse sur la période POLDER-2

Nous avons comparé les mesures d'AOT du mode fin à 440 nm dérivées du radiomètre POLDER-2 aux moyennes journalières de $PM_{2.5}$ au-dessus de la France au cours de la période

active de POLDER-2 (avril à octobre 2003). La figure (4.11) montre les différentes stations de mesures de $PM_{2.5}$ utilisées dans cette étude.

N° Station	Latitude (°)	Longitude (°)
3043	43,31	5,40
4002	48,93	2,29
4034	48,78	2,38
4055	48,86	2,35
4156	48,90	2,45
5064	49,52	0,11
5074	49,49	0,10
7004	45,80	3,11
7008	45,78	3,10
8016	43,59	3,89
10025	50,95	1,86
11024	50,62	3,08
11029	50,64	3,02
13007	47,51	6,80
14041	48,65	4,97
15043	45,16	5,74
16038	48,57	7,77
18008	49,86	3,31
21007	49,19	-0,36
23113	47,21	-1,61
23120	47,47	-0,56
25036	49,44	1,09
25043	49,40	1,10
31002	44,80	-0,59
31004	44,84	-0,53
31013	43,31	-0,39

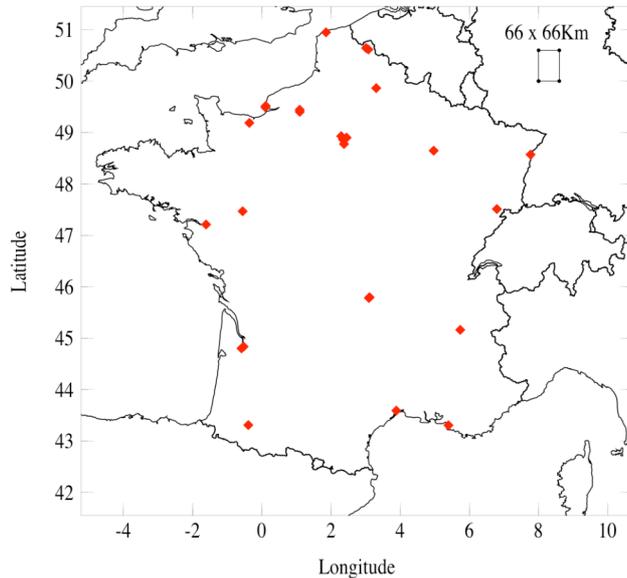


Figure 4.11: Localisation des différentes stations de mesures de $PM_{2.5}$ utilisées en France dans cette étude (26 stations d'avril à Octobre 2003). Les stations présentant un nombre inférieur à 10 données co-localisées $PM_{2.5}$ - $AOT_{POLDER-2,Fin}$ ainsi que celles trop proches de grands axes de circulation sont supprimées. Le carré noir en haut à droite de la carte représente la zone de 66 x 66Km au sol (centrée sur la station de mesure au sol considérée) sur laquelle les données du radiomètre POLDER-2 sont moyennées.

Parmi les 26 stations de mesures de $PM_{2.5}$, seules 4 stations montrent un coefficient de corrélation entre mesures d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ et de $PM_{2.5}$ au-dessus de 0.70 (15 stations montrent un coefficient de corrélation supérieur ou égal à 0.65). La figure (4.12) est un exemple (parmi les 26) de droite de régression ainsi obtenue entre mesures de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ au-dessus de la station de mesure de Lille (à Faidherbe exactement) entre avril et octobre 2003.

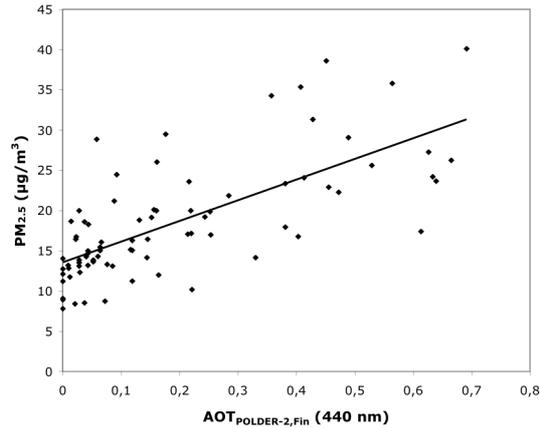


Figure 4.12: Corrélation entre mesures de $PM_{2.5}$ (moyennes journalières faites à partir d'au moins 18 mesures horaires sur 24h) et d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ (440 nm, moyennées sur une zone de 66 x 66 Km au sol) à Lille d'avril à octobre 2003.

$$PM_{2.5} = 25.70 \pm 2.92 AOT_{POLDER-2,Fin} + 13.57 \pm 0.80; RMS = 5.15, R = 0.71 \text{ et } N = 80.$$

On observe une corrélation satisfaisante au-dessus de Lille ($R=0.71$) entre mesures au sol de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$. On montre cependant une ordonnée à l'origine non négligeable ($13.57 \mu\text{g}/\text{m}^3$) montrant les limites du radiomètre satellitaire quand il s'agit d'évaluer de faibles contenus en aérosols.

Si l'on considère maintenant les 26 stations de notre étude, les valeurs des pentes de la droite de régression se situent entre ~ 10 et $43 \mu\text{g}/\text{m}^3$ par unité d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ et celles de l'ordonnée à l'origine entre ~ 8 et $16 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Mis à part 3 stations, les coefficients de corrélation sont tous supérieurs ou égaux à 0.50. Lorsqu'on regroupe les données co-localisées de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ au-dessus des 26 stations en France, on obtient la figure (4.13).

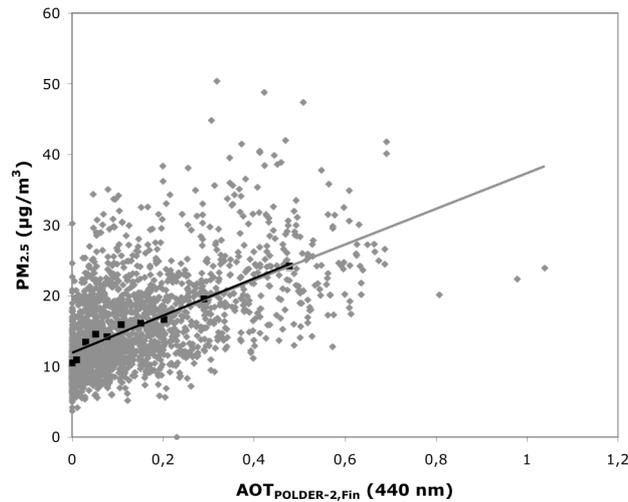


Figure 4.13 : Corrélation entre mesures de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ à 440 nm (même traitement sur les mesures que pour la figure 4.12) obtenue au-dessus de 26 stations de mesures de PM en France d'avril à octobre 2003 (en gris). En noir, les 2126 points co-localisés ont été distribués puis moyennés dans 10 intervalles de mesures d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ de même nombre de points c'est-à-dire 212 et 218 points dans le dernier intervalle.

- En gris, $PM_{2.5} = 25.26 \pm 0.79 AOT_{POLDER-2,Fin} + 12.08 \pm 0.16$; $RMS = 5.38$, $R = 0.57$ et $N = 2126$
- En noir, $PM_{2.5} = 26.23 \pm 2.19 AOT_{POLDER-2,Fin} + 11.94 \pm 0.43$; $RMS = 0.98$, $R = 0.97$ et $N = 10$

D'après la figure (4.13), quand on considère la totalité des données co-localisées de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{POLDER-2}$ au-dessus des 26 stations en France (en gris), le coefficient de corrélation est moins élevé ($R=0.57$) qu'au-dessus de Lille ($R=0.71$, figure 4.12) mais demeure tout de même satisfaisant. Par contre, la droite de régression observée au-dessus de la France est assez similaire au cours de la même période d'observation (pente de 25 contre 26 et ordonnée à l'origine de 12 contre 14 $\mu g/m^3$ respectivement au-dessus de la France et Lille, figure 4.12) et l'ordonnée à l'origine reste significative. On peut noter que procéder à la même comparaison en supprimant les moyennes spatiales d' $AOT_{POLDER-2}$ faites à partir d'un nombre de pixels inférieur à 6 (correspondant à 50 % du nombre maximal de pixels) n'améliore pas la corrélation.

En toute rigueur, il est difficile de comparer notre relation à celles de précédentes études puisque aucune étude à ce jour n'a confronté des mesures d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ aux mesures de $PM_{2.5}$. Nous y reviendrons dans la section suivante.

Lorsque les données co-localisées au-dessus des 26 stations en France (en gris sur la figure 4.13) sont arrangées par intervalles d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ de même nombre de points puis moyennés sur ces mêmes intervalles (en noir), on observe un accord très satisfaisant avec un coefficient de corrélation de 0.97 (on note cependant une erreur sur le coefficient de corrélation, RMS, de l'ordre du coefficient lui-même, égale à 0.98). Il est important de noter une droite de régression quasi-similaire à celle établie à partir de la totalité des points (en gris) avec une ordonnée à l'origine de $\sim 12 \mu g/m^3$ dans les deux cas et une pente d' ~ 26 en noir contre 25 en gris sur la figure (4.13).

En utilisant les données moyennées sur les 10 intervalles de même nombre de points chacun, nous avons évalué la capacité du radiomètre POLDER-2 à estimer la pollution en

termes de standards de qualité de l'air selon l'EPA (standards définis dans le tableau 2.2). Autrement dit, pour chaque intervalle d'AOT_{POLDER-2,Fin}, nous avons calculé le rapport entre le nombre de valeurs de PM_{2.5} rentrant dans chaque catégorie de qualité de l'air (CQA) et le nombre total de points contenus dans l'intervalle considéré.

Le tableau (4.8) montre les valeurs d'AOT_{POLDER-2,Fin} minimales et maximales de chacun des 10 intervalles considérés ainsi que le pourcentage de valeurs de PM_{2.5} correspondantes entrant dans les différentes catégories de CQA. Puisque cette étude s'appuie sur des valeurs de PM_{2.5} relativement basses, caractéristiques de l'Europe de l'Ouest, il est uniquement possible de considérer les CQA « Bonne » (en dessous de 15.5 µg/m³) et « Modérée » (entre 15.5 µg/m³ et 40.4 µg/m³). Très peu de valeurs de PM_{2.5} sont observées au-dessus du seuil de 40.5 µg/m³ dans les 2 derniers intervalles, respectivement 1% et 3 % des données et 100% des points sont en dessous de 40.5 µg/m³ concernant les autres intervalles.

Dans le cas, par exemple, de la catégorie de CQA « Bonne », X_i est égal au pourcentage de valeurs de PM_{2.5} inférieures ou égales à 15.4 µg/m³ dans l'intervalle i par rapport au nombre N_i de l'intervalle considéré. Le tableau (4.8) montre la marge d'erreur (dernière colonne), pour chaque intervalle d'AOT_{POLDER-2,Fin}, de tels pourcentages X_i (2e et 3e colonnes) faits sur un échantillon i de 212 points (218 points pour le dernier intervalle) par rapport à une population p totale. On peut supposer, pour chaque intervalle (ou « échantillon ») i d'AOT_{POLDER-2,Fin}, que X_i suit une distribution en loi normale. Il est donc possible de définir la probabilité P, égale à 90 %, pour que la population p totale soit comprise entre l'échantillon X_i ± une certaine marge d'erreur, ME, tel que :

$$P(X_i - ME < p < X_i + ME) = 0.90 \quad (4.1)$$

où

$$ME = 1.645 \sqrt{\frac{X_i \times (1 - X_i)}{N_i}} \quad (4.2)$$

où N_i est égal au nombre de points dans l'intervalle i (c'est-à-dire 212 points pour les 9 premiers intervalles et 218 pour le dernier).

POLDER-2 (avril à octobre 2003, France)				
AOT Min	AOT Max	AQC "Bon" (%)	AQC "Modérée" (%)	Erreur (%)
0,00	0,00	90,57	8,96	3,30
0,00	0,02	88,21	11,32	3,64
0,02	0,04	68,40	31,13	5,25
0,04	0,06	63,68	35,38	5,43
0,06	0,09	68,87	30,19	5,23
0,09	0,13	51,42	47,64	5,65
0,13	0,17	47,17	51,89	5,64
0,17	0,24	43,87	55,19	5,61
0,24	0,35	25,47	72,17	4,92
0,35	1,04	8,26	88,99	3,07

Tableau 4.8: Valeurs d'AOT_{POLDER-2,Fin} minimales et maximales de chacun des 10 intervalles considérés (en noir sur la figure 4.13), pourcentage de valeurs de PM_{2.5} correspondantes dans les CQA « Bonnes » et « Modérée » et marge d'erreur à 90 % sur ce pourcentage (voir formule 4.1).

D'après le tableau (4.8), concernant les AOT très faibles, (1^{er} intervalle ne contenant que des valeurs nulles), 90.57 % des points sont dans la CQA « Bonne ». Si l'on considère un AOT au-dessus de 0.35, la probabilité d'avoir une valeur de PM_{2.5} dans la CQA « Modérée » est de 88.99%. Rappelons qu'il nous faudrait bien plus de valeurs de PM_{2.5} au-dessus de 40.5 µg/m³ pour établir une limite supérieure à la CQA « Modérée ».

Pour une AOT_{POLDER-2,Fin} couvrant la gamme de 0 à 0.13, la probabilité moyenne (cumulée) de trouver une valeur de PM_{2.5} inférieure à 15.5 µg/m³ est d' ~72 %. En dessous d'un seuil d'AOT_{POLDER-2,Fin} de 0.17, on observe une moyenne cumulée de ~ 68% des valeurs de PM_{2.5} inférieures à 15.5 µg/m³. Si on conseille ce seuil comme étant la valeur minimale de la CQA « Modérée », la probabilité du radiomètre de dériver une AOT_{POLDER-2,Fin} correspondant à une valeur de PM_{2.5} entre 15.5 µg/m³ et 40.4 µg/m³ est de ~72%.

Rappelons que les observations du radiomètre POLDER ne s'opèrent qu'en conditions de ciel clair. Par conséquent, on dispose de beaucoup moins de données POLDER que de données PM_{2.5}. Si on considère la totalité des mesures spatialement co-localisées (et non temporellement) au-dessus des 26 stations d'avril à octobre 2003, on observe 2556 observations POLDER-2 contre 4788 mesures de PM_{2.5} d'avril à octobre 2003 c'est-à-dire un rapport entre les 2 ensembles de données de ~ 53%. Le nombre de mesures de PM_{2.5} au-dessus du seuil de 15.4 µg/m³ est de 1530 alors que le nombre de mesures d'AOT_{POLDER-2,Fin} au-dessus de 0.17 est de 819.

En utilisant séparément l'ensemble de mesures de PM_{2.5} et d'AOT_{POLDER-2,Fin} (spatialement co-localisé mais non temporellement) au-dessus des 26 stations en France, nous avons pu estimer la différence relative, ε_{Modérée}, entre le nombre de mesures de PM_{2.5} et d'AOT_{POLDER-2,Fin} de CQA « Modérée » de la manière suivante :

$$\varepsilon_{\text{Modérée}} = \frac{\sum_{N_{\text{station}}} \text{Nb}(PM_{2.5} \geq 15.5 \mu\text{g}/\text{m}^3)}{\sum_{N_{\text{station}}} \text{Nb}(PM_{2.5})} - \frac{\sum_{N_{\text{station}}} \text{Nb}(AOT_{\text{POLDER-2}} \geq 0.17)}{\sum_{N_{\text{station}}} \text{Nb}(AOT_{\text{POLDER-2}})} \quad (4.3)$$

où Nb est le nombre d'observations par station de mesures de PM_{2.5} (de 1 à « Nstation » de mesures où « Nstation » est égal à 26 dans notre cas).

Nous avons évalué ε_{Modérée} à -0.1%. On constate donc une très faible surestimation du nombre d'observations évaluées par les mesures d'AOT_{POLDER-2,Fin} comme étant de CQA « Modérée ». Le seuil d'AOT_{POLDER-2,Fin} de 0.17 semble par conséquent adéquat pour estimer de façon statistique le nombre de jours dépassant le seuil de 15.5 µg/m³. Ces jours seront alors considérés comme étant de CQA « Modérée ».

Il est important de noter que ce seuil d'AOT_{POLDER-2,Fin} de 0.17 est basé sur une période de 7 mois d'observation d'avril à octobre 2003 et peut être très différent dans des conditions purement hivernales. C'est pourquoi nous avons élaboré, par la suite, une étude similaire en utilisant les mesures du radiomètre POLDER-3, et ceci, notamment au cours de l'hiver des années 2005 et 2006.

De plus, le seuil établi est limité à la région de notre étude (la France) et celle-ci ne présente que peu de cas de CQA supérieure à « Modérée » en 2003. Nous étendons cette étude, par la suite, et grâce aux mesures du radiomètre POLDER-3, aux années 2005 et 2006 où il a été enregistré d'avantage de pics de $PM_{2.5}$ au sol et de plus forte intensité. Par contre, cette étude mériterait d'être étendue géographiquement à d'autres régions du monde, tout particulièrement celles connues pour être les plus polluées comme l'Asie ou l'Inde.

Lorsqu'on applique le seuil d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ précédemment observé de 0.17 aux mesures satellitaires du radiomètre POLDER-2 au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest d'avril à octobre 2003, on obtient la carte de la figure (4.14). On y observe le pourcentage de jours dépassant le seuil de 0.17 d'avril à octobre 2003.

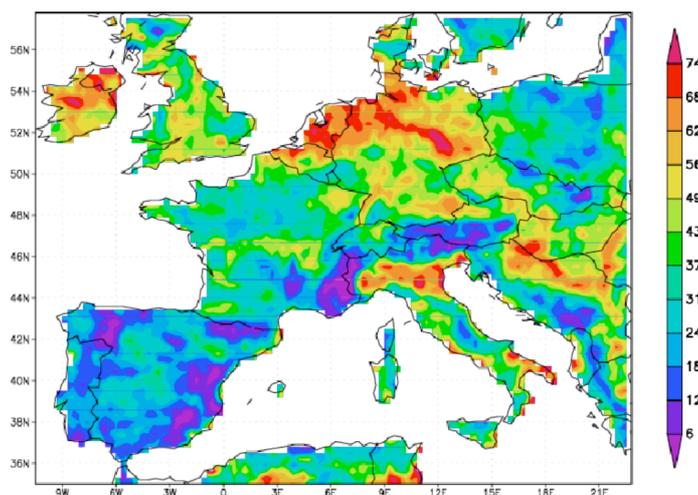


Figure 4.14: Nombre d'observations journalières présentant une mesure d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ (à 440 nm) au dessus de 0.17 et présenté comme un pourcentage du nombre total d'observations au cours de la période active de POLDER-2 (avril à octobre 2003).

D'après la figure (4.14), le radiomètre POLDER-2 montre une fréquence de jours qualifiés de CQA « Modérée » (mesures d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ au-dessus du seuil de 0.17) plus importante (supérieure à environ 60%) au-dessus de zones très industrialisés comme les Pays Bas, le nord de l'Allemagne ou le nord de l'Italie.

4.3.2. Étude sur la même période que POLDER-2 avec les données MODIS-TERRA

L'objectif de cette section est de comparer la relation entre mesures d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ et de $PM_{2.5}$ établie précédemment à celle entre mesures d' $AOT_{MODIS-TERRA}$ et de $PM_{2.5}$ en conservant les mêmes conditions spatio-temporelles. Autrement dit, nous comparons la capacité des radiomètres POLDER-2 et MODIS-TERRA à quantifier la pollution en aérosols en termes de CQA au-dessus de la même zone géographique (France) et au cours de la même période temporelle (avril à octobre 2003).

Nous avons précédemment utilisé les mesures d' AOT POLDER-2 à 440 nm. Cependant, il est plus fréquent d'observer dans la littérature la comparaison entre mesures d' AOT satellitaires à 550 nm et mesures de PM au sol et cela, en particulier dans le cas de MODIS dont le produit de fraction fine de l' AOT n'est restitué qu'à 550 nm. Nous utilisons,

par conséquent, dans cette section, les mesures d'AOT satellitaire (MODIS ou POLDER-2) à 550 nm.

Nous confrontons les mesures de $PM_{2.5}$ aux mesures satellitaires du radiomètre MODIS-TERRA à 550 nm d'avril à octobre 2003 au-dessus des mêmes stations de mesures de $PM_{2.5}$ que celles de la figure (4.11). Les comparaisons que nous avons ainsi effectuées montrent seulement 6 stations (parmi 26) affichant un coefficient de corrélation au-dessus de 0.50. À l'inverse, dans le cas du radiomètre POLDER-2 (à 550 nm), mis à part 4 stations, les coefficients de corrélation sont tous supérieurs ou égaux à 0.50. On note, de plus, des pentes de droites de régression en moyenne moins importantes dans le cas du radiomètre MODIS (comprises entre 7 et $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$) par rapport au radiomètre POLDER-2 (pentes comprises entre 19 et $71 \mu\text{g}/\text{m}^3$ par unité d'AOT). La gamme des ordonnées à l'origine, est, par contre, quasi-similaire (entre 8 et $16 \mu\text{g}/\text{m}^3$).

Lorsqu'on regroupe les mesures spatialement et temporellement co-localisées issues des 26 stations de mesures au sol, on obtient la figure (4.15) montrant la relation obtenue entre mesures de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{\text{MODIS-TERRA,Total}}$ (à 550 nm) au-dessus de la France.

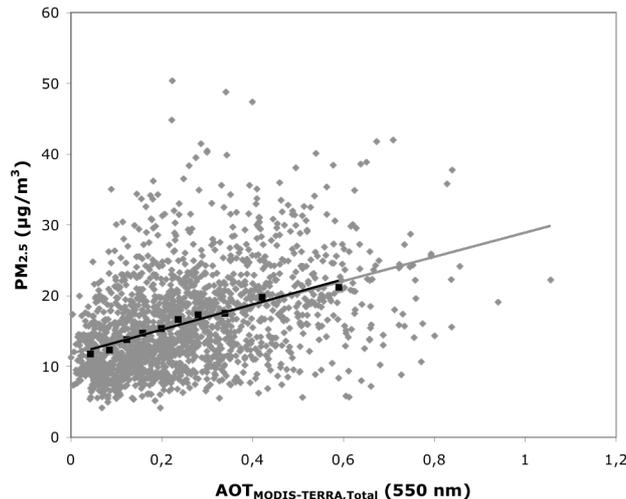


Figure 4.15: Corrélation entre mesures de $PM_{2.5}$ (moyennes journalières faites à partir d'au moins 18 mesures horaires, stations hors trafic) et d' $AOT_{\text{MODIS-TERRA,Total}}$ (550nm, moyenne dans carré de 66 x 66 Km centré sur la station de PM, données supprimées si pas de donnée POLDER-2) au-dessus des 26 stations de mesures de $PM_{2.5}$ en France (figure 4.11) d'avril à octobre 2003 (en gris).

L' $AOT_{\text{MODIS-TERRA}}$ concerne tous les types d'aérosols excepté celui des poussières désertiques. Les mesures du radiomètre MODIS appartiennent à la collection 5. En noir, la totalité des 1902 points co-localisés a été distribuée puis moyennée dans 10 intervalles de mesures d' $AOT_{\text{MODIS-TERRA,Total}}$ de même nombre de points c'est-à-dire 189 et 201 points dans le dernier intervalle.

– En gris, $PM_{2.5} = 17.10 \pm 0.84 AOT_{\text{MODIS-TERRA,Total}} + 11.81 \pm 0.25$; $RMS = 5.98$, $R = 0.42$ et $N = 1902$.

– En noir, $PM_{2.5} = 17.86 \pm 1.35 AOT_{\text{MODIS-TERRA,Total}} + 11.62 \pm 0.40$; $RMS = 0.68$, $R = 0.98$ et $N = 10$.

Si, au lieu d'utiliser le mode total, on utilise la fraction fine de l'AOT MODIS, on observe un accord très faible entre mesures d' $AOT_{\text{MODIS-TERRA,Fin}}$ et de $PM_{2.5}$ ($R=0.29$ avec $N=1427$) au-dessus des mêmes 26 stations. Rappelons que le produit de fraction fine de MODIS n'a été que partiellement validé puisqu'il affiche un coefficient de corrélation de seulement 0.65 lorsqu'il est comparé aux mesures d' AOT_{AERONET} du mode fin (tableau 4.7).

Comparons, dans un premier temps, la corrélation obtenue entre mesures d'AOT_{MODIS-TERRA,Total} et mesures de PM_{2.5} à celles précédemment établies dans la littérature. Notre faible coefficient de corrélation de 0.42 (N=1902) au-dessus de la France d'avril à octobre 2003 se retrouve dans l'étude de *Engel-Cox et al.* [2004] au-dessus de certains sites de l'Ouest des Etats-Unis (par exemple, R=0.13 au-dessus de Los Angeles) entre avril et septembre 2002. On observe, de même, de faibles corrélations dans l'étude de *Li et al.* [2005] lorsque est utilisé le produit standard MODIS de résolution 10x 10 Km (et non à 1 x 1 Km, résolution qui a tendance à fortement améliorer la corrélation) au-dessus de HongKong du 15 au 17 septembre 2001. Cependant, d'autres études ont montré de fortes corrélations entre mesures de concentration massique et mesures d'AOT MODIS. C'est le cas des études de *Chu et al.* [2003] utilisant des mesures de PM₁₀ au-dessus du Nord de l'Italie (R=0.86) et de *Wang and Christopher* [2003] au-dessus de l'Alabama (R=0.70). Par ailleurs, plusieurs facteurs perturbent la comparaison de notre relation entre mesures d'AOT_{MODIS-TERRA,Total} et mesures de PM_{2.5} ($PM_{2.5} = 17.10 \pm 0.84 AOT_{MODIS-TERRA,Total} + 11.81 \pm 0.25$) avec celles précédemment établies comme l'utilisation de mesures de PM₁₀ au lieu de PM_{2.5} [*Chu et al.*, 2003 ; *Li et al.*, 2005], différentes périodes de temps et des approches statistiquement différentes comme forcer l'ordonnée à l'origine à 0. Malgré ces limitations, la droite de régression (pente de 17 µg/m³ par unité d'AOT_{MODIS-TERRA,Total} et ordonnée à l'origine de 12 µg/m³) que nous avons établie en France est dans la même gamme que celle présentée par *Engel-Cox et al.* [2004] au-dessus des Etats-Unis entre avril et septembre 2002 (pente de 19 µg/m³ par unité d'AOT_{MODIS} et ordonnée à l'origine de 8 µg/m³). D'autres études ont observé des valeurs plus importantes de pente comme, par exemple, l'étude locale de *Wang and Christopher* [2003] au-dessus de l'Alabama (pente d'~71 µg/m³ en utilisant des mesures de PM_{2.5}). Il en est de même pour la comparaison au-dessus du Nord de l'Italie par *Chu et al.* [2003] entre mesures de PM₁₀ et, cette fois-ci, d'AOT photométrique (pente d'~55 µg/m³ par unité d'AOT_{AERONET}).

D'après la figure (4.15, en gris), quand on considère la totalité des mesures d'AOT_{MODIS-TERRA,Total} à 550 nm, on observe une corrélation peu satisfaisante au-dessus de la France pour MODIS-TERRA (R= 0.42). Notons qu'on observe un meilleur accord lorsqu'on utilise les mesures satellitaires du radiomètre POLDER-2 à 550 nm (R=0.56) au-dessus des mêmes stations de mesures au sol. De plus, alors que les ordonnées à l'origine sont similaires (de l'ordre de 12 µg/m³), la pente de la droite de régression en utilisant les mesures d'AOT_{POLDER-2,Fin} (41 µg/m³ par unité d'AOT_{POLDER-2,Fin}) est égale à plus du double de celle entre mesures d'AOT MODIS et de PM_{2.5} (17 µg/m³ par unité d'AOT_{MODIS-TERRA,Total}). Cela pourrait non seulement provenir de la différence de sensibilité des 2 radiomètres MODIS et POLDER aux fines particules mais aussi de leur différent algorithme de restitution de l'AOT.

Lorsque les mesures co-localisées de PM_{2.5} et d'AOT_{MODIS-TERRA,Total} sont distribuées par intervalles de même nombre de points (en noir sur la figure 4.15), on observe une corrélation très satisfaisante (R=0.98). Ce qui est le cas aussi du radiomètre POLDER-2 à 550 nm (R=0.97).

En utilisant ces points moyennés par intervalle, il est possible de dériver un seuil d'AOT POLDER-2 à 550 nm (voir section précédente) à partir duquel la pollution en aérosol est estimée de CQA « Modérée ». Ainsi, on obtient un seuil d'AOT_{POLDER-2,Fin} à 550 nm de 0.10 alors que nous avons obtenu un seuil d'AOT_{POLDER-2,Fin} à 440 nm de 0.17. La relation entre mesures d'AOT_{POLDER-2,Fin} à 440 nm et de PM_{2.5} semble néanmoins fournir le seuil d'AOT_{POLDER-2,Fin} (à 440 nm) le plus robuste pour évaluer un épisode de pollution comme étant de CQA « Modérée » d'après une très faible valeur de $\epsilon_{Modérée}$ (voir formule 4.3). En effet, le

seuil de 0.10 établi en utilisant les mesures d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ à 550 nm montre une valeur $\epsilon_{Modérée}$ de -17% (contre -0.10% dans le cas des mesures d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ à 440 nm).

Nous comparons, ensuite, les mesures d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ et d' $AOT_{MODIS-TERRA,Fin}$ à 550 nm (figure 4.16) co-localisées au-dessus des stations de la figure (4.11) d'avril à octobre 2003.

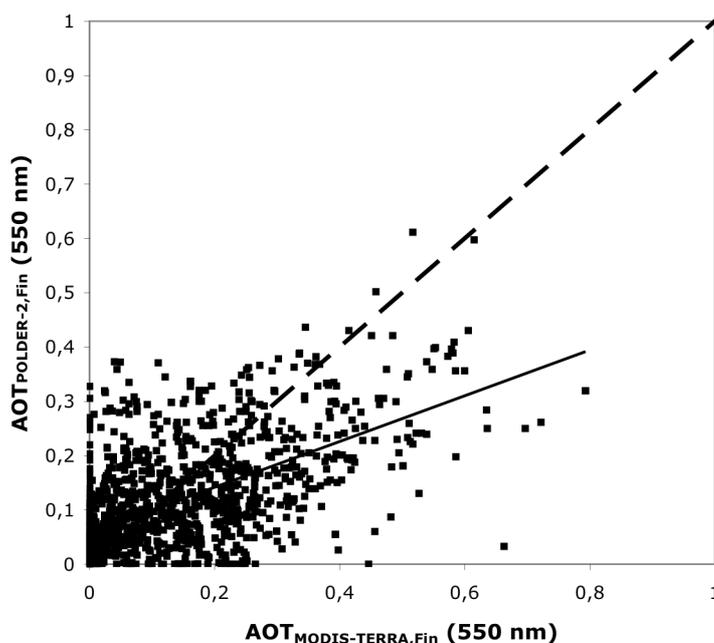


Figure 4.16: Corrélation entre mesures d' $AOT_{MODIS-TERRA,Fin}$ (550nm) du mode fin et d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ (550nm) au-dessus des 26 stations de mesures de $PM_{2.5}$ en France (figure 4.11) d'avril à octobre 2003. Les mesures satellitaires sont moyennées dans un carré de 66 x 66 Km centré sur la station de PM au sol. Les mesures d' $AOT_{MODIS-TERRA}$ concernent tous les types d'aérosols excepté celui des poussières désertiques. Les mesures font partie de la collection 5.
 $AOT_{POLDER-2,Fin} = 0.42 \pm 0.01 AOT_{MODIS-TERRA,Fin} + 0.06 \pm 0.00$; $RMS = 0.08$, $R = 0.61$ et $N = 1427$.

D'après la figure (4.16), les mesures du radiomètre MODIS-TERRA (550 nm) et les mesures d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ montrent un accord assez satisfaisant ($R=0.61$). On observe, de plus, un facteur d' ~ 2 entre mesures d' $AOT_{MODIS-TERRA,Fin}$ et d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ au-dessus de la France d'avril à octobre 2003. Au-dessus de la station de PM de Lille, la corrélation est bien plus satisfaisante entre mesures satellitaires POLDER-2 et MODIS-TERRA ($R=0.86$) et on montre une pente de 0.55 (c'est-à-dire un facteur d'environ 2 entre les mesures).

Au final, cette étude laisse à penser que les mesures du radiomètre MODIS-TERRA telles que nous les avons utilisées (à une résolution spatiale de 10 x 10 Km et moyennées sur une zone géographique de 66 x 66 Km) sont légèrement moins appropriées que celles du radiomètre POLDER-2 à quantifier la pollution en particules fines au-dessus de la France d'avril à octobre 2003. Les deux radiomètres ne mesurent, en effet, pas la même fraction des aérosols et celle qui nous intéresse correspond aux particules de rayon physique inférieur ou égal à 1 μm (rayon dynamique inférieur à 2.5 μm).

4.3.3. Analyse sur la période POLDER-3

Les mesures d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ sont comparées aux mesures de $PM_{2,5}$ au cours de deux périodes différentes :

- D'avril à octobre (2005-2006) dans le but de comparer la capacité des radiomètres POLDER-2 et POLDER-3 à surveiller la pollution en termes de CQA au cours de la même période de l'année (d'avril à octobre) et dans les mêmes conditions spatio-temporelles (mêmes longueurs d'onde de 440 nm, mêmes 26 stations que sur la figure 4.11, même moyenne spatiale d'AOT satellitaires et contraintes similaires sur les mesures journalières de $PM_{2,5}$),
- En période hivernale des années 2005 et 2006 (21 décembre au 21 mars) : l'objectif est d'examiner s'il est possible de dériver un seuil d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ hivernal pour la caractérisation de la pollution en aérosols en termes de CQA « Modérée ».

4.3.3.1. Période avril-octobre 2005-2006

Parmi les 26 stations de notre étude (figure 4.11), seules 21 stations en 2005 et 19 stations en 2006 fournissent des mesures spatialement et temporellement co-localisées avec POLDER-3 au cours de la période d'avril à octobre. Si l'on considère l'ensemble des stations au cours de la période d'avril à octobre des années 2005 et 2006 réunies, on obtient une gamme de pentes de droite de régression légèrement plus étendue dans le cas de POLDER-3 (comprises entre ~ 3 et $37 \mu g/m^3$) que dans le cas de POLDER-2 mais avec une gamme d'ordonnées à l'origine similaire (entre ~ 7 et $17 \mu g/m^3$). Rappelons qu'une grande majorité de stations montrent un coefficient de corrélation entre mesures d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ et $PM_{2,5}$ supérieur à 0.50 en 2003 (23 stations parmi 26). En revanche, en 2005, très peu de stations montrent un coefficient de corrélation entre $AOT_{POLDER-3,Fin}$ et $PM_{2,5}$ au-dessus de 0.50 (7 stations parmi 21) et c'est le cas, à moindre mesure, en 2006 (11 stations parmi 19).

À titre d'exemple, la figure (4.17) montre la corrélation entre mesures d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ et de $PM_{2,5}$ au cours de la période d'avril à octobre (2005-2006) au-dessus de la station de Lille. Les mesures à la base de la figure (4.17) ont subi les mêmes contraintes que celles de la figure (4.12).

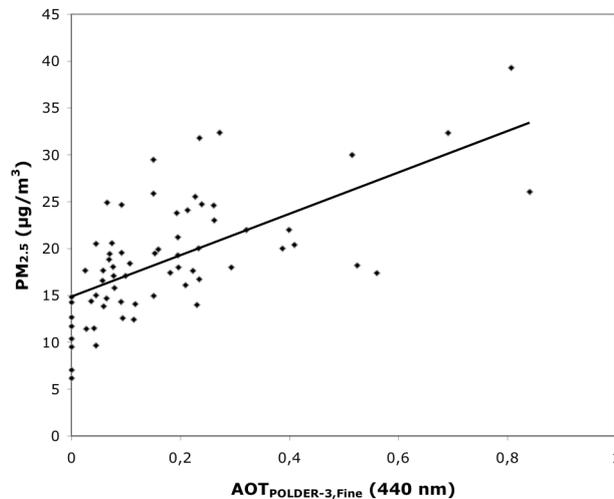


Figure 4.17 : Corrélation entre mesures de $PM_{2.5}$ (moyennes journalières faites à partir d'au moins 18 mesures horaires) et d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ (440 nm) à Lille d'avril à octobre 2005-2006.
 $PM_{2.5} = 22.08 \pm 3.21 AOT_{POLDER-2,Fin} + 14.85 \pm 0.83$; $RMS = 4.85$, $R = 0.65$ et $N = 67$.

Lorsqu'elles sont comparées aux mesures de $PM_{2.5}$, les observations du radiomètre POLDER-3 sont cohérentes avec celles du radiomètre POLDER-2 au cours de la même période (avril à octobre 2003 dans le cas de POLDER-2 et 2005 à 2006 dans le cas de POLDER-3). On observe, en effet, sur la figure (4.17), un coefficient de corrélation égal à $R=0.65$ par rapport à $R=0.71$ pour POLDER-2. On montre, néanmoins un nombre de points réduit dans le cas de POLDER-3. En effet, alors que le radiomètre POLDER-2 montre 80 mesures au-dessus de Lille d'avril à octobre 2003 (figure 4.12), le radiomètre POLDER-3 en montre 67 d'avril à octobre 2005 et 2006 (figure 4.17).

La figure (4.18, en gris) montre la corrélation entre mesures d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ et de $PM_{2.5}$ au cours de la période d'avril à octobre (2005-2006) au-dessus des 26 stations de la figure (4.11). Les mesures à la base de la figure (4.18) ont subi les mêmes contraintes que celles de la figure (4.13).

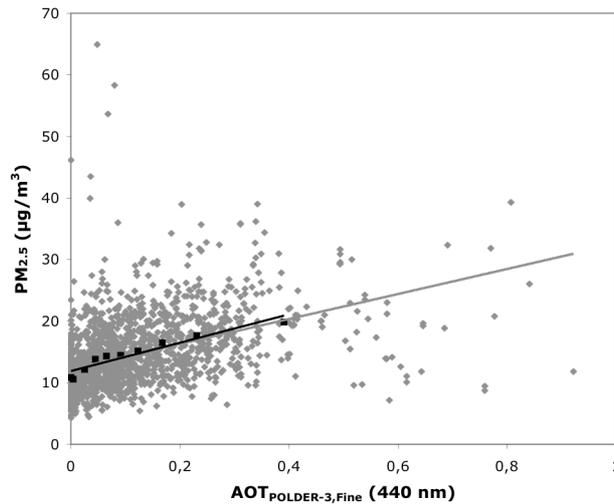


Figure 4.18 : Corrélation entre mesures de $PM_{2.5}$ (moyennes journalières faites à partir d'au moins 18 mesures horaires, stations hors trafic) et d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ (440 nm, moyenne dans carré de 66 x 66 Km centré sur la station de PM) au-dessus de 26 stations de mesures de PM en France d'avril à octobre 2005-2006 (en gris). En noir, les 1667 points co-localisés ont été distribués puis moyennés dans 10 intervalles de mesures d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ de même nombre de points c'est-à-dire 166 et 173 points dans le dernier intervalle

- En gris, $PM_{2.5} = 20.34 \pm 1.05 AOT_{POLDER-3,Fin} + 12.19 \pm 0.18$; $RMS = 5.36$, $R = 0.43$ et $N = 1667$,
- En noir, $PM_{2.5} = 22.97 \pm 2.56 AOT_{POLDER-3,Fin} + 11.89 \pm 0.42$; $RMS = 0.94$, $R = 0.95$ et $N = 10$.

D'après la figure (4.18, en gris), quand on considère la totalité des données co-localisées de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ au-dessus des 26 stations en France, le coefficient de corrélation est moins satisfaisant ($R=0.43$) que celui de la figure (4.13) concernant les mesures d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ ($R=0.57$). Par contre, la droite de régression observée au-dessus de la France grâce aux mesures d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ (figure 4.18, en gris) est assez similaire à celle de la figure (4.13, en gris) utilisant les mesures d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ (pente entre ~ 20 et ~ 25 et ordonnée à l'origine similaire de $12 \mu\text{g}/\text{m}^3$ sur les figures 4.18 et 4.13).

Comme il a été écrit lors de la validation des deux radiomètres POLDER-2 et POLDER-3, cette différence entre corrélations de la figure (4.13, en gris) et (4.18, en gris) pourrait provenir de conditions météorologiques différentes entre l'année 2003 d'observation de POLDER-2 et les années 2005 et 2006 dans le cas de POLDER-3. En effet, 8 mesures affichent une valeur de $PM_{2.5}$ au-dessus de $40.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en août 2003 (du 9 au 13 août exactement). Par contre, seuls 5 jours enregistrent une valeur de $PM_{2.5}$ au-dessus de ce même seuil de $40.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ et ces jours sont, pour la plupart, en octobre 2006. Ces pics de $PM_{2.5}$ se produisent donc à des périodes de l'année aux spécificités météorologiques (hauteur de couche limite, couverture nuageuse, profils d'humidité relative) généralement très différentes. On peut noter, par exemple, une couche limite généralement plus basse en octobre et une épaisseur optique par conséquent plus faible pour une même concentration en $PM_{2.5}$, ce qui expliquerait le nuage de points de fortes valeurs de $PM_{2.5}$ et de faibles mesures d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ sur la figure (4.18).

La figure (4.19) présente la fréquence des mesures de $PM_{2.5}$ par classe de $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (normalisée par le nombre de jours de mesures) au cours des années 2003, 2005 et 2006 au-dessus de Lille.

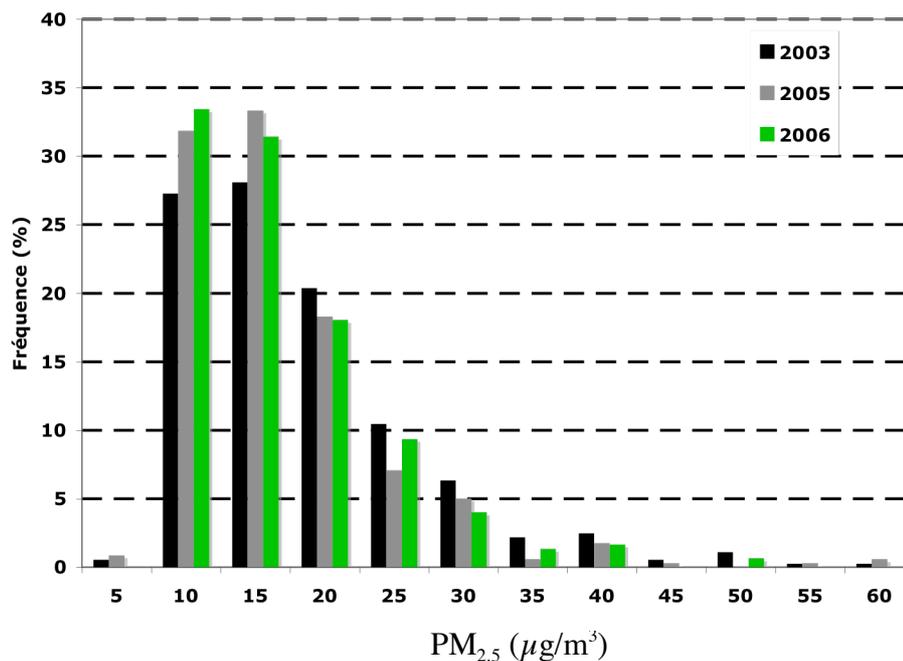


Figure 4.19 : Répartition des moyennes journalières (en % par rapport au nombre de jours de mesures dans l'année) de PM_{2.5} (µg/m³) par classe de 5 µg/m³ au cours des années 2003 (noir), 2005 (gris) et 2006 (vert) au-dessus de la station de mesure de Lille.

D'après la figure (4.19), la répartition des mesures de PM_{2.5} présente de fortes différences entre l'année 2003 et les années 2005-2006. En effet, alors que le pourcentage du nombre de mesures est plus fort (au-dessus de 30 %) dans les 3 premières classes (de 0 à 15 µg/m³) au cours des années 2005 et 2006 par rapport à l'année 2003, la tendance s'inverse pour les mesures de PM_{2.5} supérieures à 15 µg/m³. On observe, par exemple, 20% des mesures contenues entre 15 et 20 µg/m³ en 2003 contre 18 % en 2005-2006. La différence entre la répartition des mesures de PM_{2.5} au cours de l'année 2003 (et particulièrement d'avril à octobre pour le radiomètre POLDER-2) et au cours des années 2005-2006 pourrait donc être une explication à la différence observée entre les relations AOT_{POLDER-2}-PM_{2.5} et AOT_{POLDER-3}-PM_{2.5}.

Cette différence pourrait s'expliquer, en partie, par le passage des radiomètres POLDER-2 et POLDER-3 à des heures différentes de la journée. Si elles pouvaient être comparées sur la même période, les mesures des radiomètres POLDER-2 et POLDER-3 afficheraient probablement, comme les deux mesures journalières du radiomètre MODIS (MODIS-TERRA et MODIS-AQUA), une différence plus prononcée en été lors d'épaisseurs optiques généralement plus fortes. En effet, comme nous l'avons vu précédemment, on observe davantage de variation du cycle moyen diurne de l'AOT lorsque la mesure d'AOT est forte (figure 4.4).

Si on considère la totalité des 26 stations (co-localisées spatialement mais non temporellement), on montre une différence entre les ensembles de mesures satellitaires et de concentration massique de 79% (resp. 70%) d'avril à octobre 2005 (resp. 2006). Rappelons que nous avons une différence de 47 % entre l'ensemble de données d'AOT du radiomètre POLDER et celui de PM_{2.5} en 2003.

Nous avons estimé, grâce aux données rangées sur 10 intervalles de même nombre de points chacun (en noir sur la figure 4.18), la capacité du radiomètre POLDER-3 à évaluer la qualité de l'air en termes de CQA. Il en résulte un seuil d' $AOT_{\text{POLDER-3,Fin}}$ de 0.20 pour caractériser un événement de pollution comme étant de CQA « Modérée ». Alors que le radiomètre POLDER-2 montrait une faible sous-estimation du nombre d'observations évaluées par les mesures d' $AOT_{\text{POLDER-2,Fin}}$ comme étant dans la CQA « Modérée » ($\epsilon_{\text{Modérée}} = -0.1\%$, formule 4.3), le radiomètre POLDER-3 observe une surestimation d'intensité plus forte ($\epsilon_{\text{Modérée}} = 7\%$ en 2005 et 1% en 2006). Pour finir, nous retenons donc un seuil de 0.17 d' AOT du radiomètre POLDER à 440 nm pour statistiquement estimer le nombre de jours dépassant le seuil de $15.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Finalement, le radiomètre POLDER-3 semble tout aussi adéquat que le radiomètre POLDER-2 quant à la surveillance de la qualité de l'air. On note néanmoins un nombre de points considérablement réduit dans le cas de POLDER-3. D'autre part, les différences observées entre POLDER-2 et POLDER-3 semblent s'expliquer par une répartition différente des mesures et, en particuliers des pics, de $PM_{2.5}$ au cours des deux périodes d'étude. En effet, bien que les saisons observées soient les mêmes (d'avril à octobre), l'année 2003 montre une majorité de jours de CQA « Conditions à risques pour certains groupes de personnes » (valeur de $PM_{2.5}$ supérieure à $40.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$) au cours du mois d'août alors que l'année 2006 en présente une majorité au cours du mois d'octobre. On montre, de plus, davantage de mesures de $PM_{2.5}$ au-dessus de $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en 2003 par rapport aux années 2005 et 2006.

4.3.3.2. Période hivernale 2005-2006

Nous avons précédemment dérivé un seuil d' $AOT_{\text{POLDER-2,Fin}}$ et d' $AOT_{\text{POLDER-3,Fin}}$ (respectivement de 0.17 et de 0.20 à 440 nm) utile à l'estimation du nombre de jours dépassant le seuil de $15.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (limite inférieure de la CQA « Modérée »). Ces seuils correspondent à la période d'avril à octobre (en 2003 dans le cas de POLDER-2 et en 2005 et 2006 pour POLDER-3). Il est important d'étudier la possibilité d'un seuil équivalent d' $AOT_{\text{POLDER-3,Fin}}$ dans des conditions hivernales (21 décembre au 21 mars des années 2005 et 2006).

La comparaison entre les mesures d' $AOT_{\text{POLDER-3,Fin}}$ et de $PM_{2.5}$ a été élaborée de la même manière que pour les études précédentes. Cependant, nous nous sommes servi, cette fois-ci, de davantage de stations de $PM_{2.5}$ en France (50 stations). De plus, les stations fournissant un nombre de données co-localisées inférieures à 10 sont, cette fois-ci, conservées dû à un manque certain de mesures en hiver. Parmi ces 50 stations, seules 37 (resp. 40) stations fournissent des mesures co-localisées en période hivernale au cours de l'année 2005 (resp. 2006). Le nombre maximal de point co-localisé par station est de 18 pour une station en 2006 et il n'est pas rare de ne disposer que d'une seule mesure co-localisée par station (4 stations en 2005 et 5 stations en 2006).

Parmi l'ensemble des stations de cette étude, lorsque l'on observe les stations fournissant un nombre supérieur ou égal à 10 mesures co-localisées, aucun site en 2005 et seuls 7 sites en 2006 montrent un coefficient de corrélation au-dessus de 0.50. Mise à part une station ne montrant aucune corrélation, ces mêmes stations montrent une pente de la droite de régression entre ~ 13 et $69 \mu\text{g}/\text{m}^3$ par unité d' $AOT_{\text{POLDER-3,Fin}}$ et une ordonnée à l'origine comprise entre ~ 7 et $21 \mu\text{g}/\text{m}^3$. On observe donc un accord moins prononcé entre mesures de

$PM_{2.5}$ et d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ et des pentes généralement plus fortes par station de mesure en France en hiver par rapport à la période d'avril à octobre.

À titre d'exemple, la comparaison entre mesures d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ et de $PM_{2.5}$ au cours de la période hivernale des années 2005 et 2006 au-dessus de la station de Lille montre un coefficient de corrélation de 0.58 (au lieu de 0.65 d'avril à octobre) et une pente de ~ 29 (au lieu de ~ 22 d'avril à octobre) avec un nombre peu significatif de mesures égal à 7.

Lorsqu'on regroupe les mesures spatialement et temporellement co-localisées issues des 37 (resp. 40) stations de mesures au sol en hiver 2005 (resp. 2006), on obtient la figure (4.20) montrant la relation entre mesures de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ (à 440 nm).

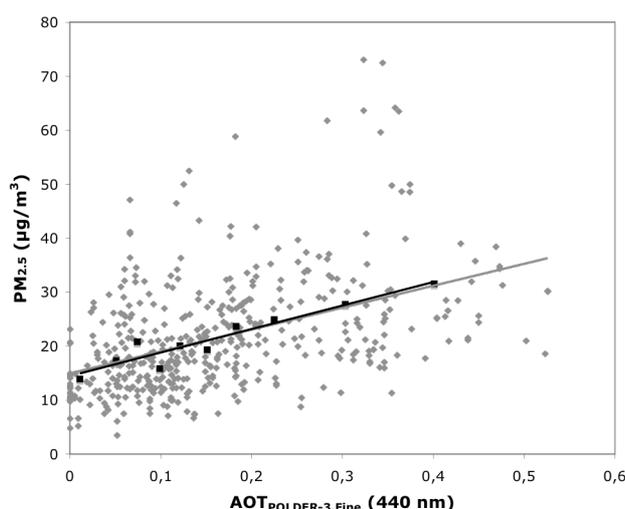


Figure 4.20: Corrélation entre mesures de $PM_{2.5}$ (moyennes journalières faites à partir d'au moins 18 mesures horaires, stations hors trafic) et d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ (440 nm, moyenne dans carré de 66 x 66 Km centré sur la station de PM) au-dessus des 37 (resp. 40) stations de mesures de $PM_{2.5}$ en 2005 (resp. 2006) en France du 21 décembre au 21 mars 2005 et 2006 (en gris). En noir, la totalité des 470 points co-localisés ont été distribués puis moyennés dans 10 intervalles de mesures d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ de même nombre de points (47 points).

- En gris, $PM_{2.5} = 40.68 \pm 3.70 AOT_{POLDER-3,Fin} + 14.91 \pm 0.74$; $RMS = 9.33$, $R = 0.45$ et $N = 470$,
- En noir, $PM_{2.5} = 43.46 \pm 4.89 AOT_{POLDER-3,Fin} + 14.46 \pm 0.97$; $RMS = 1.76$, $R = 0.95$ et $N = 10$.

D'après la figure (4.20, en gris), quand on considère la totalité des données co-localisées de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ en France, le coefficient de corrélation est similaire ($R=0.45$) à celui observé sur la figure (4.18) d'avril à octobre 2005-2006 ($R=0.43$). Par contre, la droite de régression observée est très différente avec une pente nettement supérieure (de 41 contre 20) mais avec une ordonnée à l'origine quasi-similaire (entre 12 et 15 $\mu g/m^3$).

Nous retrouvons le même phénomène d'augmentation de la pente de la droite de régression entre période estivale et hivernale observée lors de la comparaison des mesures de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET,Fin}$ au-dessus de Lille en 2003 (figure 3.6). Nous avons alors observé une pente de 36 en été et de 61 en hiver. Cette augmentation de la pente de la droite de régression (d'un facteur 2) entre la période d'avril à octobre et la période hivernale pourrait s'expliquer par des inversions de températures plus fréquentes et importantes en hiver entraînant une couche limite atmosphérique plus basse et une AOT plus faible pour une même concentration en aérosols.

D'après la figure (4.20, en noir), lorsque les mesures co-localisées de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ sont triées puis moyennées sur 10 intervalles de 47 points chacun, on observe une corrélation satisfaisante ($R=0.95$) quasi-égale à celle trouvée au cours de la période d'avril à octobre (figure 4.18, en noir). Que l'on utilise la totalité des points co-localisés ou ceux moyennés par intervalle, on obtient une droite de régression quasi-similaire (pente entre 41 et 43 sur la figure 4.20). La pente hivernale de la figure (4.20, en noir) est, comme attendu, plus importante que celle de la figure (4.18) concernant la période d'avril à octobre.

Grâce aux données rangées sur 10 intervalles de même nombre de points chacun, nous avons évalué la capacité de POLDER-3 à évaluer la qualité de l'air en termes de CQA en période hivernale. En utilisant la même méthode d'estimation que précédemment, on calcule un seuil en $AOT_{POLDER-3,Fin}$ de 0.03 pour évaluer la qualité de l'air comme étant de CQA « Modérée » en conditions hivernales.

Bien qu'il semble logique que ce seuil soit inférieur à celui de la période d'avril à octobre, la valeur de 0.03 nous paraît beaucoup trop faible pour correctement évaluer un épisode de pollution comme étant de CQA « Modérée ». D'ailleurs, alors qu'il a été observé des valeurs de différence relative $\varepsilon_{Modérée}$ (formule 4.3) auparavant négligeables lors de l'utilisation de POLDER-2 ou POLDER-3 au cours de la période d'avril à octobre, la valeur d' $\varepsilon_{Modérée}$ estimée dans des conditions hivernales est de -44 % en 2005 et de -42 % en 2006.

La relation directe entre mesures d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ et de $PM_{2.5}$ ne semble pas suffisamment robuste pour permettre d'en déduire un seuil d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ capable de qualifier un épisode de pollution comme étant de CQA « Bonne » ou « Modérée » dans des conditions hivernales. Il semble alors nécessaire de faire intervenir, dans ce cas, une information de distribution verticale des aérosols. Retenons finalement que la relation entre mesures de $PM_{2.5}$ et d' AOT satellitaires dépend fortement de la saison considérée.

4.4. Conclusions

Dans un premier temps, nous avons montré un bon accord général entre moyennes journalières et moyennes horaires centrées sur l'heure de passage des satellites (POLDER-2, POLDER-3 et MODIS) des mesures au sol de $PM_{2.5}$ et d' $AOT_{AERONET,Total}$. De plus, l'étude du cycle moyen diurne des mesures d' AOT photométriques et de $PM_{2.5}$ montre, en France, une variation moyenne de ~ 0.07 pour les mesures d' $AOT_{AERONET}$ et de $\sim 4 \mu g/m^3$ pour les mesures de $PM_{2.5}$ au cours de la journée en 2003, 2005 et 2006. Finalement, la similitude des mesures d' AOT restituées par les radiomètres MODIS-TERRA et MODIS-AQUA survolant respectivement l'équateur le matin et l'après midi confirme le peu de variabilité des mesures d' AOT photométriques en moyenne entre 10h30 et 13h30. La contribution des mesures des radiomètres MODIS-AQUA à MODIS-TERRA réside alors surtout dans un apport supplémentaire de points de mesures à l'échelle de la journée. Il semble, par conséquent, possible de concevoir une comparaison entre une mesure unique journalière d' AOT satellitaire et une mesure moyenne journalière de $PM_{2.5}$ ou d' AOT photométrique.

Dans un deuxième temps, nous avons montré un bon accord général entre les mesures de $PM_{2.5}$ de stations co-localisées au sol, et ceci, jusqu'à ~ 50 Km de distance entre les stations considérées. Ce résultat montre, au moins en partie, qu'il est possible d'utiliser la capacité du satellite à surveiller la pollution d'ordre régionale en aérosols à l'aide d'une mesure couvrant une large zone géographique au sol.

Dans un troisième temps, les mesures satellitaires des trois radiomètres montrent un bon accord avec les mesures photométriques au-dessus de la France et au cours des périodes considérées (d'avril à octobre 2003 dans le cas du radiomètre POLDER-2 et MODIS et au cours des années 2005 et 2006 dans le cas du radiomètre POLDER-3). Nous avons, notamment, mis en évidence une capacité plus importante du radiomètre POLDER à détecter les particules fines par rapport au radiomètre MODIS au-dessus de la France d'avril à octobre 2003.

La comparaison directe entre les mesures d'AOT satellitaires et de $PM_{2.5}$ nous a permis d'élaborer un seuil d'AOT satellitaire au-dessus duquel la pollution peut être qualifiée de « Modérée ». Un tel seuil a été élaboré en utilisant successivement les observations POLDER-2 d'avril à octobre 2003, puis POLDER-3 d'avril à octobre ou en période hivernale des années 2005-2006. La relation entre mesures d'AOT_{POLDER-2,Fin} à 440 nm et de $PM_{2.5}$ d'avril à octobre 2003 semble fournir le seuil d'AOT_{POLDER-2,Fin} (égal à 0.17) le plus robuste pour évaluer un épisode de pollution comme étant de CQA « Modérée ». La relation entre mesures de $PM_{2.5}$ et d'AOT du radiomètre POLDER-3 diffère de celles entre mesures de $PM_{2.5}$ et d'AOT du radiomètre POLDER-2. Ceci est probablement dû, en partie, à des périodes d'observation très différentes. L'année 2003 (période active de POLDER-2) semble, en effet, présenter un pourcentage plus fort de valeurs de $PM_{2.5}$ au-dessus de $15 \mu g/m^3$ que les années 2005 et 2006 (partie de la période active de POLDER-3). Par contre, la relation directe entre mesures d'AOT_{POLDER-3,Fin} et de $PM_{2.5}$ ne semble pas suffisamment robuste pour permettre d'en déduire un seuil d'AOT_{POLDER-3,Fin} capable de qualifier un épisode de pollution comme étant de CQA « Bonne » ou « Modérée » dans des conditions hivernales. Il semble nécessaire de faire intervenir, dans ce cas, une information de distribution verticale des aérosols. Les mesures du radiomètre MODIS, telles que nous les avons utilisé (à une résolution spatiale de 10×10 Km et moyennées sur une zone géographique de 66×66 Km), semblent, quant à elles, moins appropriées que celles du radiomètre POLDER-2 pour surveiller la pollution en particules fines au-dessus de la France d'avril à octobre 2003.

On applique le seuil d'AOT du radiomètre POLDER précédemment établi (de 0.10 à 550 nm) aux mesures satellitaires des radiomètres POLDER-2 et POLDER-3 au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest au cours de la période d'avril à octobre des années 2003, 2005, 2006 et 2007 réunies (856 jours). Il est alors possible de calculer le pourcentage de jours dépassant ce seuil d'AOT POLDER (carte de gauche de la figure 4.21) par rapport au nombre total d'observations (carte de droite de la figure 4.21).

La carte de droite de la figure (4.21) met en évidence un nombre de mesures nettement plus faible (moins de 100 mesures) au-dessus de forts reliefs comme les Pyrénées, le massif central, les Alpes et le Jura. On souligne, de même, très peu de mesures au-dessus de l'Angleterre et de l'Irlande (moins de 50 mesures). A l'inverse, l'Aquitaine et la côte d'azur semblent présenter un plus grand nombre d'observations satellitaires (autour de 200 observations) par rapport aux autres régions françaises. Le nombre le plus important de mesures (autour de 300 mesures) est enregistré au-dessus du Sud de l'Espagne, du Portugal, de l'Afrique du Nord ainsi qu'au-dessus de l'Italie du Nord.

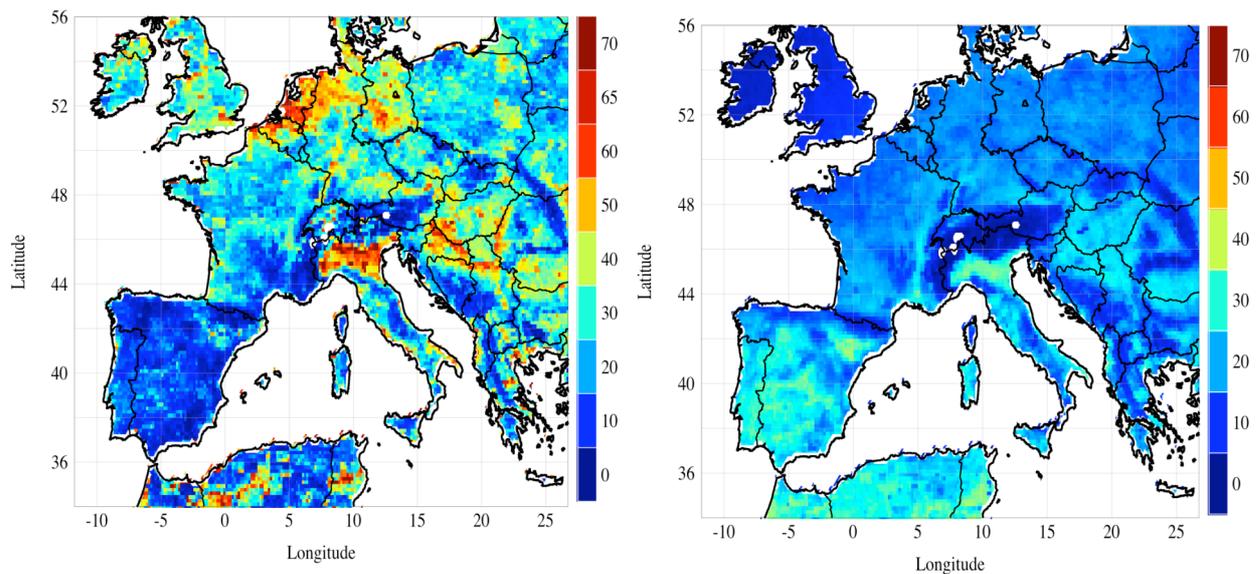


Figure 4.21 : À gauche, nombre d'observations journalières présentant une mesure d' $AOT_{POLDER,Fin}$ (radiomètre POLDER-2 et 3) à 550 nm au-dessus de 0.10 et présenté comme un pourcentage du nombre total d'observations au cours des mois d'avril à octobre des années 2003, 2005, 2006 et 2007 réunies. A droite, pourcentage du nombre total d'observations par pixel (au plus 856 jours par pixel sur la période d'observation).

La carte de gauche de la figure (4.21), regroupant les observations d'avril à octobre de 4 années (2003 et 2005 à 2007), permet de localiser les sources fixes d'émission en aérosols au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest. D'après celle-ci, on peut regrouper les lieux présentant le pourcentage le plus important de jours au-dessus du seuil satellitaire de CQA « Modérée » en 5 grandes zones géographiques :

- Au-dessus de l'Irlande et de l'Angleterre bien que ce résultat puisse être biaisé par un nombre plus faible d'observations satellitaires au-dessus de ces zones (carte de droite, figure 4.21),
- Les zones industrialisées du Nord de la France, de la Belgique, des Pays-bas et du Nord de l'Allemagne,
- La zone toute particulière du Nord de l'Italie facilitant l'accumulation de polluants grâce aux forts reliefs alentour et sa forme de « cuvette »,
- Au-dessus des Pays de l'Est (tout particulièrement en Croatie et au sud de la Hongrie) et
- Au-dessus du Nord de l'Algérie, la Tunisie et le Maroc où il semble que nous observons la fraction fine de particules désertiques,

5. Prise en compte de la distribution verticale des aérosols

Au cours du chapitre précédent, nous avons montré un changement de relation entre $PM_{2.5}$ et épaisseur optique entre été et hiver. Comme celui-ci ne s'explique pas entièrement par un changement de propriétés optiques et microphysiques, il semble qu'une variation de distribution verticale moyenne des aérosols entre période hivernale et estivale en soit la cause principale. L'évaluation de la distribution verticale des aérosols reste cependant problématique. Les mesures fournies par les réseaux de LIDAR au sol comme EARLINET (European Aerosol Research Lidar NETwork) ou MPLNET (Micro-Pulse Lidar NETwork) ne suffisent pas à apporter des mesures directes de profil vertical des particules à l'échelle globale. De plus, à notre connaissance, il n'y a que très peu de mesures de cette distribution verticale des particules fournies par des stations de mesures de $PM_{2.5}$. Nous nous sommes donc servi, dans un premier temps, du profil vertical en concentration massique simulé par le modèle de chimie-transport CHIMERE ainsi que de la hauteur de couche limite et du profil d'humidité relative fournis par le modèle météorologique MM5. Le modèle CHIMERE, couplé au modèle MM5, en effet, l'avantage de fournir des simulations quotidiennes couvrant l'ensemble de notre domaine d'étude (une partie de l'Europe de l'Ouest et, tout particulièrement, la France). Dans un deuxième temps, nous avons utilisé les mesures de profil de rétrodiffusion restituées par le LIDAR spatial CALIOP et ceci, dès qu'elles étaient disponibles (lancement en avril 2006). Malgré le faible rapport signal sur bruit associé aux profils verticaux de rétrodiffusion d'un tel instrument embarqué sur une plateforme spatiale, celui-ci permet l'étude tridimensionnelle de l'atmosphère. De plus, cet instrument est embarqué sur la constellation de satellites de l'A-Train et présente l'avantage de pouvoir être utilisé en synergie avec d'autres capteurs comme ceux passifs MODIS (à bord de TERRA ou AQUA) ou POLDER-3 (à bord de PARASOL).

La distribution verticale des aérosols, brièvement présentée dans la section (1.5) du premier chapitre de cette thèse, est fortement influencée par la stabilité de l'atmosphère. Dans le cas des hautes pressions, les particules émises au sol et transportées par les masses d'air se retrouvent contenues en majorité dans un réservoir (appelé aussi « couche limite atmosphérique » par abus de langage) de hauteur H_a . D'après *Gras* [1991], la distribution verticale de la concentration massique en aérosols montre, dans ce cas, une décroissance exponentielle avec l'altitude jusqu'à une hauteur H_a et un profil de faible intensité et plus ou moins constant au-delà de cette altitude. Il suffit donc, d'après *Gras* [1991], de connaître la concentration massique au sol ainsi que la valeur de la hauteur H_a afin de calculer la distribution verticale des aérosols. Cependant, cette simplification n'est possible que dans le cas de conditions climatiques anticycloniques (hautes pressions), favorisant un mélange homogène des particules dans une couche limite dont la hauteur est alors facilement décelable. Cette simplification est, en réalité, contredite dans le cas, très fréquent, de multiples couches d'aérosols dans la couche limite atmosphérique et un transport de particules en altitude au-dessus de cette couche. Par conséquent, nous aurons également besoin d'estimer le rapport de concentration en aérosols entre la couche de mélange et la colonne atmosphérique.

5.1. Utilisation d'une distribution verticale simulée par un modèle de chimie-transport

L'objectif de cette étude est de combiner l'information de distribution verticale du modèle de chimie-transport CHIMERE aux mesures satellitaires afin d'obtenir un produit

satellitaire représentatif de ce qui est mesuré quotidiennement au sol par les stations de qualité de l'air de la BDQA.

5.1.1. Description et évaluation préliminaire du modèle CHIMERE

Le modèle 3D-eulérien de chimie-transport CHIMERE a pour première fonction de fournir une prévision journalière du contenu en ozone, en aérosols et d'autres polluants dans les basses couches de l'atmosphère à des échelles spatiales différentes (locale à régionale). La version utilisée dans cette étude est celle notée «V200606A». La documentation complète concernant cette version du modèle de chimie-transport CHIMERE peut être consultée à l'adresse suivante: <http://euler.lmd.polytechnique.fr/chimere>. Notons qu'actuellement, une nouvelle version de CHIMERE est proposée environ tous les six mois par l'équipe de développement. Ce modèle permet d'effectuer des simulations à long terme de scénarios tout en contrôlant les émissions au-dessus de l'Europe. Les concentrations calculées par le modèle correspondent à la moyenne dans chaque cellule de la grille CHIMERE dans le cas d'un mélange parfait. Nous nous intéressons, dans cette thèse, au produit aérosol du modèle CHIMERE comportant les caractéristiques suivantes :

- La dynamique et la conversion gaz particules du modèle est décrite dans l'étude de *Schmidt et al.* [2001] et quelques améliorations ont été apportées dans *Vautard et al.* [2003],
- Les données d'entrées météorologiques sont fournies par les analyses du NCEP (National Center for Environmental Prediction) à travers la 5^e génération du modèle de l'Université de l'état de Pennsylvanie appelé « MM5 » ([*Dudhia*, 1993], <http://www.mmm.ucar.edu/mm5/>) comportant une résolution spatiale horizontale de 36 Km et verticale de 25 niveaux. La version utilisée dans cette étude est celle notée « 2.3.6 »,
- En termes de transport des polluants à travers les limites du domaine du modèle, CHIMERE utilise le modèle de climatologie GOCART [*Ginoux et al.*, 2001; *Ginoux et al.*, 2004] au-dessus des continents pour les aérosols.
- On utilise, dans ce travail de thèse, la simulation de la concentration massique des particules de type anthropique à 0% d'humidité relative (noté « PM2.5_anth ») comprenant des particules d'origine anthropique et de source primaire (« Primary Particulate Matter » ou « PPM » voir tableau 1.1), des aérosols de sulfate, de nitrate, d'ammonium, et des aérosols secondaires organiques (« Secondary Organic Aerosol » ou « SOA »),
- Le cadastre d'émission est celui d'EMEP (« Co-operative program for monitoring and evaluation of the long-range transmissions of air pollutants in Europe », [*Vestreng*, 2003]) (<http://www.emep.int/>),
- Les mesures de concentration sont rangées en 6 intervalles de taille (de 0.01 μm à 40 μm) ; le produit $\text{PM}_{2.5}$ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) comprend les particules dont le diamètre fait partie des 4 intervalles suivants : (0.01 ; 0.04 μm), (0.04 ; 0.16 μm), (0.16 ; 0.62 μm) et (0.62 ; 2.5 μm),

- On s'intéresse au profil de concentration massique simulé par le modèle CHIMERE ainsi qu'à la hauteur de couche limite et au profil d'humidité relative, tous deux dérivés du modèle météorologique MM5 à 10:00,
- La résolution verticale est de 8 couches d'épaisseur variable. La hauteur de la 1^{ère} couche est d'environ 50 m et l'épaisseur des suivantes augmente avec l'altitude. La dernière couche est de 2 Km d'épaisseur et s'étend jusqu'à environ 5.5 Km. Les valeurs élémentaires de PM_{2.5} en $\mu\text{g}/\text{m}^3$ sont fournies pour chacune des couches, dont on connaît par ailleurs la hauteur (spatialement et temporellement variable). Il est donc possible d'obtenir une concentration intégrée sur chacune des couches ou sur la totalité des 8 niveaux du modèle en $\mu\text{g}/\text{m}^2$.
- Nous utilisons, dans ce travail de thèse, le domaine de simulation dit « CONT3 » recouvrant une partie de l'Europe de l'Ouest (c'est-à-dire entre les latitudes 35° N et 57.5° N et les longitudes -10.5° W et 22.5° E). Les produits aérosols utilisés sont donc fournis, par le modèle de chimie-transport CHIMERE à une résolution de 0.5° x 0.5 ° soit environ 55 x 55 Km.

Cette étude a été menée en collaboration avec Anthony Ung de l'INERIS (Institut National de l'Environnement industriel et des RISques). L'INERIS a en charge la plateforme de prévision de la qualité de l'air PREV'AIR (plateforme nationale de PREVision de la Qualité de l'AIR) qui intègre le modèle CHIMERE. Les sorties du modèle utilisées dans le cadre de ce travail proviennent des réanalyses effectuées à l'INERIS.

Nous avons mené une étude préalable d'évaluation du contenu simulé dans la première couche du modèle (c'est-à-dire au sol) par le modèle (noté PM_{2.5}^{CHIMERE} (sol)). Pour cela, on confronte les mesures de PM_{2.5}^{CHIMERE} (sol) aux valeurs de PM_{2.5} fournies par les stations de mesures de la BDQA au-dessus de la France au cours de notre période d'étude (avril à octobre 2003).

Les stations de mesures en PM_{2.5} sont regroupées par maille du modèle CHIMERE de 0.5° x 0.5°. Le tableau (5.1) montre les mailles du modèle CHIMERE dans lesquelles se trouve une (ou plusieurs) station de mesure de PM_{2.5} au sol. Lorsque plusieurs stations de mesure de PM_{2.5} cohabitent dans une même maille CHIMERE, les mesures sont moyennées (maille portant un numéro de groupe dans le tableau 5.1).

Région	Numéro BDQA	Latitude Maille CHIMERE	Longitude Maille CHIMERE
Provence Alpes CA	3043	43.5	5.5
Languedoc Roussillon	8016	43.5	4.0
Franche Comté	13007	47.5	7.0
Champagne Ardennes	14009	49.0	4.0
Champagne Ardennes	14041	48.5	5.0
Alsace	16038	48.5	8.0
Picardie	18008	50.0	3.5
Normandie	21007	49.0	-0.5
Pays de La Loire	23113	47.0	-1.5
Pays de La Loire	23120	47.5	-0.5
Aquitaine	31013	43.5	-0.5
Nord Pas de Calais	28025	50.5	2.5
Nord Pas de Calais	10025	51.0	2.0
Ile De France (4)	Groupe 1	49.0	2.5
Normandie (2)	Groupe 2	49.5	0.0
Auvergne (2)	Groupe 3	46.0	3.0
Rhones Alpes (1)	Groupe 4	45.0	5.5
Haute Normandie (2)	Groupe 5	49.5	1.0
Aquitaine (2)	Groupe 6	45.0	-0.5
Nord Pas de Calais (2)	Groupe 7	50.5	3.0

Tableau 5.1 : Regroupement des stations de qualité de l'air au sol (loin de sources très locales de pollution) en 20 mailles (de $0.5 \times 0.5^\circ$, référencées par leur centre) de la grille du modèle CHIMERE. Lorsque plusieurs stations cohabitent dans une maille, on montre le nombre de stations en présence (entre parenthèses dans la première colonne) et on attribue un groupe à l'ensemble des stations.

La figure (5.1) montre la comparaison entre mesures de $PM_{2.5}$ (moyennes entre 9h et 11h) au sol et simulées par le modèle CHIMERE dans la 1^{ère} couche ($PM_{2.5}^{CHIMERE}$ (sol) à 10h) en $\mu g/m^3$ en France (à gauche) et au-dessus de Lille (à droite) d'avril à octobre 2003.

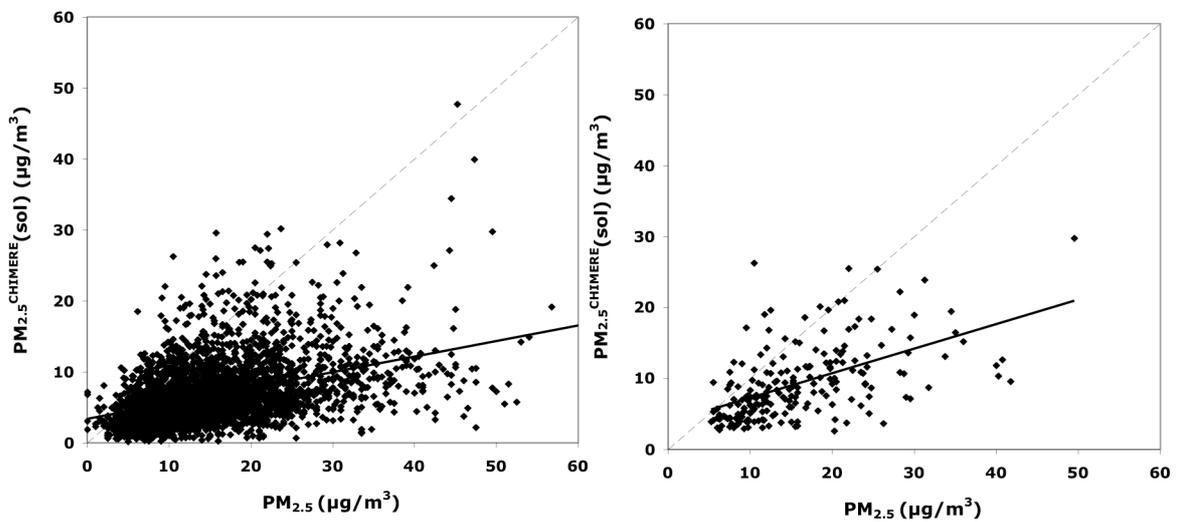


Figure 5.1 : Comparaison entre moyennes horaires de $PM_{2.5}$ entre 9h et 11h et $PM_{2.5}^{CHIMERE}$ (sol) simulées par le modèle CHIMERE à 10h dans la première couche en $\mu g/m^3$ au-dessus des 20 mailles du tableau (5.1) en France (a) et au-dessus de la maille « Groupe 7 » du tableau (5.1) concernant la région de Lille (b) d'avril à octobre 2003.

- Au-dessus de la France (a), $PM_{2.5}^{CHIMERE}$ (sol) = $0.22 \pm 0.01 \times PM_{2.5} + 3.36 \pm 0.14$, $R=0.43$, $RMS=3.91$ avec $N=3337$;
- Au-dessus de la région de Lille (b), $PM_{2.5}^{CHIMERE}$ (sol) = $0.35 \pm 0.04 \times PM_{2.5} + 3.80 \pm 0.67$, $R=0.53$, $RMS=4.35$ avec $N=214$.

D'après la figure (5.1), si on observe un certain accord au-dessus de la région de Lille ($R=0.53$), l'accord est nettement moins satisfaisant au-dessus de la France ($R=0.43$) entre valeurs de $PM_{2.5}$ mesurées et de $PM_{2.5}^{CHIMERE}(sol)$ simulées dans le premier niveau par le modèle CHIMERE d'avril à octobre 2003.

Un premier travail de validation de la version du modèle CHIMERE simulant les aérosols de pollution a été mené par *Bessagnet et al.* [2004] en comparant, à l'échelle européenne, les valeurs simulées de $PM_{10}^{CHIMERE}(sol)$ et les mesures de PM_{10} fournies par les stations de mesures du réseau EMEP en 1999. Cette étude montre des coefficients de corrélation qui s'étendent de $R=0.30$ à $R=0.70$ et une sous-estimation importante de la masse totale des aérosols (particulièrement au-dessus du Sud de l'Europe, où les poussières désertiques peuvent jouer un rôle majeur). Les erreurs normalisées sur les prédictions des moyennes journalières de PM_{10} étaient alors de 30 à 80%. Cependant, parmi les 23 stations de mesures de PM_{10} du réseau EMEP sur lesquelles est basée cette étude, aucune n'est située en France. Une autre étude importante de validation de la simulation des $PM_{2.5}$ au sol par CHIMERE est celle de *Hodzic et al.* [2005] d'avril 2003 à mars 2004. Néanmoins, cette étude ne porte que sur la région d'Ile de France.

Lorsqu'on se concentre sur la période estivale de l'année 2003 autour de la station urbaine de Lille (93 points co-localisés), on observe une corrélation légèrement plus forte ($R=0.58$) entre $PM_{2.5}$ au sol et $PM_{2.5}^{CHIMERE}(sol)$ dans le premier niveau avec 95 % des points en dessous de la droite 1 : 1. Cet accord est néanmoins plus faible que dans l'étude de *Hodzic et al.* [2005] où il est observé un coefficient R égal à 0.70 en été au-dessus de Paris (stations urbaines intra-muros) et en proche banlieue ($N=183$). Notons que les stations du réseau IMPROVE aux Etats-Unis calculent, en plus des mesures courantes de $PM_{2.5}$ et de PM_{10} , une valeur de concentration massique spécifique à certaines espèces de fines particules. Cette quantité est appelée « ReConstructed Fine Mass » (ou « RCFM ») et représente la somme des concentrations en masse du sulfate d'ammonium, de la matière organique (OC), du carbone suie (BC) et des fines particules de poussière. Lorsque ces mesures sont comparées aux valeurs de RCFM simulées par le modèle de circulation générale GOCART (« Goddard Global Ozone Chemistry Aerosol Radiation and Transport ») au-dessus de 135 stations du réseau IMPROVE aux Etats Unis en 2001 comme dans l'étude de *Chin et al.* [2007], on observe un bien meilleur accord que le nôtre entre contenu en aérosols mesuré et simulé proche de la surface ($R=0.76$). L'élimination de certaines espèces comme le nitrate ou les particules de sel marin mal représentées par le modèle en est certainement la cause.

La figure (5.1) montre, de plus, une sous-estimation générale des valeurs de $PM_{2.5}^{CHIMERE}(sol)$ simulées par le modèle dans le 1^{er} niveau (92% des points sont en-dessous de la droite 1 : 1 au-dessus de la France contre 90% à Lille). Cette sous-estimation générale du contenu en particules dans le 1^{er} niveau par le modèle CHIMERE est également mise en évidence dans l'étude de *Hodzic et al.* [2005] et cela, particulièrement en août 2003. D'après cette étude, où il a été comparé les mesures de PM_{10} au sol et les simulations du modèle CHIMERE d'avril 2003 à mars 2004 au-dessus de 3 types de stations (urbaine, rurale et à proximité des villes) dans la région d'Ile de France, cette sous-estimation pourrait être due à :

- (i) une sous-estimation de la formation de SOA en été [*Hodzic et al.* 2004, *Bessagnet et al.* 2004 et *Vautard et al.* 2005],
- (ii) Un manque de particules de type poussières désertiques, de remise en suspension ou d'érosion locale par le modèle,

(iii) et/ou une absence de feux simulés provenant du Portugal en août 2003.

En effet, en ce qui concerne les deux derniers points, les aérosols de poussières désertiques et de feux de biomasse ne sont pas simulés dans le produit « PM2.5_anth » du modèle CHIMERE utilisé. De plus, dans le cas des autres produits aérosols comme celui des poussières désertiques, le modèle échoue, de façon générale, à représenter le moindre événement exceptionnel d'aérosols (événement de poussières provenant du nord de l'Afrique, feux de biomasse...) [*Communication personnelle*, équipe CHIMERE/ INERIS].

En plus des explications précédentes, rappelons la faible résolution spatiale de $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ du modèle CHIMERE. En effet, la sous-estimation générale du modèle pourrait provenir de la comparaison d'une mesure très locale au sol de $PM_{2.5}$ à une valeur de $PM_{2.5}^{CHIMERE}$ (sol) moyennée sur une zone géographique étendue (où de fortes valeurs éventuelles peuvent être « noyées » par la moyenne spatiale). Cet effet de sous-estimation du modèle semble néanmoins amoindri au-dessus de grandes agglomérations [*Communication personnelle*, équipe CHIMERE/ INERIS].

Ajoutons que l'instrument TEOM, nécessaire à la prise de mesure de concentration massique au sol, sous-estime les mesures de PM de 20% à 50% (évaporation du nitrate d'ammonium, surtout en hiver) [Allen et al., 1997 ; Van Loon et al., 2003 ; Hodzic et al., 2004 ; Charron et al., 2004]. En conséquence, la sous-estimation du contenu en particules de la 1^{ère} couche du modèle pourrait être en réalité encore plus importante.

Le modèle CHIMERE n'est pas le seul à sous-estimer les mesures de concentration massique au sol. Entre autres, l'étude de Seigneur [2001] a évalué les performances de quelques modèles d'aérosols au cours d'événements de pollution au-dessus de Los Angeles. Les erreurs normalisées sur les prédictions des moyennes journalières de $PM_{2.5}$ étaient alors toutes de l'ordre de 50%.

Finalement, nous avons observé une nette sous-estimation du contenu au sol en aérosols de type « urbain » par le modèle ainsi qu'un accord peu satisfaisant entre valeurs simulées au sol de $PM_{2.5}^{CHIMERE}$ (sol) et mesures de $PM_{2.5}$ d'avril à octobre 2003. Si le contenu en aérosols ne semble pas correctement modélisé, il se pourrait que le contenu de la couche limite atmosphérique, supposé moins variable que celui au sol, le soit davantage. C'est pourquoi nous avons également intégré la concentration simulée jusqu'à la hauteur de couche limite fournie par le modèle MM5 (en divisant la valeur finale par cette même hauteur pour obtenir une quantité en $\mu g/m^3$) puis comparé cette valeur aux mesures de $PM_{2.5}$ au sol. On obtient des corrélations légèrement plus satisfaisantes au-dessus de la France ($R=0.50$ contre $R=0.43$) et au-dessus de Lille ($R = 0.59$ contre $R=0.53$). Les droites de régression sont, par contre, quasi-similaires.

5.1.2. Sélection des cas d'étude à partir des comparaisons CHIMERE-POLDER

Notre objectif est de combiner les mesures satellitaires et l'information de distribution verticale du modèle CHIMERE. Pour cela, il est nécessaire de s'appuyer sur une période d'étude montrant une forte corrélation entre la concentration massique simulée sur la verticale ($PM_{2.5}^{CHIMERE}$ (colonne) en $\mu g/m^2$) par le modèle et l'épaisseur optique satellitaire. L'accord est relativement faible ($R=0.50$ avec $N= 186347$ points) entre mesures d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ (440 nm,

dégradées sur la grille CHIMERE) et valeurs de $PM_{2.5}^{CHIMERE}$ (colonne) d'avril à octobre 2003 au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest lorsque les données sont comparées par maille de $0.5^\circ \times 0.5^\circ$. Il serait donc illusoire de vouloir combiner le modèle au satellite sur l'ensemble des journées d'avril à octobre au-dessus de notre zone d'étude.

Nous analysons, par la suite, l'évolution journalière du coefficient de corrélation (figure 5.2) entre mesures satellitaires d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ et valeurs de concentration simulées par le modèle ($PM_{2.5}^{CHIMERE}$ (sol) en turquoise en $\mu g/m^3$ ou $PM_{2.5}^{CHIMERE}$ (colonne) en bleu foncé en $\mu g/m^2$) d'avril à octobre 2003 (208 jours) au-dessus des terres .

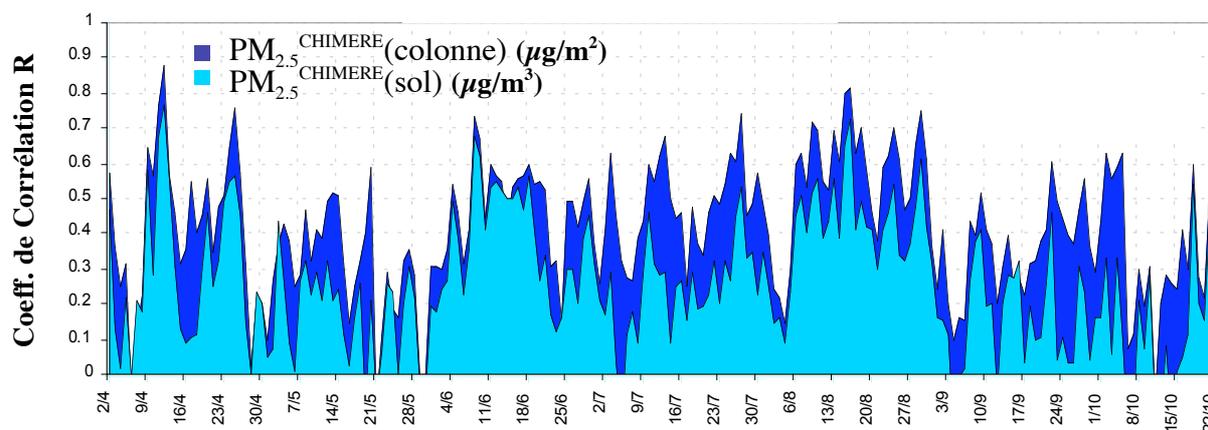


Figure 5.2 : Evolution journalière du coefficient de corrélation entre mesures d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ à 440 nm et simulations de $PM_{2.5}^{CHIMERE}$ (sol) (en turquoise, $\mu g/m^3$) ou intégrées sur la colonne atmosphérique ($PM_{2.5}^{CHIMERE}$ (colonne), en bleu foncé, $\mu g/m^2$) d'avril à octobre 2003 (208 jours) au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest. Les restitutions POLDER-2 sont dégradées sur la grille CHIMERE ($0.5 \times 0.5^\circ$) et la co-localisation spatiale s'effectue maille par maille. Avec l'aimable autorisation d'Anthony Ung

D'après la figure (5.2), on observe une forte variation, de jour en jour, du coefficient de corrélation entre AOT satellitaire et concentration massique simulée par le modèle sur la colonne. Le coefficient de corrélation semble, en majorité, meilleur l'été bien que les mesures ne couvrent pas toute l'année 2003 (mais seulement les mois d'avril à octobre). Par ailleurs, les valeurs de coefficient de corrélation de la figure (5.2) sont, en grande majorité, positifs. En effet, seuls 4 jours (parmi 208) présentent des coefficients de corrélation négatifs (7 avril, 22 et 31 mai et 12 octobre 2003). De plus, les journées montrant un coefficient de corrélation supérieur à 0.60 sont au nombre de 35 parmi un total de 208 jours. On note, en particulier, deux pics de coefficient de corrélation le 13 avril ($R=0.88$) et le 17 août 2003 ($R=0.82$). Nous expliquons, par la suite, quelques jours présentant un mauvais (figure 5.3) et un bon accord (figure 5.4) entre mesures satellitaires du radiomètre POLDER-2 et simulations du modèle CHIMERE.

La figure (5.3) montre une journée affichant un coefficient de corrélation négatif (31 mai) ainsi qu'une journée où il est observé un accord très faible ($R= 0.22$, le 4 août) entre mesures d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ et valeurs simulées de $PM_{2.5}^{CHIMERE}$ (colonne) au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest.

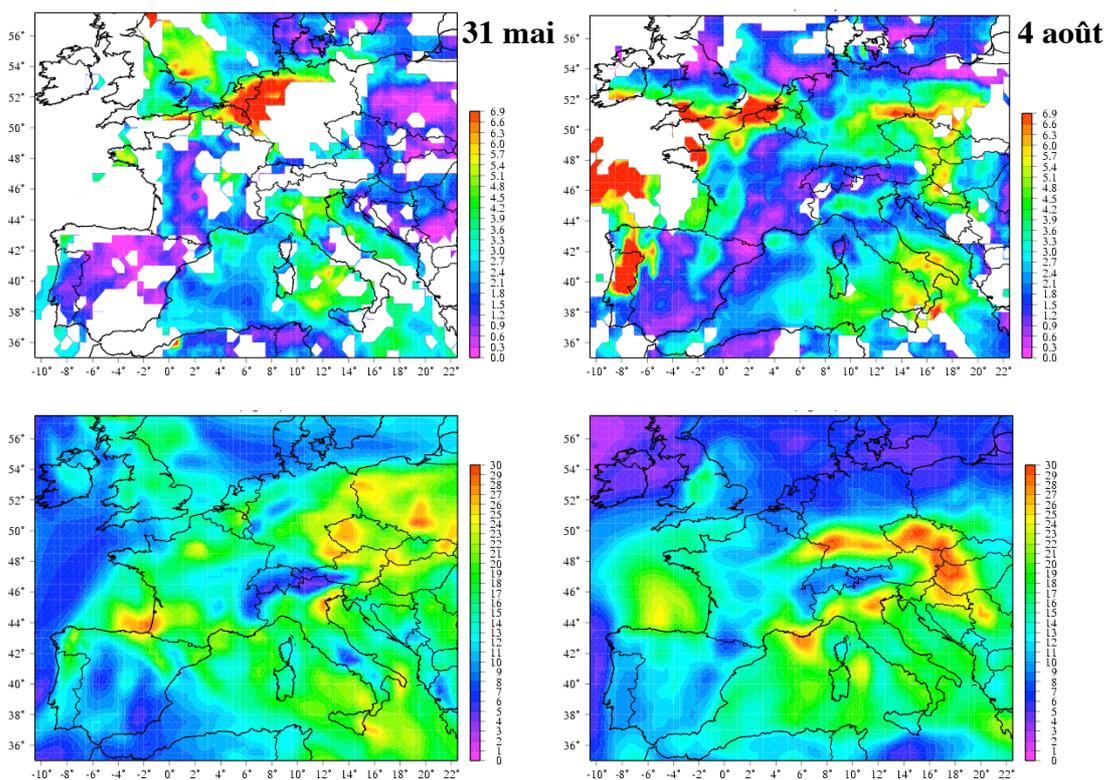


Figure 5.3 : Echantillon de journées de mauvais accord entre mesures satellitaires du radiomètre POLDER-2 et valeurs de $PM_{2.5}^{CHIMERE}$ (colonne) simulées sur la verticale par le modèle CHIMERE (de gauche à droite, 31 mai et 4 août 2003). En haut, les cartes d'AOT POLDER-2 à 440 nm (mode fin) dégradées sur la grille CHIMERE ($0.5^\circ \times 0.5^\circ$) et en bas, les cartes de valeurs de $PM_{2.5}$ correspondantes intégrées sur la colonne par le modèle CHIMERE. Avec l'aimable autorisation d'Anthony Ung

Un désaccord entre modèle et satellite peut résulter d'un dysfonctionnement du modèle. En effet, le modèle montre parfois un décalage spatio-temporel des panaches d'aérosols provenant d'une mauvaise localisation des sources d'émission et des transports. C'est ce qui semble être en partie la cause du mauvais accord le 31 mai 2003 (figure 5.3). En effet, alors que la carte d'AOT_{POLDER-2,Fin} à 440 nm montre de fortes valeurs au-dessus d'une partie de la Belgique, des Pays Bas et de l'Ouest de l'Allemagne, aucun panache significatif n'est observé sur la carte restituée par le modèle CHIMERE. Par ailleurs, de fortes valeurs de $PM_{2.5}$ intégrées sur la colonne sont simulées par le modèle CHIMERE au-dessus d'une partie des pays de l'Est alors qu'elles ne semblent pas observées par le radiomètre POLDER-2.

De plus, les panaches d'aérosols produits par les feux de végétation ainsi que la fraction fine des particules de poussières désertiques sont observées par le radiomètre POLDER-2 alors qu'ils sont absents des émissions du modèle CHIMERE. Des feux de forêts ont été signalés au Portugal à partir du 1^{er} août 2003. Ces feux de végétation sont en effet observés par le radiomètre POLDER-2 le 4 août sur la figure (5.3) alors qu'ils ne sont pas simulés par le modèle CHIMERE.

Ajoutons qu'un mauvais accord entre mesures satellitaires et simulations du modèle CHIMERE peut aussi provenir de faibles valeurs d'AOT_{POLDER-2,Fin} réduisant la dynamique spatiale ainsi que de l'absence d'un nombre considérable de mesures satellitaires du radiomètre POLDER-2 dû à la couverture nuageuse.

Comme il a été vu sur la figure (5.2), on observe néanmoins des jours présentant de fortes valeurs de coefficient de corrélation entre modèle et satellite comme le 13 avril (R=0.88) et le 17 août 2003 (R=0.82). Les cartes restituées par le radiomètre POLDER-2 et le modèle CHIMERE le 13 avril et le 17 août 2003 sont présentées sur la figure (5.4) ainsi que le graphe de comparaison entre mesures d'AOT_{POLDER-2,Fin} et valeurs simulées de PM_{2.5}^{CHIMERE} (colonne).

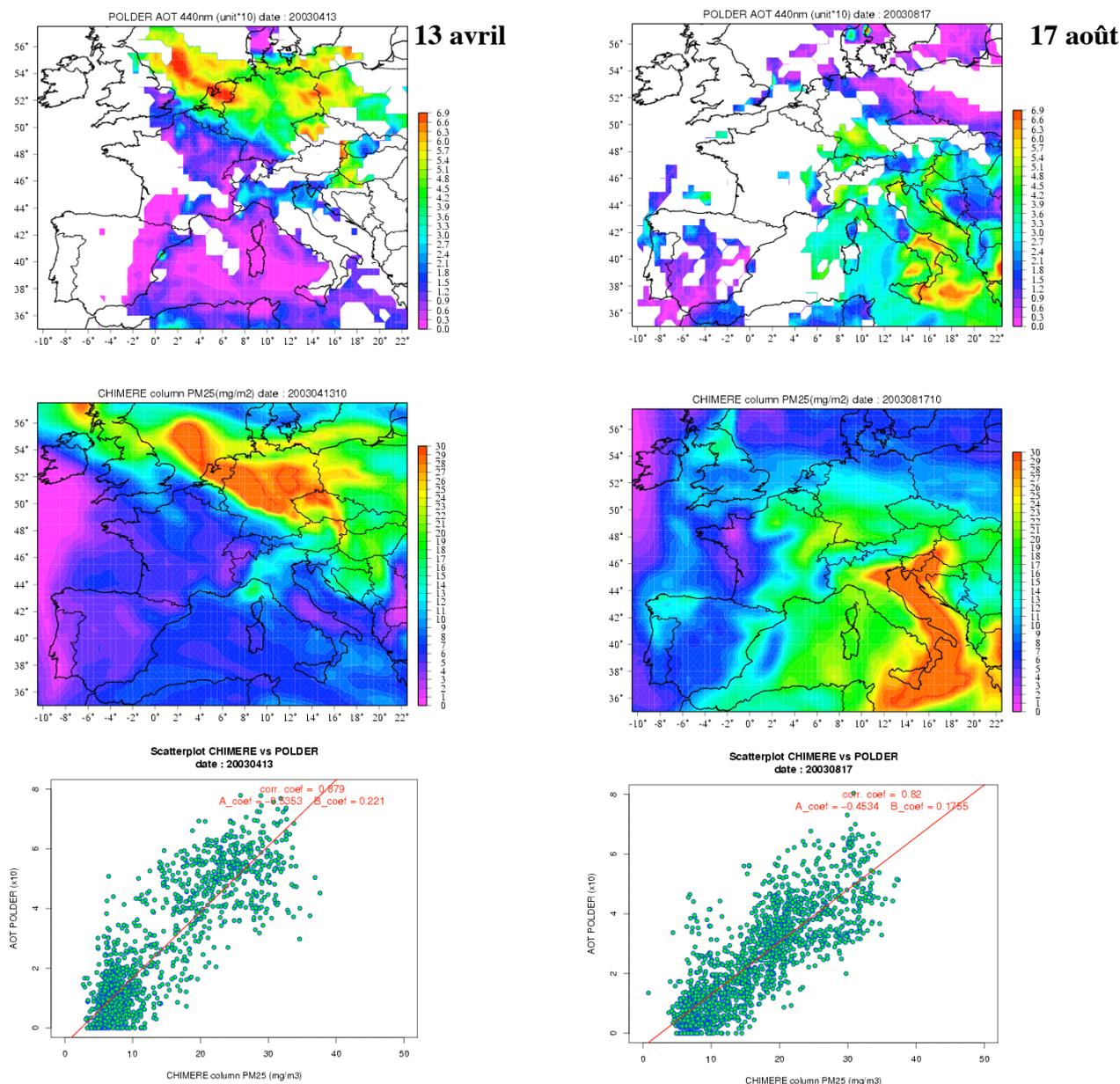


Figure 5.4 : Exemples d'accord satisfaisant entre modèle et satellite le 13 avril (à gauche) et le 17 août 2003 (à droite). De haut en bas, la carte d'AOT_{POLDER-2,Fin} à 440 nm dégradée sur la grille du modèle CHIMERE, la carte de PM_{2.5}^{CHIMERE} (colonne) simulées sur la colonne (jusqu'à environ 5.5 Km) et le graphe de corrélation des 2 cartes précédentes pour les jours correspondants. Avec l'aimable autorisation d'Anthony Ung.

Les journées présentées sur la figure (5.4) sont toutes les deux entourées d'autres journées présentant un bon accord entre modèle et satellite. On enregistre, en effet, un coefficient de corrélation constamment supérieur à 0.56 du 10 avril au 15 avril et à 0.53 du 9 au 20 août 2003 entre le modèle et le satellite lorsque les valeurs sont comparées de pixel à pixel. On observe, le 13 avril 2003 (journée de plus forte corrélation entre modèle et satellite sur la figure 5.2), de forts contenus en aérosols au-dessus de la Mer du Nord et des Pays-Bas ainsi que de faibles contenus en particules au Sud de ces régions selon la carte d'AOT du radiomètre POLDER-2 et la carte de $PM_{2,5}^{CHIMERE}$ (colonne) du modèle CHIMERE. La journée du 17 août, quant à elle, présente, malgré un manque de mesures d'AOT_{POLDER-2,Fin} au-dessus de la France (ainsi que la Belgique, les Pays Bas, l'Angleterre...), de fortes valeurs de contenu en aérosols au-dessus du Sud de l'Italie et de la Sicile selon le modèle et le satellite.

Finalement, que ce soit le 13 avril ou le 17 août 2003, on observe un gradient spatial de contenu en aérosols simulé par le modèle fidèle à la mesure satellitaire. Un bon accord entre modèle et satellite semble donc nécessiter un panache assez étendu présentant de fortes valeurs d'AOT satellitaires au-dessus de la zone d'étude, ainsi qu'un nombre significatif de mesures satellitaires. De même, la nature de l'aérosol en présence a une influence considérable sur le bon accord entre modèle et satellite puisque les émissions de feux de forêt et de poussières désertiques ne sont pas correctement représentées par le modèle CHIMERE.

Nous avons sélectionné, à partir de la figure (5.2), les journées présentant une corrélation satisfaisante (coefficient de corrélation R supérieur ou égal à 0.70 sur la figure 5.2) entre modèle CHIMERE et mesures du satellite POLDER-2. Ces jours sont au nombre de 9 et sont listés dans le tableau (5.2).

Numéro de jour	Date	Coefficient de corrélation	Pente	Ordonnée origine
1	12/04/03	0,78	0,21	0,18
2	13/04/03	0,88	0,22	-0,53
3	28/07/03	0,75	0,14	-0,11
4	10/08/03	0,74	0,17	0,01
5	11/08/03	0,71	0,17	-0,03
6	14/08/03	0,70	0,13	0,70
7	16/08/03	0,80	0,20	-0,17
8	17/08/03	0,82	0,17	-0,45
9	19/08/03	0,71	0,14	-0,31

Tableau 5.2 : Jours consécutifs de bonne corrélation entre mesures d'AOT_{POLDER-2,Fin} à 440 nm et valeurs simulées de $PM_{2,5}^{CHIMERE}$ (colonne) ($\mu g/m^2$) ($R \geq 0.70$) au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest (co-localisation par maille) d'avril à octobre 2003. Les mesures d'AOT_{POLDER-2,Fin} sont dégradées sur la grille CHIMERE ($0.5^\circ \times 0.5^\circ$). Les jours sont listés ainsi que le coefficient de corrélation, la pente et l'ordonnée à l'origine de la droite de régression.

Nous nous intéressons à étudier, par la suite, la relation entre modèle et satellite au-dessus des 20 mailles du tableau (5.1) où il existe une (ou plusieurs) stations de mesures de $PM_{2,5}$ au sol. En effet, le paramètre satellitaire de qualité de l'air que l'on veut obtenir grâce à la distribution verticale des aérosols simulée par le modèle CHIMERE devra être confronté directement aux mesures de $PM_{2,5}$ au sol et il est nécessaire de s'assurer du bon accord entre modèle et satellite au-dessus de cette zone d'étude.

Il est tout d'abord observé un coefficient de corrélation de 0.63 entre concentrations simulées sur la verticale par le modèle CHIMERE ($PM_{2.5}^{CHIMERE}$ (colonne)) et mesures d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ à 440 nm au-dessus des 20 mailles en France du tableau (5.1) d'avril à octobre 2003. Bien que significatif, l'accord entre mesures satellitaires et simulées par le modèle ne semble pas assez satisfaisant pour envisager d'utiliser l'information verticale du modèle CHIMERE en toutes circonstances c'est-à-dire pour tous types de situations météorologiques et tous types de particules. La figure (5.5) montre la comparaison entre ces mêmes valeurs mais au cours des 9 journées de bon accord du tableau (5.2).

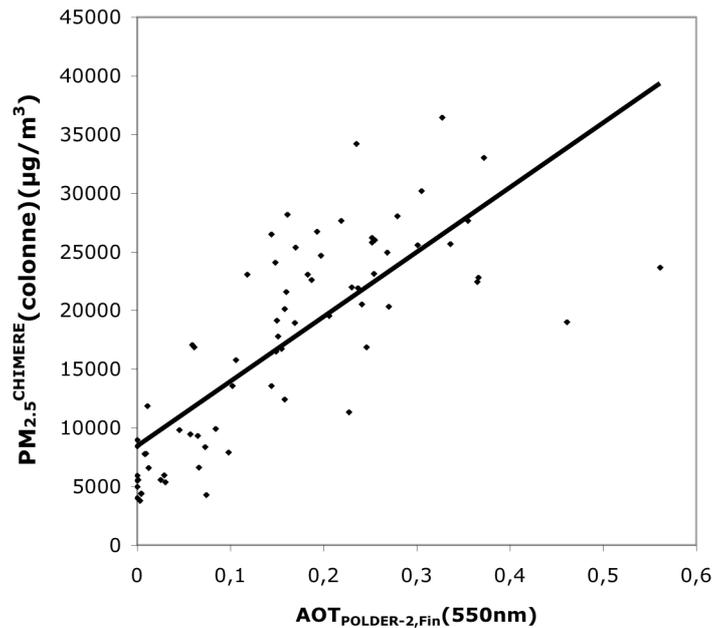


Figure 5.5 : Comparaison entre mesures d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ (440 nm, dégradées sur la grille du modèle CHIMERE) et valeurs simulées de $PM_{2.5}^{CHIMERE}$ (colonne) ($\mu g/m^2$) au-dessus de la France (20 mailles du tableau 4.1) au cours des 9 jours du tableau (5.2) présentant un bon accord entre valeurs du modèle et mesures satellitaires.

$$PM_{2.5}^{CHIMERE}(\text{colonne}) = 55146.25 \times AOT_{POLDER-2,Fin,440nm} \pm 5157 + 8431.20 \pm 1037, R=0.79 \text{ avec } N=72.$$

D'après la figure (5.5) et comme attendu, on observe un accord satisfaisant ($R=0.79$) entre mesures satellitaires et valeurs du modèle CHIMERE au-dessus des 20 mailles (tableau 5.1) en France au cours des journées du tableau (5.2). L'étude se poursuit, par conséquent, au cours de ces 9 journées de bon accord entre mesures satellitaires et simulations du modèle et au-dessus des 20 mailles du tableau (5.1).

5.1.3. Estimation de la masse au sol à partir de la combinaison entre le modèle et le satellite

Le calcul d'un AOT simulé (τ_{CHIM}) par le modèle CHIMERE s'effectue en intégrant le produit du profil vertical de concentration massique (M_i) par la section spécifique massique d'extinction (s_i) sur $i=N$ niveaux du modèle :

$$\tau_{CHIM} = \sum_{i=1}^N M_i \times s_i \times \Delta z_i \quad (5.1)$$

où Δz_i est l'épaisseur du niveau vertical i . Dans le cas de la valeur τ_{CHIM} , N est égal au nombre total de niveaux (égal à 8 pour le modèle CHIMERE).

Notons F , le facteur reliant les mesures d'AOT du radiomètre POLDER, τ_{POL} , aux valeurs d'AOT simulées par le modèle CHIMERE (τ_{CHIM}). On peut alors écrire :

$$\tau_{POL} = F \times \tau_{CHIM} \quad (5.2)$$

On pose R , le rapport entre la valeur de l'AOT simulé par le modèle jusqu'à la hauteur du premier niveau et celle calculée sur les N couches du modèle :

$$R = \frac{M_1 \times s_1 \times \Delta z_1}{\sum_{i=1}^N M_i \times s_i \times \Delta z_i} \quad (5.3)$$

On introduit également la valeur de l'AOT POLDER correspondant au premier niveau du modèle ($\tau_{POL,\Delta z_1}$), produit de l'AOT restitué par le radiomètre POLDER, τ_{POL} , et du rapport R de l'équation (5.3) tel que :

$$\tau_{POL,\Delta z_1} = R \times \tau_{POL} \quad (5.4)$$

Finalement, si on considère un mélange homogène d'aérosols dans la première couche du modèle, le paramètre POLDER de concentration massique élémentaire au sol, $M_{POL}(H_1)$, est égal au rapport entre l'AOT POLDER correspondant au premier niveau du modèle ($\tau_{POL,\Delta z_1}$) par le produit de la section (s_1) et de la hauteur du premier niveau (Δz_1):

$$M_{POL}(H_1) = \frac{\tau_{POL} \times R}{s_1 \times \Delta z_1} \quad (5.5)$$

Rappelons que le profil de concentration massique M_i est celui des particules anthropiques directement fourni par le modèle CHIMERE et le paramètre $M_{POL}(H_1)$ correspond, dans notre étude, à des aérosols de type « urbain ». Ce dernier est simulé à humidité ambiante et se doit d'être « asséché » grâce à la formule (2.8) puisqu'il est, par la suite, confronté aux mesures « sèches » de $PM_{2.5}$ au sol.

La figure (5.6) et le tableau (5.3) montrent, à titre d'exemple, le calcul de ce paramètre $M_{POL}(H_1)$ pour la journée du 5 août 2003 à Lille.

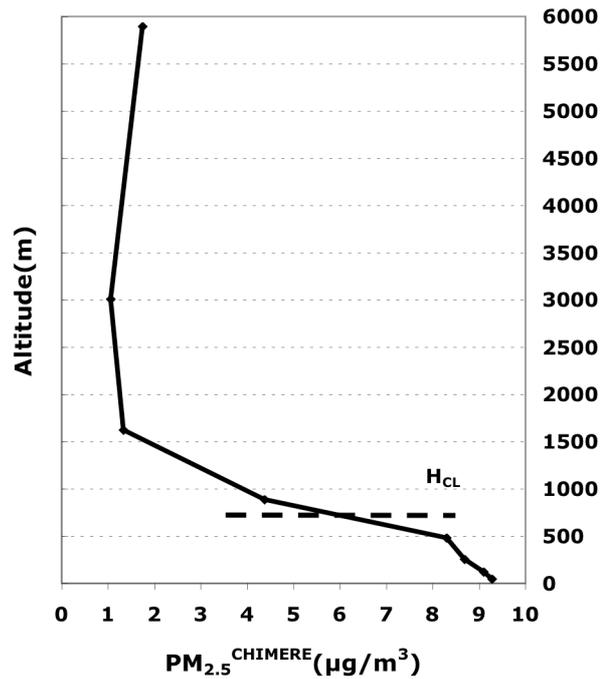


Figure 5.6 : Profil vertical de concentration massique simulé par le modèle CHIMERE $PM_{2,5}^{CHIMERE}$ (à 10 :00 en $\mu\text{g}/\text{m}^3$) le 05 août 2003 à Lille. Le trait noir en pointillé horizontal montre la hauteur de couche limite, H_{CL} , fournie par le modèle MM5.

Date	$AOT_{POLDER-2,Fin}$ (550 nm)	$AOT_{AERONET,Fin}$ (550nm)	$PM_{2,5}$ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	H_1 (m)	R (%)	$M_{POL}(H_1)$ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
5 août 2003	0,28	0,24	24	44	3	25

Tableau 5.3 : Mesures d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ (550nm, dégradée sur la maille CHIMERE), d' $AOT_{AERONET,Fin}$ (550 nm, moyenne entre 9h et 11h) de $PM_{2,5}$ au sol (moyenne entre 9h et 11h, en $\mu\text{g}/\text{m}^3$), valeurs simulées de hauteur du premier niveau du modèle H_1 (en m), du rapport R de la formule (5.3) et du paramètre combiné $M_{POL}(H_1)$ (en $\mu\text{g}/\text{m}^3$) le 5 août 2003.

D'après la figure (5.6), la distribution verticale simulée de la concentration massique des particules ($PM_{2,5}^{CHIMERE}$) décroît légèrement jusqu'à la hauteur de couche limite (H_{CL}) simulée par le modèle MM5 (H_{CL} égale à ~ 558 m) puis diminue fortement jusqu'à une altitude d'environ 3 Km pour ensuite augmenter légèrement jusqu'au dernier niveau du modèle. Le rapport R entre la valeur d' $AOT_{CHIMERE}$ du premier niveau du modèle et de la colonne (formule 5.3) est égal à 3 % et la hauteur du premier niveau est de ~ 44 m. La mesure d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ de 0.28 à 550 nm est validée grâce à la mesure d' $AOT_{AERONET,Fin}$ et la valeur du paramètre $M_{POL}(H_1)$ est très proche de celle de $PM_{2,5}$ mesurée au sol. La combinaison du modèle et du satellite semble donc fournir une mesure adéquate de concentration massique au sol le 5 août 2003 à Lille.

5.1.3.1. Calcul de l'épaisseur optique à partir du modèle

D'après les formules (5.3) et (5.5), il est nécessaire de calculer une valeur d'épaisseur d'optique en sortie du modèle CHIMERE. Nous avons adopté une méthode simplifiée de calcul de cette épaisseur optique. La façon la plus simple est d'appliquer un facteur de conversion fixe entre simulation de concentration massique intégrée sur la verticale et

épaisseur optique. Cette méthode revient, d'après la formule (5.1), à fixer la section spécifique massique d'extinction constante sur la verticale. Nous avons également testé une méthode de calcul prenant en compte l'effet du profil d'humidité relative. Nous validons, par la suite, ce calcul en comparant les valeurs d'AOT ainsi obtenues avec les mesures d'AOT photométriques d'avril à octobre 2003.

Certains modèles comme celui de circulation générale GOCART (« Goddard Global Ozone Chemistry Aerosol Radiation and Transport ») provenant du Georgia Institute of Technology aux Etats Unis ou LMDz couplé au modèle d'émission/ chimie INCA (« Interaction with Chemistry and Aerosols ») du Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMD) à Paris fournissent une valeur d'AOT. Notons que le calcul de cette valeur d'AOT simulée comporte cependant de nombreuses différences selon les modèles. A l'inverse, le produit aérosol du modèle CHIMERE est habituellement fourni sous forme de concentration massique uniquement. De nombreuses études ont eu pour but de valider les sorties de modèles grâce aux photomètres solaires au sol comme celles de *Tegen et al.* [1997] ou de *Takemura et al.* [2000]. Nous pouvons citer notamment la validation globale du modèle GOCART dans l'étude de *Chin et al.* [2002], du modèle LMDz-INCA dans la thèse de *Generoso* [2004] et du modèle GISS ModelE (« Goddard Institute for Space Studies ») [*Liu et al.*, 2006]. Les seules études de validation des produits du modèle CHIMERE en termes d'AOT sont celles de *Hodzic et al.* [2004] et [2006]. Dans ce cas, les simulations sont confrontées aux mesures photométriques en termes d'AOT respectivement au-dessus de Paris d'octobre 2002 à septembre 2003 et au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest au cours du mois d'août 2003.

Le calcul du produit d'épaisseur optique de modèles de circulation générale comme GOCART, LMDz-INCA, GISS ou celui encore non-opérationnel du modèle CHIMERE utilisé dans les études de *Hodzic et al.* [2004] et [2006] s'effectue en dissociant les espèces chimiques des aérosols et grâce au calcul de la section spécifique massique d'extinction correspondant à chaque espèce. Rappelons que cette section (formule 2.2) est fonction, pour chaque espèce, de la densité volumique et du facteur d'efficacité d'extinction (lui-même fonction de l'indice de réfraction et de la taille des particules). Les modèles, comme ceux cités précédemment, utilisent, pour chaque espèce chimique, des valeurs d'indice de réfraction, de densité volumique et de rayon effectif (ou de distribution en taille simulée par le modèle) issues de la littérature (*Mallet et al.* [2003] dans le cas de l'étude de *Hodzic et al.* [2004], GADS c'est-à-dire « Global Aerosol Data Set », *Köpke et al.* [1997] et *d'Almeida et al.* [1991] dans le cas du modèle GOCART, ...). L'étude d'inter comparaison entre modèles « AeroCom » [*Kinne et al.*, 2003, 2005 ; *Schulz et al.*, 2006] a permis, entre autres résultats, de mettre en évidence les différences de propriétés optiques utilisées dans chacun des modèles. L'étude de *Kinne et al.* [2005] met en évidence la large gamme de sections efficaces massiques d'extinction utilisées par une vingtaine de modèles de circulation globale. Ceci est confirmé par l'étude de *Hand et Malm* [2007] qui montre une multitude de valeurs de sections spécifiques massiques de diffusion différentes dans la littérature depuis 1990.

Nous avons choisi, dans cette étude, de ne pas dissocier les aérosols par espèce chimique et d'utiliser uniquement le produit CHIMERE de concentration massique des particules anthropiques que l'on peut qualifier d'aérosols de type « pollution urbaine ». En termes de simplification, on considère un type d'aérosol « urbain » comprenant les aérosols carbonés (OC et BC) et les particules solubles autres qu'organiques (WS). La nouveauté de cette étude est donc le calcul d'une valeur d'AOT équivalente à un type d'aérosol « urbain » à partir d'une concentration massique des particules anthropiques du modèle CHIMERE.

Rappelons (formules 5.1 et 2.7) la relation liant l'épaisseur optique en aérosols, τ_{CHIM} , au profil de concentration massique en particules, M_i d'un type d'aérosol « urbain » simulé par le modèle CHIMERE à chaque niveau i :

$$\tau_{CHIM} = \sum_i s_{ext,HRref}^{mass} \times f(HR_i, HRref) \times M_i \times \Delta z_i \quad (5.6)$$

où $s_{ext,HRref}^{mass}$ (en $m^2/\mu g$) est la section spécifique massique d'extinction d'un aérosol de type « urbain » pour une humidité de référence, $HRref$, et humidifiée grâce à la fonction f , dépendante du profil d'humidité relative HR_i . Δz_i est l'épaisseur du niveau i du modèle.

Nous nous servons, par la suite, de la modélisation de l'humidification de la section spécifique de diffusion, proposée par Hänel [1976] tel que:

$$f(HR_i, HRref) = \left(\frac{(1 - HR_i)}{(1 - HRref)} \right)^{-g} \quad (5.7)$$

où g est un coefficient à déterminer de manière empirique.

Dans la suite de cette étude, nous utilisons, comme référence (valeur $HRref$ dans les formules 5.6 et 5.7), la valeur de l'humidité relative à 0%.

Nous appliquons la formule (5.7) à une section spécifique massique d'extinction alors qu'elle est dérivée de l'étude de l'impact de l'humidité relative sur la section spécifique de diffusion. Dans ce cas, l'étude de Gasso *et al.* [2000] présente des valeurs de coefficient g_{diff} comprises entre 0.27 et 0.6 alors qu'elles sont comprises entre 0.47 et 1.35 dans l'étude de Randriamiarisoa *et al.* [2006]. Les sections spécifiques massiques d'extinction et de diffusion sont liées par les propriétés d'absorption, la distribution en taille et la densité des particules. D'une part, l'absorption de la lumière par les particules est due, en grande partie, aux aérosols de carbone suie (BC) observés, par ailleurs, comme fortement non hygroscopique. Il peut en être déduit une fonction d'humidification de la section spécifique d'absorption, f_{abs} , (avec $f_{ext} = f_{diff} + f_{abs}$) négligeable. D'autre part, au cours de notre précédente étude des propriétés optiques et microphysiques moyennes des particules au-dessus de l'Europe de l'Ouest de 1994 à 2007 (section 3.3.1), on observe des valeurs de ω_0 supérieures à 0.90 montrant, en moyenne, une absorption modérée mais non négligeable de la lumière par les particules. Nous supposons, par conséquent, une fonction d'humidification de la section spécifique d'extinction similaire à celle de la diffusion. Notons que cette simplification est utilisée dans d'autres études comme celle de Raut *et Chazette* [2007].

De plus, bien que l'équation (5.7) soit utilisée par de nombreux auteurs comme Covert *et al.* [1972], Boucher *et Anderson* [1995], Ross *et Hobbs* [1998], Kotchenruther *et al.* [1998 et 1999], Gasso *et al.* [2000], Randriamiarisoa *et al.* [2006] ou Raut *et Chazette* [2007], ces études ne concernent pas toutes le même type de particules. Citons par exemple, l'étude de Raut *et Chazette* [2007] portant sur les particules de type « urbaines » au-dessus de Paris au cours de la campagne LISAIR (« Lidar pour la surveillance de l'AIR ») du 10 au 30 mai 2005 alors que l'étude de Kotchenruther *et al.* [1998] porte plutôt sur les particules de feux de végétation au-dessus du Brésil au cours de la campagne SCAR-B (« Smoke, Clouds And Radiation-Brazil »). Il est donc fait l'hypothèse de mêmes propriétés optiques entre aérosols de feux de végétation et aérosols de type « urbain » (WS, OC et BC). D'ailleurs, l'étude de

Chazette et Lioussé [2001] considère, en première approximation, que les propriétés optiques des aérosols de feux sont similaires à celles des aérosols de carbone organique (OC).

La première méthode de calcul de l'AOT simulé par le modèle consiste à définir une valeur de section spécifique massique d'extinction constante sur la colonne atmosphérique, c'est-à-dire « pour une humidité ambiante ». Rappelons que c'est une forte simplification que de fixer une section de type « urbaine » à « humidité ambiante ». En effet, d'après *Chin et al.* [2002], dans le cas des aérosols de sulfates et de type OC, la section spécifique massique d'extinction à 550 nm est 10 fois plus importante à 99 % qu'à 0% d'humidité relative. Une forte variation du profil d'humidité relative peut donc avoir des conséquences non négligeables sur le calcul de l'AOT. Fixer une section spécifique massique d'extinction par espèce chimique a cependant déjà été vu, et cela, notamment dans l'étude de *Generoso et al.* [2003]. Dans cette étude, l'AOT est simulé à 865 nm à partir d'une concentration massique intégrée sur la colonne et un facteur constant basé sur des distributions en taille typiques de l'aérosol de feux de végétation (égal à $3,5 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \mu\text{g}^{-1}$ pour l'espèce OC et $4,5 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \mu\text{g}^{-1}$ pour l'espèce BC selon *Dubovik et al.* [2002] et *Lioussé et al.* [1995 et 1996]). Notons que ces valeurs peuvent être comparées à celles du tableau (2.1) précédent concernant les espèces BC, WS et OC à humidité ambiante.

Le tableau (5.4) montre les valeurs d'extinction volumique (autrement dit, le rapport entre la mesure d'épaisseur optique et de concentration en volume des particules, en μm^{-1}) moyennes mesurées à humidité ambiante au-dessus de la France en 1999 [*Dubovik et al.*, 2002].

[Dubovik et al, 2002]		Extinction volumique (μm^{-1})		ω_0	
AOT _{AERONET,Total} (440nm)	λ (nm)	$r_p < 1\mu\text{m}$	$r_p < 15\mu\text{m}$	$r_p < 1\mu\text{m}$	$r_p < 15\mu\text{m}$
0,1	440	4,88	3,34	0,928	0,913
0,1	550	3,03	2,16	0,913	0,894
0,9	440	7,28	5,33	0,946	0,938
0,9	550	5,35	3,97	0,943	0,933
0,5	440	6,56	\	0,942	\

Tableau 5.4 : Valeurs d'extinction volumique (mesure intégrée sur la colonne atmosphérique, μm^{-1}) et d'albédo de diffusion simple, ω_0 , au-dessus de la France d'après *Dubovik et al.* [2002] à différentes longueurs d'ondes λ , correspondant à différentes mesures d'AOT_{AERONET,Fin} à 440 nm et à des rayons physiques de particules inférieurs à 1 μm ou 15 μm . Ces valeurs concernent les particules de type « urbain/ industriel ».

D'après le tableau (5.4), la valeur d'extinction volumique d'aérosols de type « urbain » et de rayon physique inférieur à 1 μm (c'est-à-dire de diamètre aérodynamique inférieur à 2.5 μm) au-dessus de la France à 440 nm est égale à 6.56 μm^{-1} dans le cas d'une mesure d'AOT_{AERONET,Total} égale à 0.5 à 440 nm. Cette valeur est similaire à celle que nous obtenons en moyenne au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest de 1994 à 2007 (tableau 3.2). On observe, en effet, une mesure d'extinction volumique moyenne de 6.33 μm^{-1} (correspondant à une valeur moyenne d'AOT du mode fin de 0.19 à 440 nm et de concentration en volume du mode fin de 0.03 $\mu\text{m}^3/\mu\text{m}^2$).

D'après l'étude d'*Horvath* [1993], la densité volumique d'un aérosol de type (POM) (POM = 1.3 x OC d'après *Chazette et Lioussé*, [2001]) et de type (BC) est de 1.5 $\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ alors

qu'elle est de 1.7 g.cm^{-3} pour un aérosol de type (WS) d'après Sloane [1984] et Boucher and Anderson [1995]. Nous fixons, par conséquent, dans cette étude, une densité moyenne urbaine à humidité ambiante égale à 1.6 g.cm^{-3} sur la colonne atmosphérique. Notons que l'humidité relative, en plus d'influer sur la taille de la particule ainsi que sur son indice de réfraction, a un impact, en toute rigueur, sur la densité volumique de la particule.

Grâce à une densité volumique fixée à 1.6 g.cm^{-3} pour un aérosol de type « urbain » et une valeur d'extinction volumique d'après le tableau (5.4), il peut être calculé une section spécifique massique d'extinction à humidité ambiante ($\text{m}^2.\mu\text{g}^{-1}$) de type « urbaine » et constante sur la colonne atmosphérique. Celle-ci est, par exemple, égale à $4.1 \times 10^{-6} \text{ m}^2.\mu\text{g}^{-1}$ à 440 nm pour des particules dont le rayon est inférieur à $1 \mu\text{m}$ et pour un AOT photométrique de 0.5 à 440 nm. La valeur d'AOT simulée par le modèle obtenue grâce à cette première méthode de calcul est notée $\text{AOT}_{\text{SectCste}}^{\text{CHIMERE}}$ par la suite.

La deuxième méthode de calcul de l'AOT simulé par le modèle consiste à faire varier la section spécifique massique d'extinction en fonction du profil vertical d'humidité relative fourni par le modèle météorologique MM5. Le calcul de l'AOT nécessite donc de connaître, d'après les équations (5.6) et (5.7), la valeur de la section efficace massique à 0 % d'humidité relative puis la valeur du coefficient g.

Dans la formule (5.7), lorsque l'humidité relative tend vers 100% (c'est-à-dire vers 1), le facteur d'humidification, f, tend vers l'infini. Il faut donc être particulièrement vigilant à ce que l'humidité relative ne soit pas trop importante et nous y reviendrons par la suite. L'humidité relative fournie par le modèle MM5 est par conséquent, dans un premier temps, limitée à 99 % dans cette étude.

Le tableau (5.5) montre une partie des mesures de section spécifique massique d'extinction effectuées lors de la campagne de terrain ESCOMPTE [Mallet et al. 2003] en fonction de plusieurs valeurs d'humidité relative. Cette campagne avait pour objectif de contraindre les modèles de transport de pollution atmosphérique grâce à la mesure de propriétés optiques des aérosols autour de la région de Marseille du 4 juin au 13 juillet 2001.

$S_{\text{ext}}^{\text{mass}} (\text{m}^2.\text{g}^{-1})$ à 530 nm	Types d'aérosols		
Humidité relative	OC	WS	BC
0%	1,71	2,37	9,49
20%	1,78	2,49	9,49
30%	1,85	2,54	9,49
40%	1,93	2,6	9,49
50%	2,02	2,76	9,49
60%	2,16	2,91	9,49
70%	2,33	3,06	9,49
80%	2,61	3,33	9,49
90%	2,99	3,86	9,49
95%	3,42	4,17	9,49
98%	4,08	4,73	9,49

Tableau 5.5 : Mesures de sections spécifiques massiques d'extinction à 530 nm ($\text{m}^2.\text{g}^{-1}$) lors de la campagne ESCOMPTE [Mallet et al., 2003] par type d'aérosols (égal à OC, WS et BC) et en fonction de l'humidité relative. Le type BC est considéré hydrophobe.

Dans un premier temps, on calcule la valeur de la section efficace massique $s_{ext,dry,urbain}^{mass}(\lambda)$ à 0 % d'humidité relative concernant le type d'aérosol « urbain » de la manière suivante:

$$s_{ext,dry,urbain}^{mass}(\lambda) = P_{BC} \times s_{ext,dry,BC}^{mass}(\lambda) + P_{WS} \times s_{ext,dry,WS}^{mass}(\lambda) + P_{OC} \times s_{ext,dry,OC}^{mass}(\lambda) \quad (5.8)$$

où P est le pourcentage de la masse de l'espèce considérée par rapport à la masse totale au-dessus de régions urbaines/industrielles.

En ce qui concerne ces pourcentages, l'étude de *Mallet et al.* [2003] observe que 44 ± 6 % de l'extinction de la lumière est due au type d'aérosols (WS), 20 ± 4 % due au type (BC) et 16 ± 3 % due au type (OC) au-dessus de la région de Marseille en été 2001. L'étude de *Chazette et Lioussse*, [2001] observe, quant à elle, 20% de l'extinction due au type d'aérosols (WS), 30% due au type (BC) et 35 % due au type (OC) au-dessus de la région de Thessaloniki le 12 et 13 juin 1997. Grâce à la formule (5.8) et les valeurs de section spécifique d'extinction massique à 0 % d'humidité du tableau (5.5), la section $s_{ext,dry,urbain}^{mass}(\lambda)$ est alors égale à $3.21 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \mu\text{g}^{-1}$ dans le cas de l'étude de *Mallet et al.* [2003] et égale à $3.91 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \mu\text{g}^{-1}$ à 530 nm dans le cas de l'étude de *Chazette et Lioussse*, [2001] pour un type d'aérosols « urbain ». La valeur de la section $s_{ext,dry,urbain}^{mass}(\lambda)$ est, par conséquent, imposée par la suite égale à la moyenne des deux valeurs précédentes c'est-à-dire $3.56 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \mu\text{g}^{-1}$ à 530 nm.

Notons que l'étude de *Putaud et al.* [2003] montre, quand à elle, des valeurs de P_{BC} , P_{WS} (principalement aérosols de sulfates) et de P_{OC} généralement plus faibles que celles de *Chazette et Lioussse*, [2001] et *Mallet et al.* [2003] et respectivement égales à 8 %, 17 % et 17% au-dessus ou proche des villes (le reste étant constitué de 17% de nitrates, 10% d'ammonium, 3% de sels marins, 7 % de poussières minérales et 21 % d'espèce inconnue). L'étude de *Putaud et al.* [2003] s'appuie sur une dizaine d'années de mesures au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest grâce à de nombreuses stations de mesures de $\text{PM}_{2.5}$ (de type rurales, urbaines, périurbaines, ...).

Dans un deuxième temps, il est possible de calculer le coefficient g de la formule (5.7) en utilisant les valeurs de section spécifique massique d'extinction à 0% d'humidité relative du tableau (5.5) et en ajustant les équations (5.6) et (5.7) aux valeurs du tableau (5.5). L'ajustement des points montre alors, pour les 2 types d'aérosols, un coefficient de corrélation très satisfaisant et quasi-similaire de 0.99. Il en résulte un coefficient g ajusté à 0.19 pour l'espèce (WS) et 0.23 pour l'espèce (OC). En calculant la moyenne des deux valeurs précédentes, on montre finalement un coefficient g_{ext} égal à 0.21 pour un type d'aérosol « urbain » dans le cas de l'utilisation des mesures de l'étude de *Mallet et al.* [2003].

Par ailleurs, l'étude de *Raut et Chazette* [2007] montre un coefficient g nettement plus important, égal à 0.55 ± 0.05 . Dans cette étude, plutôt que d'utiliser des mesures expérimentales comme celles du tableau (5.5), l'évolution de la section spécifique massique d'extinction est simulée en fonction de l'humidité relative grâce à un code de Mie pour différentes distributions en taille et différents indices de réfraction en fixant le facteur d'accroissement du rayon sous l'effet de l'humidité (facteur e de la formule (1.5) égal à 0.26). Nous avons choisi, par la suite, le coefficient g égal à 0.55 comme dans le cas de l'étude de *Raut et Chazette* [2007].

La valeur d'AOT obtenue grâce à cette deuxième méthode de calcul est notée $\text{AOT}_{\text{SectVar}}^{\text{CHIMERE}}$ par la suite.

5.1.3.2. Comparaison au photomètre

Il est maintenant possible de calculer une valeur d'AOT simulée par le modèle CHIMERE en utilisant les deux méthodes de calcul décrites dans la section précédente. Nous validons ce calcul en comparant les valeurs d'AOT obtenues aux mesures d'AOT photométriques. Pour cela, nous avons regroupé les stations de mesures photométriques par maille de $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ (tableau 5.6). Une seule maille CHIMERE contient 2 sites photométriques du réseau AERONET/PHOTONS (Carpentras et Avignon) et nous avons sélectionné, dans ce cas, le site d'Avignon puisqu'il présente un plus grand nombre de mesures au cours de la période étudiée (avril à octobre 2003).

Ville	Latitude Maille CHIMERE	Longitude Maille CHIMERE
Avignon	44,0	5,0
Bordeaux	45,0	-0,5
Dunkerque	51,0	2,5
Fontainebleau	48,5	2,5
Lille	50,5	3,0
Palaiseau	48,5	2,0
Toulon	43,0	6,0
Toulouse	43,5	1,5
Villefranche	43,5	7,5

Tableau 5.6: Co-localisation des sites photométriques du réseau AERONET/PHOTONS et des mailles du modèle CHIMERE ($0.5^\circ \times 0.5^\circ$, référencées par leur centre). Dans cette étude, chaque maille contient une station photométrique.

Comme nous l'avons vu précédemment, les valeurs de très forte humidité relative sont un obstacle au calcul de l'AOT dans le cas où la section varie en fonction de l'humidité relative. En effet, d'après la formule (5.7), en fixant le facteur g à 0.55, on observe une augmentation soudaine du facteur d'humidification f à partir d'une humidité relative d'environ 95%. La valeur de f est alors comprise entre 1 et 5 jusqu'à 95% puis entre 5 et 13 de 95% à 99%. La sélection de valeurs co-localisées d' $AOT_{CHIMERE}$ et d' $AOT_{AERONET}$ limite naturellement les mesures météorologiques de très forte humidité relative puisque les mesures photométriques ne s'effectuent qu'en ciel clair. Cependant, les mesures d' $AOT_{AERONET}$ sont très locales alors que celles du modèle CHIMERE correspondent à une zone géographique de $0.5^\circ \times 0.5^\circ$. Il pourrait donc rester de fortes valeurs d'humidité relative (c'est-à-dire supérieures à environ 95%) dans une maille de $0.5^\circ \times 0.5^\circ$. C'est la raison pour laquelle nous contraignons davantage la couverture nuageuse par la prise de mesures simultanées d'AOT restituées par le radiomètre POLDER-2 et nous supprimons, par là, les fortes valeurs d'humidité relative. Ces mesures d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$, restituées au-dessus d'une zone d'environ $0.19^\circ \times 0.16^\circ$, sont, pour l'occasion, dégradées sur la même zone géographique que le modèle CHIMERE ($0.5^\circ \times 0.5^\circ$). Nous choisissons, de plus, de ne garder que les valeurs moyennes satellitaires correspondant à au moins 2 pixels. Ajoutons que les particules de poussières désertiques, non représentées dans le produit « PM2.5_anth » du modèle CHIMERE, ne devraient pas poser de problèmes puisque seule la fraction fine de ce type de particules est observé par le radiomètre POLDER-2. Notons, tout de même, qu'en prenant en compte les mesures du radiomètre POLDER-2, cette étude est biaisée vers des conditions d'humidité relative plus faibles.

La figure (5.7) montre la comparaison entre valeurs d'AOT simulées par le modèle CHIMERE ($AOT_{SectCste}^{CHIMERE}$ et $AOT_{SectVar}^{CHIMERE}$) à 10h du matin et les moyennes journalières d' $AOT_{AERONET,Fin}$ au-dessus de la France (9 mailles, tableau 5.6) d'avril à octobre 2003.

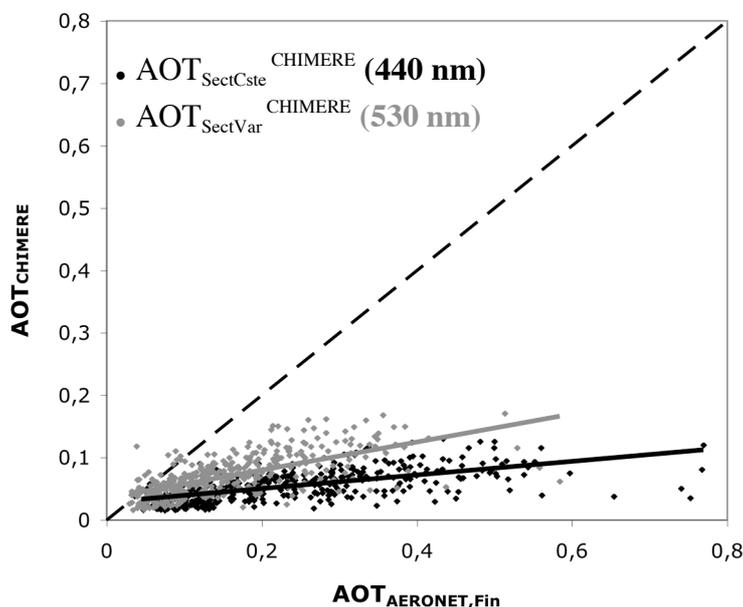


Figure 5.7: Corrélations entre moyennes journalières d' $AOT_{AERONET,Fin}$ (440 nm, soumises aux 3 contraintes de Dubovik et al. [2000], et rayon physique maximal égal au point d'inflexion de la distribution en taille) et valeurs simulées à 10h d' $AOT_{SectCste}^{CHIMERE}$ à 440 nm (section spécifique massique d'extinction constante à humidité relative ambiante, en noir) et d' $AOT_{SectVar}^{CHIMERE}$ à 530 nm (section spécifique massique d'extinction dépendante du profil d'humidité relative, en gris) au-dessus de la France (9 mailles du tableau 5.6) d'avril à octobre 2003. Les jours ne présentant pas de mesures d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ (dégradées sur la grille CHIMERE et faites à partir d'au moins 2 pixels) sont éliminés.

- En noir, $AOT_{SectCste}^{CHIMERE}$ (440 nm) = $0.11 \pm 0.01 \times AOT_{AERONET,Fin}$ (440 nm) + 0.03 ± 0.00 , $R=0.63$, $RMS=0.02$, $N=397$.
- En gris, $AOT_{SectVar}^{CHIMERE}$ (553 nm) = $0.22 \pm 0.01 \times AOT_{AERONET,Fin}$ (550 nm) + 0.03 ± 0.00 , $R=0.67$, $RMS=0.02$ et $N=397$.

Si l'on compare les valeurs d'AOT CHIMERE (c'est-à-dire d' $AOT_{SectCste}^{CHIMERE}$ ou d' $AOT_{SectVar}^{CHIMERE}$) aux valeurs d' $AOT_{AERONET,Total}$ (plutôt qu'aux valeurs d' $AOT_{AERONET,Fin}$ comme sur la figure 5.7), les coefficients de corrélation, les ordonnées à l'origine et les pentes sont quasi-similaires.

On observe sur la figure (5.7, en gris) un facteur d'environ 4 (pente de 0.22) entre mesures d' $AOT_{AERONET,Fin}$ et simulations d' $AOT_{SectVar}^{CHIMERE}$ à 550 nm en faisant varier la section spécifique massique d'extinction sur la verticale. De plus, fixer la section spécifique massique d'extinction sur la verticale (en noir) tend à augmenter le facteur entre AOT simulé et mesuré d'environ 4 à 9 (pente de 0.11) et à diminuer le coefficient de corrélation de $R=0.67$ à $R=0.63$. La deuxième méthode de calcul de la section efficace d'extinction massique semble, par conséquent, plus appropriée dans le cas de notre étude.

Notre coefficient de corrélation ($R=0.67$ pour $N=397$) est légèrement plus satisfaisant que celui de l'étude de Hodzic et al. [2006] ($R=0.61$ pour $N=78$) lorsque les moyennes

journalières d'AOT simulées par le modèle CHIMERE sont comparées à celles photométriques du 1 au 15 août 2003 (hors jours de feux de végétation provenant du Portugal le 5 et 6 août) au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest. Concernant d'autres modèles, l'étude globale de *Chin et al.*, [2001] montre un accord satisfaisant entre mesures d'AOT_{AERONET} et valeurs simulées d'AOT du mode total par le modèle GOCART (R=0.70) au cours des années 1996 et 1997. En revanche, on observe peu d'accord entre mesures d'AOT_{AERONET,Fin} et mesures simulées d'AOT_{Fin} du modèle LMDz-INCA dans la thèse de *Generoso* [2004] (R=0.10 pour 762 points) au-dessus de l'Europe au cours de l'année 2000.

La sous-estimation des mesures d'AOT calculées par le modèle CHIMERE a déjà été mise en évidence dans les travaux de *Hodzic et al.* [2004] où il a été comparé des moyennes mensuelles d'AOT simulées et mesurées d'octobre 2002 à septembre 2003 au-dessus du site photométrique de Palaiseau. Les AOT mesurés sont, en effet, sous-estimés par le modèle de mars à septembre 2003 (de 20 % en Mars à plus de 50 % en août). Dans notre étude, le facteur de sous-estimation entre valeurs simulées et mesurées est cependant plus fort (égal à 4 dans le cas de l'utilisation d'AOT_{SectVar}^{CHIMERE}) que celui de l'étude de *Hodzic et al* [2004] (égal à 2).

Concernant d'autres modèles de circulation générale, bien qu'il ne s'agisse que d'aérosols carbonés (OC et BC), on observe une tendance globale similaire à la sous-estimation de la moyenne mensuelle d'AOT simulée par le modèle LMDz-INCA dans l'étude globale de [*Generoso et al.*, 2003] au cours des années 1997 à 2001. Rappelons que la concentration massique intégrée est, dans ce cas, simplement multipliée à une section efficace d'extinction constante sur la verticale. Cette sous-estimation de l'AOT du mode fin se retrouve, de même, dans la thèse de *Generoso* [2004] entre mesures d'AOT_{AERONET,Fin} et mesures simulées d'AOT_{Fin} du modèle LMDz-INCA. Le facteur entre AOT mesurées et AOT simulées est, dans ce cas, satisfaisant et égal à 1.4 au-dessus de l'Europe au cours de l'année 2000 (N=762 points) avec, par ailleurs, un coefficient de corrélation peu significatif de 0.10. Il en est de même pour les fortes valeurs d'AOT dans l'étude globale de *Chin et al.* [2001] au cours des années 1996 et 1997 avec un facteur maximum de 2 entre AOT mesuré par le photomètre et simulé par le modèle GOCART.

Les sources d'erreurs sur les valeurs simulées de profil de concentration massique peuvent provenir des processus dynamiques et adiabatiques qui régissent la circulation générale et les hypothèses propres au modèle d'aérosols (en particulier la description des sources/ puits et les réactions chimiques).

De plus, d'après *Hodzic et al* [2004], la comparaison entre les profils d'humidité relative provenant du modèle de météo MM5 et radio sondés montre une surestimation du modèle en été 2003 (de 3 à 10 %). D'après la formule (5.7), une surestimation de l'humidité relative du modèle MM5 entraînerait une surestimation de la valeur d'AOT_{SectVar}^{CHIMERE} simulée.

Cette surestimation de l'AOT simulé semble néanmoins compensée par une sous-estimation du contenu massique de certaines espèces par le modèle. En effet, d'après *Hodzic et al.* [2004], et comme nous l'avons observé dans la section précédente, la sous-estimation en période estivale pourrait provenir d'une sous-estimation des particules organiques secondaires (SOA). Il existe, en effet, encore beaucoup d'incertitude sur les émissions et le processus chimique lié à la formation de SOA. De plus, le contenu en particules de poussières désertiques n'est pas simulé par le produit « PM_anth » du modèle et pourrait contribuer significativement à la sous-estimation du contenu total en particules au printemps et en été [*Hodzic et al.*, 2004]. Rappelons, de plus, les erreurs que peuvent entraîner la comparaison de mesures locales photométriques à des valeurs moyennées par le modèle CHIMERE sur une

large zone géographique au sol de $0.5 \times 0.5^\circ$ (c'est-à-dire de $\sim 55 \text{ Km} \times 55 \text{ Km}$). Finalement, n'oublions pas les erreurs qu'entraînent les simplifications apportées dans le calcul de la section massique d'extinction (qu'elle soit fixe sur la verticale ou fonction du profil d'humidité relative). Dans le cas d'autres modèles comme GOCART, les erreurs peuvent provenir du choix des propriétés optiques des différentes espèces d'aérosols à la base du calcul de la section spécifique massique d'extinction.

Retenons, en définitive, qu'on observe une corrélation satisfaisante entre les valeurs calculées d' $\text{AOT}_{\text{SectVar}}^{\text{CHIMERE}}$ et les mesures d'AOT photométriques au-dessus de la France d'avril à octobre 2003 ($R=0.67$) malgré un facteur important entre les 2 types de mesures (facteur 4). Prendre en compte le profil d'humidité relative simulé par le modèle météorologique MM5 améliore légèrement la corrélation (coefficient de corrélation de $R=0.67$ contre $R=0.63$) entre AOT simulé et mesuré par les photomètres en France d'avril à octobre 2003.

5.1.3.3. Analyse des PM dérivées du satellite

À la vue de l'équation (5.5), les paramètres du modèle CHIMERE utiles à l'élaboration du produit de qualité de l'air satellitaire, $M_{\text{POL}}(H_1)$, sont donc, d'une part, la simulation du profil vertical de concentration massique en aérosols, M_i et, d'autre part, le profil d'humidité relative influant sur la section spécifique massique d'extinction ainsi que sur « l'assèchement » final du paramètre $M_{\text{POL}}(H_1)$.

L'AOT simulé par le modèle (τ_{CHIM} dans la formule 5.1) est, par la suite, celui obtenu grâce à la deuxième méthode de calcul où la section spécifique d'extinction massique varie en fonction du profil vertical d'humidité relative ($\text{AOT}_{\text{SectVar}}^{\text{CHIMERE}}$). Cette méthode est préférée à la première puisqu'elle fournit un meilleur accord entre valeurs d'AOT simulées par le modèle et mesures d'AOT photométriques (figure 5.7).

Notons que nous aurions pu choisir la hauteur du « réservoir » contenant la plupart des particules (par abus de langage, aussi appelée hauteur de couche limite atmosphérique ou H_{CL}) plutôt que la hauteur de la première couche du modèle dans la formule (5.3). Cette hauteur H_{CL} est, en effet, fournie par le modèle MM5. Nous avons cependant observé un accord similaire entre mesures de $\text{PM}_{2.5}$ et valeurs simulées de $\text{PM}_{2.5}^{\text{CHIMERE}}(\text{sol})$ dans le premier niveau du modèle ($R=0.43$) et entre ces mêmes mesures de $\text{PM}_{2.5}$ et celles intégrées par le modèle CHIMERE jusqu'à la hauteur H_{CL} ($R=0.50$) au-dessus de la France d'avril à octobre 2003.

La figure (5.8) montre la comparaison entre les moyennes horaires de $\text{PM}_{2.5}$ entre 9h et 11h et, d'une part, les mesures satellitaires d' $\text{AOT}_{\text{POLDER-2,Fin}}$ (à 550 nm) à gauche et, d'autre part, les valeurs calculées de $M_{\text{POL}}(H_1)$ grâce à l'équation (5.5) au-dessus des 20 mailles en France du tableau (5.1) et au cours des 9 jours de bon accord entre satellite et modèle du tableau (5.2).

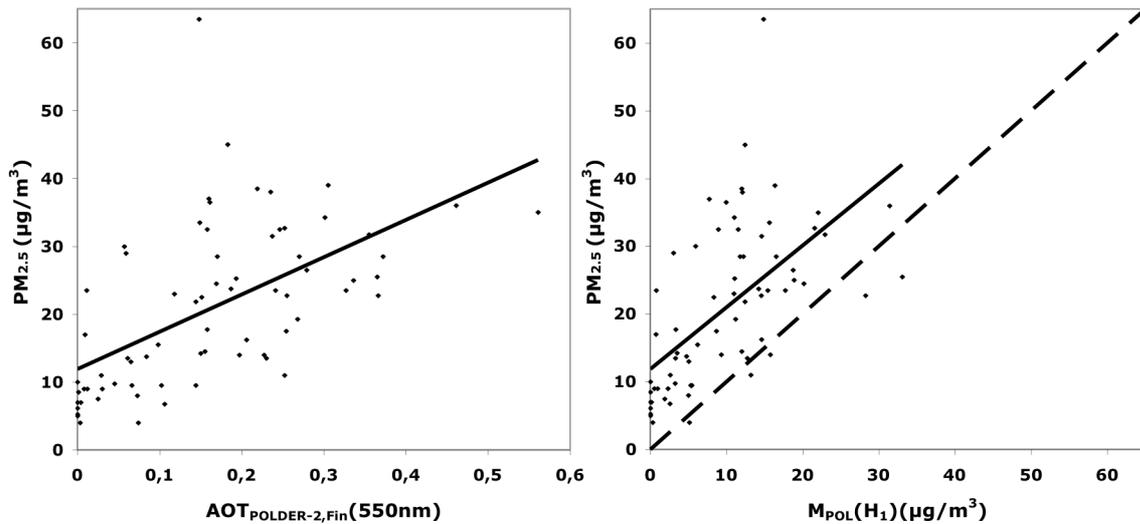


Figure 5.8 : Comparaison entre mesures de $PM_{2,5}$ (moyennes entre 9h et 11h) et d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ (550 nm) à gauche ou paramètre $M_{POL}(H_1)$ (formule 5.5) à droite au-dessus des 20 mailles du tableau (5.1) et au cours des 9 journées de bon accord entre satellite et modèle du tableau (5.2).

- À gauche, $PM_{2,5} = 54.99 \pm 9.47 AOT_{POLDER-2,Fin}(550\text{ nm}) + 11.89 \pm 1.93$; $RMS = 9.82$, $R=0.58$ et $N = 70$
- À droite, $PM_{2,5} = 0.91 \pm 0.15 M_{POL}(H_1) + 11.89 \pm 1.85$; $RMS = 9.63$, $R=0.60$ et $N = 70$.

D'après la figure (5.8), la comparaison des mesures de $PM_{2,5}$ et des mesures d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ montre un coefficient de corrélation similaire ($R=0.58$ à gauche) à celui observé entre mesures de $PM_{2,5}$ et valeurs de $M_{POL}(H_1)$ ($R=0.60$ à droite) au-dessus des 20 mailles du tableau (5.1) et au cours des 9 journées de bon accord entre satellite et modèle du tableau (5.2). Autrement dit, l'apport de la distribution verticale des particules par le modèle CHIMERE à la mesure satellitaire d' $AOT_{POLDER-2,Fin}$ n'est pas significatif au cours de notre période et au-dessus de notre zone d'étude et nous ne décelons pas, dans ce cas, d'amélioration de la corrélation entre AOT satellitaire et $PM_{2,5}$ au sol.

Nous avons observé, par ailleurs, une différence générale d'un facteur ~ 4 entre les mesures de $PM_{2,5}$ et les valeurs de $PM_{2,5}^{CHIMERE}$ (sol) lorsqu'elles sont comparées au cours des mêmes jours et au-dessus des mêmes mailles que la figure (5.8). Par contre, la pente est proche de 1 entre les valeurs simulées de $M_{POL}(H_1)$ et mesurées de $PM_{2,5}$ sur la figure (5.8) bien que l'ordonnée à l'origine ne soit pas négligeable. Si l'apport du modèle n'est pas significatif quant à l'évaluation satellitaire de la qualité de l'air, les restitutions satellitaires semblent donc légèrement améliorer la valeur du contenu massique en aérosols simulé au sol par le modèle CHIMERE.

Le paramètre $M_{POL}(H_{CL})$ a aussi été calculé en utilisant comme premier niveau la hauteur de couche limite fournie par le modèle MM5 (H_{CL}). Nous obtenons, dans ce cas, une corrélation similaire de $R=0.58$ (ainsi qu'une pente plus faible de 0.81) entre ce paramètre et les moyennes horaires de $PM_{2,5}$ entre 12h et 14h au-dessus de la même période et zone d'étude que la figure (5.8).

Nous avons approfondi l'étude en analysant l'apport de la distribution verticale du modèle CHIMERE à la mesure satellitaire au-dessus de chacune des 20 mailles du tableau

(5.1). Le tableau (5.7) montre le coefficient de corrélation entre mesures d'AOT_{POLDER-2,Fin} et de PM_{2,5} ainsi qu'entre mesures de PM_{2,5} et valeurs de M_{POL}(H₁) au-dessus de chacune des 20 mailles en France et au cours des jours du tableau (5.2).

Numéro BDQA	Corrélation AOT _{POLDER-2,Fin} -PM _{2,5}		Corrélation M _{POL} (H ₁)-PM _{2,5}	
	Coeff. Corrélation	Nombre mesures	Coeff. Corrélation	F
3043	0,72	9	0,86	0,43
8016	0,53	7	0,61	0,03
10025	0,59	5	0,47	1,47
13007	N.D.	0	N.D.	N.D.
14009	N.D.	0	N.D.	N.D.
14041	N.D.	1	N.D.	N.D.
16038	-0,54	6	-0,02	-29,41
18008	0,83	6	0,90	0,46
21007	-1	2	-1	-0,21
23113	0,83	3	0,83	0,56
23120	N.D.	1	N.D.	N.D.
28025	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
31013	0,92	4	0,90	1,29
Groupe 1	1	3	1	0,81
Groupe 2	1	3	0,91	0,31
Groupe 3	0,93	5	0,62	2,31
Groupe 4	0,84	4	0,97	1,37
Groupe 5	0,96	4	0,95	0,73
Groupe 6	0,94	4	0,83	1,00
Groupe 7	0,89	5	0,90	1,31

Tableau 5.7 : Coefficient de corrélation et nombre de mesures concernant les deux comparaisons suivantes : entre mesures d'AOT_{POLDER-2,Fin} et mesures de PM_{2,5} ainsi qu'entre mesures de PM_{2,5} (dans les 2 cas, moyennes entre 9h et 11h) et valeurs de M_{POL}(H₁) au-dessus de chacune des mailles du tableau (5.1) et au cours des jours du tableau (5.2). Le facteur F est défini comme: $F=1/(pente\ entre\ PM_{2,5}\ et\ M_{POL}(H_1))$. En gris, une augmentation du coefficient de corrélation lors de la prise en compte de la distribution verticale CHIMERE et un coefficient résultant supérieur à 0.60.

On observe, d'après le tableau (5.7), une augmentation du coefficient de corrélation lors de la prise en compte de la distribution verticale CHIMERE au-dessus de 6 mailles en France (parmi 15 disponibles) au cours des jours de bon accord entre satellite et modèle. Parmi ces 6 mailles, seules 5 mailles présentent, au final, un coefficient de corrélation supérieur à 0.60 entre paramètre combiné M_{POL}(H₁) et mesures de PM_{2,5} au sol (zones grisées du tableau 5.7). La différence maximale observée entre les coefficients de corrélation est de 0.14 (de R=0.72 à 0.86 pour la station n° 3043 en région PACA) suivie par une différence observée de 0.13 au-dessus de la maille du groupe n° 4 en région Rhône-Alpes (R=0.84 à 0.97). En ne prenant en compte que les jours de bon accord entre modèle et satellite (tableau 5.2), l'amélioration du coefficient de corrélation entre mesures satellitaires et de PM_{2,5} induite par l'utilisation de l'information verticale du modèle CHIMERE est, par conséquent, significative concernant deux mailles particulières puis très légère et nulle concernant les autres mailles. Notons que parmi les stations présentant une amélioration ainsi qu'un coefficient de corrélation final supérieur à 0.60 (zones grisées du tableau 5.7), le facteur F entre le paramètre M_{POL}(H₁) et la mesure de PM_{2,5} est, dans tous les cas, positifs. Autrement dit, on observe une sous-estimation générale des valeurs de M_{POL}(H₁) par rapport aux mesures de PM_{2,5} au sol. Ce facteur est néanmoins toujours inférieur à 2 dans le cas des zones grisées du tableau (5.7).

Si l'on analyse les causes possibles d'un mauvais accord entre le paramètre M_{POL}(H₁) et les mesures de PM_{2,5} à partir de la formule (5.5) précédente, celle-ci peut s'expliquer par :

- Une erreur éventuelle sur la restitution de la mesure satellitaire d'AOT_{POLDER-2,Fin},
- Une mauvaise représentation du profil de concentration massique par le modèle CHIMERE (impact sur le calcul du rapport R de la formule 5.3),
- Une modélisation incorrecte du profil d'humidité relative par le modèle météorologique MM5 (impact sur le calcul de R et de la section spécifique massique d'extinction dans le premier niveau du modèle, s_1).

En ce qui concerne la répartition verticale du contenu en aérosols simulé par le modèle CHIMERE, bien que cette étude porte sur une journée (26 Mars 2003), lors de la confrontation d'un profil vertical d'AOT dérivé du modèle CHIMERE et un profil vertical de rétrodiffusion mesuré depuis le sol par un LIDAR, *Hodzic et al.* [2004] montre une simulation correcte de la structure verticale journalière de la couche limite atmosphérique à partir de 13:00 alors que la couche nocturne résiduelle (jusqu'à environ 13:00) ainsi que la couche de particules désertiques présente en altitude ne sont pas correctement représentées. Dans notre cas, il a été observé une nette sous-estimation du contenu au sol en aérosols de type « urbain » par le modèle. Cette observation est doublée d'un accord peu satisfaisant entre valeurs simulées au sol de $PM_{2.5}^{CHIMERE}$ (sol) et mesures de $PM_{2.5}$ d'avril à octobre 2003. De même, lors du calcul de l'AOT_{CHIMERE}, il a été montré une importante sous-estimation du modèle, bien que cette erreur puisse être biaisée par le calcul d'une section de type « urbaine » peu adéquate sur la verticale. La sous-estimation du paramètre $M_{POL}(H_1)$ pourrait ainsi provenir, en partie, d'une sous-estimation du rapport entre concentration massique simulée dans la première couche et sur la colonne par le modèle CHIMERE.

Rappelons, en ce qui concerne le profil de l'humidité relative, que d'après *Hodzic et al* [2004], la comparaison entre les profils d'humidité relative provenant du modèle de météo MM5 et radio sondés montre une surestimation du modèle en été 2003 (de 3 à 10 %). De plus, d'après une communication de *Sorteberg et al.* [2000], le modèle météorologique MM5 surestime le profil d'humidité relative affichant une erreur moyenne entre 6 et 13% lors d'une étude au-dessus de la ville d'Oslo au cours de la période hivernale des années 1999 et 2000. En première approximation, si le profil d'humidité relative est supposé constant sur la verticale et égal à la valeur d'humidité relative au sol, le paramètre $M_{POL}(H_1)$ est, dans ce cas, fonction de l'humidité relative à travers la section s_1 ainsi qu'à travers la formule (2.8) grâce à laquelle la masse est finalement « asséchée ». Il en résulte qu'une surestimation de l'humidité relative contribuerait donc à une sous-estimation du paramètre $M_{POL}(H_1)$ par le modèle CHIMERE.

De nombreuses incertitudes empêchent donc un meilleur accord entre ce paramètre $M_{POL}(H_1)$ et les mesures au sol de $PM_{2.5}$. Cette étude mériterait d'être approfondie en appliquant la formule (5.5) à d'autres radiomètres (comme MODIS) et en utilisant d'autres modèles de chimie-transport. Il serait, de plus, intéressant de vérifier la valeur d'humidité relative simulée au sol en la comparant à celle mesurée par une station météorologique au cours de notre période d'étude. Notons finalement, que des erreurs dans le calcul du paramètre $M_{POL}(H_1)$ pourraient provenir du calcul d'AOT simulé pour un type « urbain » d'aérosols et non en dissociant les espèces chimiques. Si l'apport du modèle n'est pas significatif quant à l'évaluation satellitaire de la qualité de l'air, les restitutions satellitaires semblent légèrement améliorer la valeur du contenu massique en aérosols simulé au sol par le modèle CHIMERE. L'effort scientifique se dirigerait donc, dans le cas de cette étude, davantage vers l'apport du satellite à la prévision de la pollution en aérosols par le modèle de chimie-transport CHIMERE.

5.2. Utilisation d'une distribution verticale mesurée par CALIOP : cas d'études

Nous avons constaté (section précédente) que l'apport de la distribution verticale des aérosols simulée par le modèle de chimie-transport CHIMERE n'a pu améliorer la corrélation entre les mesures d'AOT satellitaire et les mesures de $PM_{2.5}$ au sol. Une fois disponibles (début juin), nous avons donc utilisé les mesures de profil vertical de rétrodiffusion du LIDAR CALIOP afin de prendre en compte la distribution verticale des aérosols dans l'élaboration d'un produit satellitaire de qualité de l'air.

Cette étude est basée sur l'ensemble de mesures enregistrées par différents instruments au cours de trois journées spécifiques. Nous présentons, dans un premier temps, les mesures de $PM_{2.5}$, photométriques et satellitaires enregistrées lors des trois cas d'étude du 13 juin 2006, 29 juin 2006 et 12 mars 2007 au-dessus de la région de Lille. Les cas d'étude sont comparés deux à deux et présentent l'avantage d'enregistrer une mesure similaire de $PM_{2.5}$ et non d'AOT satellitaire. Nous tentons donc d'expliquer le désaccord entre mesures de concentration au sol et satellitaires par un changement éventuel des propriétés optiques et/ou de la distribution verticale des particules.

5.2.1. Présentation des cas d'études

En termes d'information sur la distribution verticale des aérosols, nous utilisons ici les mesures de profil de rétrodiffusion du LIDAR CALIOP (voir section 2.4.4). Ces mesures sont co-localisées aux mesures photométriques du réseau AERONET/ PHOTONS, aux mesures d'AOT du radiomètre POLDER-3 et MODIS-AQUA (passage l'après midi au-dessus de l'équateur comme POLDER-3) ainsi qu'aux mesures de $PM_{2.5}$ au sol.

Cette étude est concentrée sur la région de Lille où la distance entre stations au sol de $PM_{2.5}$ et photométriques est d'environ 4.2 Km (resp. point vert et noir sur la figure 5.9). Les mesures satellitaires des radiomètres passifs POLDER-3 et MODIS-AQUA sont, comme précédemment, moyennées sur une zone au sol de ~66 Km x 66 Km centrée sur la station de mesure au sol de $PM_{2.5}$. Cette zone au sol, équivalente à un nombre maximal de 7 x 7 pixels MODIS et de 3 x 4 pixels POLDER, est désignée par un carré noir sur la figure (5.9). Les mesures de profil de rétrodiffusion du LIDAR CALIOP (produit de niveau 1b) sont, quant à elles, moyennées entre les latitudes minimales et maximales de cette même zone au sol de 66 Km x 66 Km centrée sur la station de $PM_{2.5}$. La figure (5.9) présente le passage du LIDAR CALIOP entre ces deux latitudes dans la région de Lille le 13 Juin 2006 (en rouge). Nous nous servons aussi, par la suite, de mesures fournies par une station météorologique située à proximité de la station photométrique de Lille (les deux instruments sont sur le toit du laboratoire).

Les mesures satellitaires des radiomètres POLDER-3 et MODIS-AQUA ainsi que du LIDAR CALIOP sont temporellement espacées d'au plus 3 minutes puisque ces instruments appartiennent au même train de satellite A-Train (section 2.4.1). Ces mesures satellitaires uniques par jour sont confrontées à des moyennes au sol de $PM_{2.5}$ centrées sur l'heure de passage du satellite (entre 12 et 14h GMT, voir tableau 4.1) ou sous forme de moyennes journalières. À cause d'un nombre d'inversions généralement réduit dans la journée, et particulièrement entre 12 et 14h GMT, les mesures photométriques sont moyennées au cours de la journée.

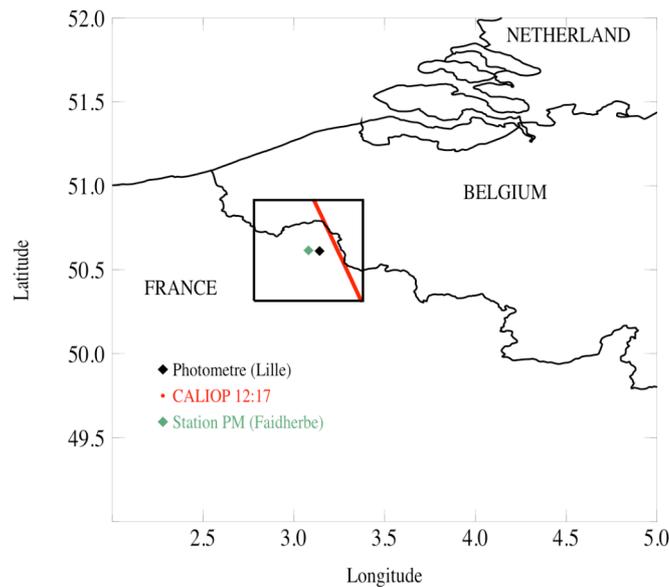


Figure 5.9 : Passage du LIDAR CALIOP entre les deux latitudes délimitant un carré de 60 x 60 Km (carré noir) centré sur la station de mesures de PM_{2.5} (point en vert) à Lille le 13 Juin 2006. Les stations de PM_{2.5} et photométrique (point en noir) sont distantes de 4.3 Km. Le pixel CALIOP (appartenant à la trace en rouge) le plus proche de la station de PM_{2.5} est distant de 6.83 Km.

La trace rouge sur la figure (5.9) représente le premier jour de mesures disponible du LIDAR CALIOP proche de la ville de Lille (13 juin 2006). L'orbite du LIDAR CALIOP est contrôlée afin de repasser sur la même trace au sol (à ± 10 Km) tous les 16 jours. Notre étude nécessite donc de sélectionner, parmi les mesures CALIOP fournies tous les 16 jours (à partir du 13 Juin 2006), les journées présentant des mesures d'AOT satellitaire du radiomètre POLDER-3 et de PM_{2.5}. Il est préférable que ces journées soient accompagnées de mesures photométriques afin de valider les mesures satellitaires du radiomètre POLDER-3.

La figure (5.10) présente l'évolution temporelle des mesures de PM_{2.5} (moyennes entre 12h et 14h, $\mu\text{g}/\text{m}^3$), d'AOT photométriques du mode fin (moyennes journalières à 440 nm) et d'AOT POLDER-3 (à 440 nm) du 1^{er} juin 2006 au 31 mai 2007 co-localisées au-dessus de la région de Lille.

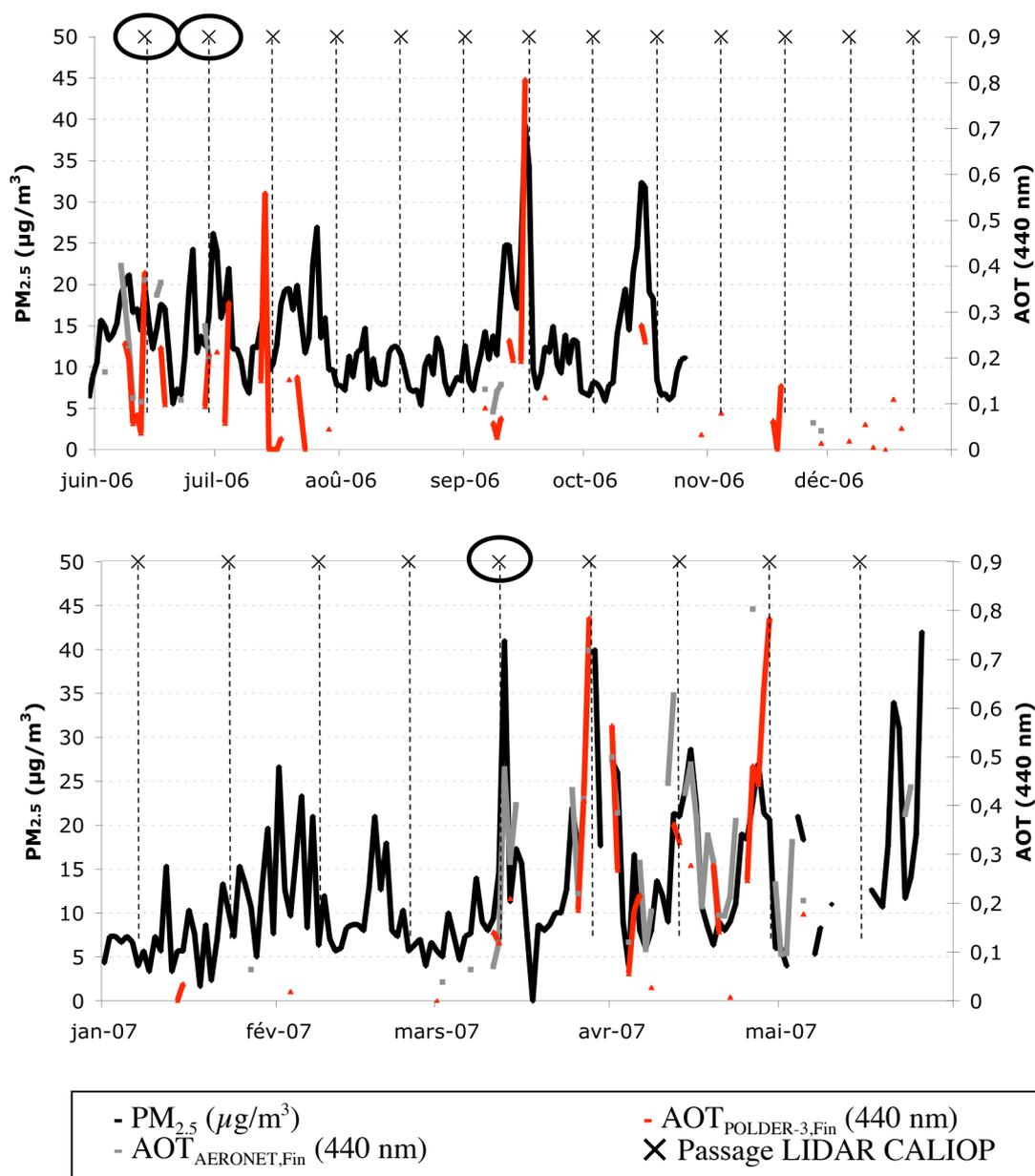


Figure 5.10: Evolution temporelle des mesures de $PM_{2.5}$ (en noir, moyenne entre 12h et 14h), d' $AOT_{AERONET,Fin}$ à 440 nm (moyennes journalières) et d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ à 440 nm à Lille de juin à décembre 2006 (en haut) puis de janvier à mai 2007 (en bas). Le passage du LIDAR CALIOP le plus proche de Lille est désigné par une croix noire. Les croix noires entourées correspondent à nos cas d'études (13 juin 2006, 29 juin 2006 et 12 mars 2007).

Du 1^{er} juin 2006 au 31 mai 2007 (365 jours), on observe un nombre réduit de mesures d' $AOT_{AERONET,Fin}$ (15 %) et d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ (20 %) par rapport aux mesures de $PM_{2.5}$ (77 %). On montre sur la figure (5.10) des mesures photométriques inverses puisqu'elles sont utilisées dans la suite de cette étude. Les mesures photométriques d'extinction directe du rayonnement solaire sont, quant à elles, bien plus nombreuses (62 %) au cours de la même période.

Au cours de la période des 2 graphes de la figure (5.10), on observe 18 % de journées de CQA « Modérée » (c'est-à-dire 67 journées de valeurs supérieures ou égales à $15.5 \mu g/m^3$) et 3 journées classées comme étant de CQA « A risques pour certains groupes de personnes » ($PM_{2.5} \geq 40.5 \mu g/m^3$). Comme sur la figure (3.4), on observe une certaine similitude entre

mesures de $PM_{2.5}$ (noir) et d' $AOT_{AERONET,Fin}$ (gris) et cela, tout particulièrement, de mi-mars à fin avril 2007 (bas de la figure 5.10). Il en est de même entre mesures de $PM_{2.5}$ (noir) et mesures d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ (rouge) et cela, tout particulièrement, en été 2006 et printemps 2007.

Les croix encadrées de la figure (5.10) correspondent aux trois cas d'études choisis par la suite. Ces trois journées (13 juin, 29 juin 2006 et 12 mars 2007) ont les avantages suivants :

- Elles enregistrent, non seulement, des mesures du LIDAR CALIOP mais aussi des mesures d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ (et d' $AOT_{MODIS-AQUA,Total}$) et de $PM_{2.5}$ au sol (moyenne entre 12 et 14h),
- Elles montrent des mesures photométriques (moyenne journalière) utiles à la validation des mesures d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$,

Les figures (5.11), (5.12) et (5.13) montrent la carte d' AOT restituées par le radiomètre POLDER-3 à 440 nm, le produit de niveau 1 de profil de rétrodiffusion atténué à 1064 nm et le produit de niveau 2 de description de structure des scènes atmosphériques du LIDAR CALIOP au cours des trois cas d'études (respectivement le 13 juin 2006, le 29 juin 2006 et le 12 mars 2007) au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest.

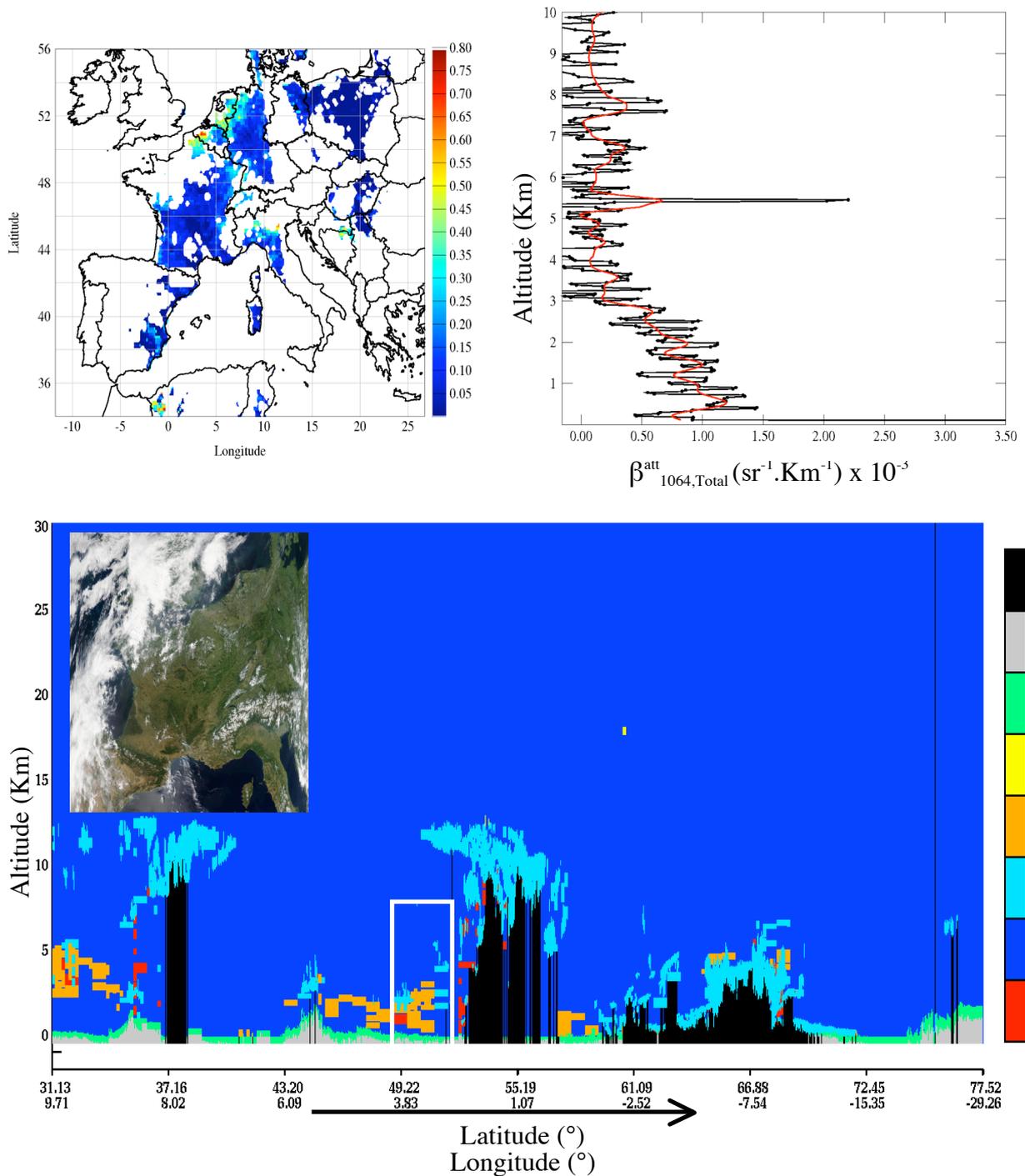


Figure 5.11 : Concernant le 13 juin 2006, en haut à gauche, cartes d'AOT restituées par le radiomètre POLDER-3 (440 nm) au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest. En haut à droite, profil de coefficient de rétrodiffusion atténué total à 1064 nm, $\beta_{1064,Total}^{att}(z)$, du LIDAR CALIOP (en noir) et lissé (en rouge). En bas, produit de niveau 2 CALIOP de description de structure des scènes atmosphériques (0 : invalide ; 1 : air propre ; 2 : nuage ; 3 : aérosol ; 4 : formation stratosphérique ; 5 : surface ; 6 : sous surface ; 7 : pas de signal). A l'intérieur de cette figure, en haut à gauche, carte en vraies couleurs d'AOT MODIS-AQUA. Le carré blanc désigne la région de notre étude et la flèche noire, le sens de défilement du LIDAR CALIOP.

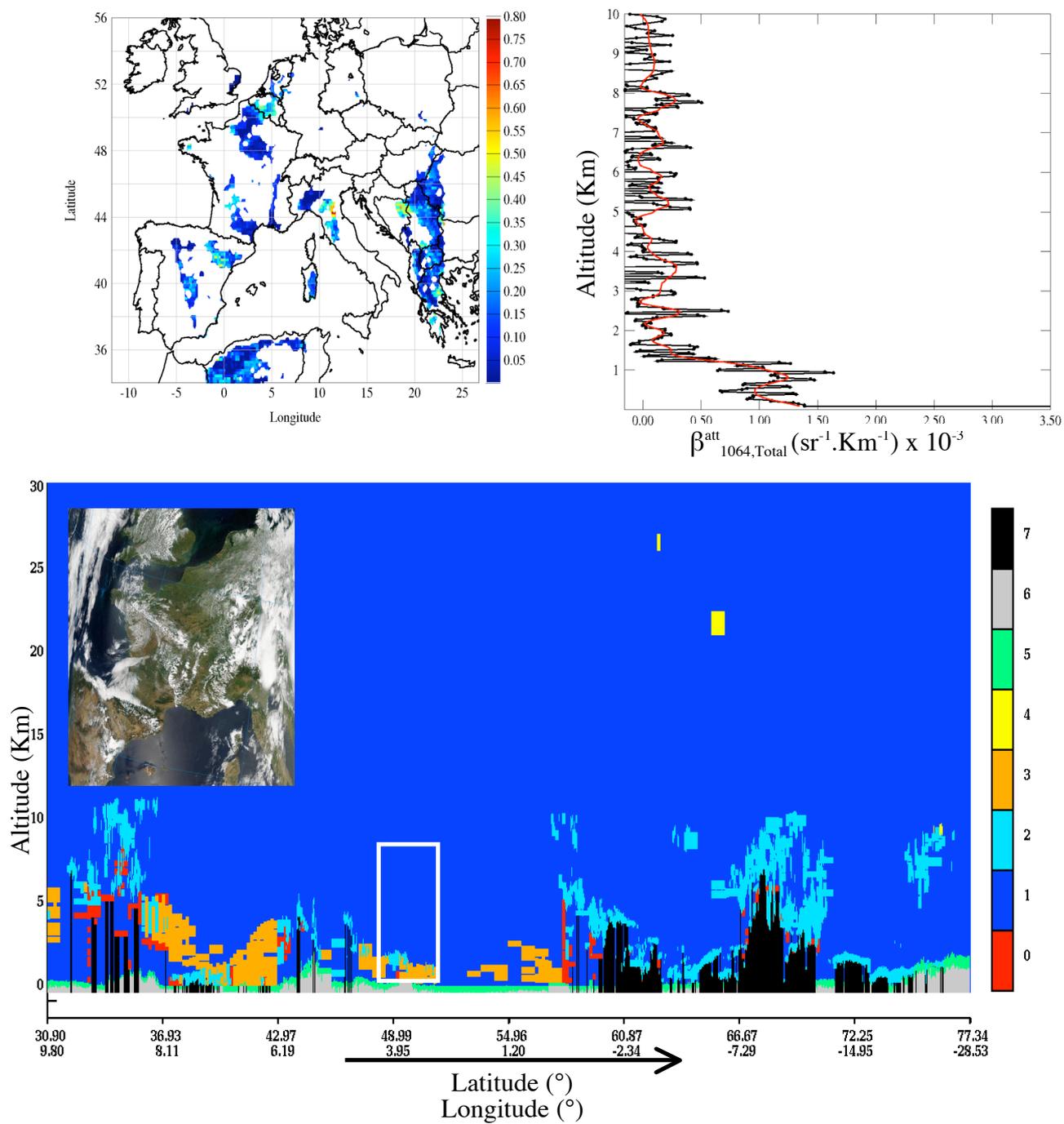


Figure 5.12 : Même légende que pour la figure (5.11) concernant le 29 juin 2006.

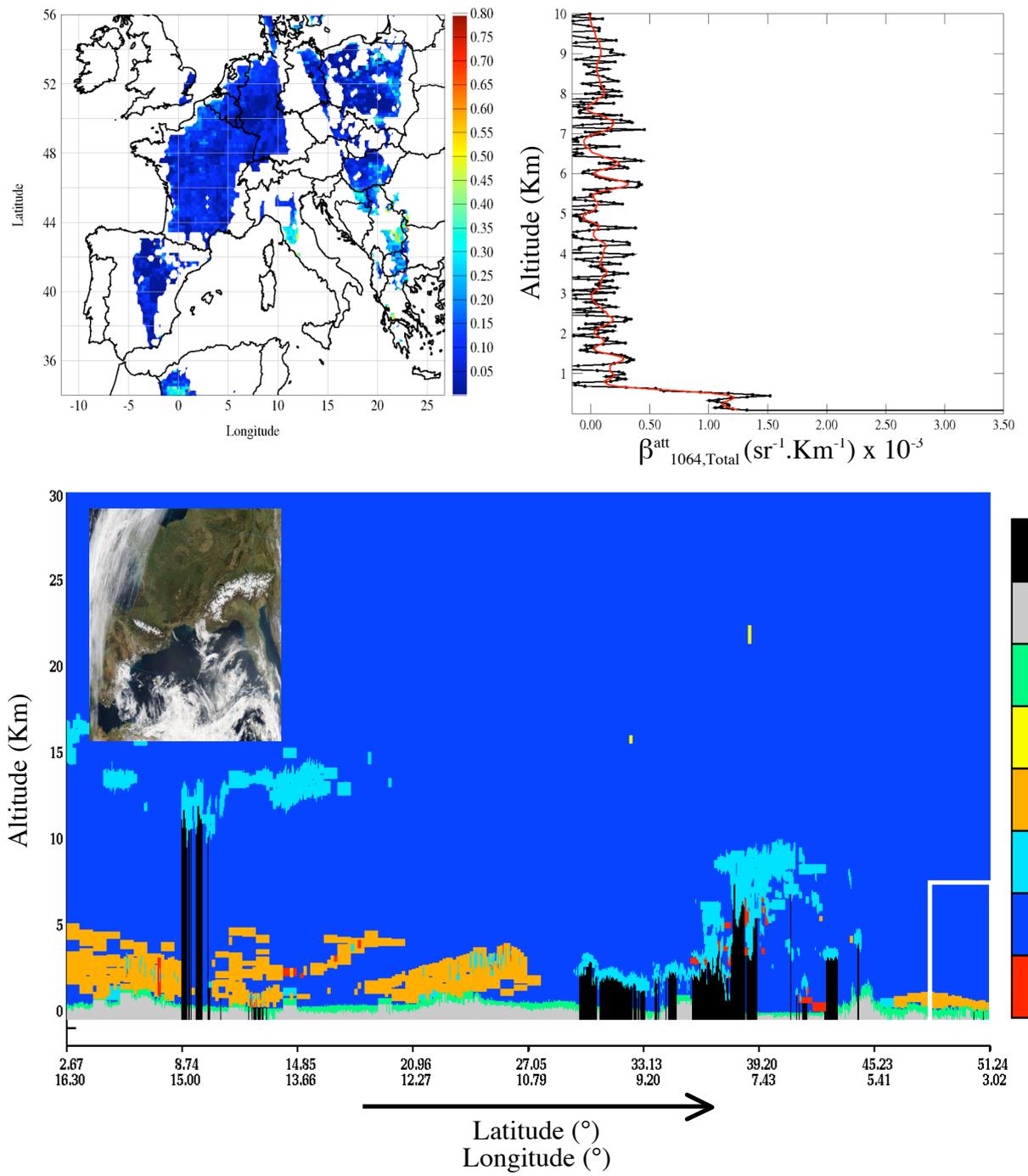


Figure 5.13 : Même légende que pour la figure (5.11) concernant le 12 mars 2007.

Le tableau (5.8) résume les mesures de $PM_{2,5}$, d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ à 440 nm, d' $AOT_{MODIS-AQUA,Total}$ à 470 nm, photométriques à 440 nm, d'humidité relative et de pression atmosphérique au sol et de hauteur de couche limite (H_{CL}) dérivées des profils de rétrodiffusion du LIDAR CALIOP qu'enregistrent les journées d'étude sélectionnées au-dessus de Lille.

Lille	Paramètre	13-juin-06	29-juin-06	12-mars-07
PM_{2,5} (µg/m³)	24h	20.00	16.08	16.96
	12h-14h	19.00	19.00	14.67
POLDER-3	$AOT_{POLDER-3,Fin}$ (440nm)	0.39	0.21	0.12
	Nombre de pixel	6	6	6
	Ecart type spatial	0.06	0.06	0.03
MODIS-AQUA	$AOT_{MODIS-AQUA,Total}$ (470 nm)	0.67	0.38	0.18
	Nombre de pixel	27	26	25
	Ecart type spatial	0.15	0.09	0.03
Photomètre	$AOT_{AERONET,Fin}$ (440 nm)	0.37	0.20	0.12
	Nombre d'inversion dans la journée	3	2	10
	α (440-676 nm)	1,83	1,76	1,59
	$Re(\eta)$ (440 nm)	1,38	1,44	1,48
	$Im(\eta)$ (440 nm)	0,00	0,01	0,01
	ω_0 (440 nm)	0,97	0,92	0,89
	$V_{0,Fin}$ (µm ³ /µm ²)	0,07 (68%)	0,03 (73%)	0,01 (44%)
	$r_{eff,Total}$ (µm)	0,21	0,24	0,32
Station Météo au sol	Humidité relative (%)	38	47	51
	Pression atmosphérique (hPa)	1013	1015	1018
LIDAR CALIOP	H_{CL} (Km)	2,11	1,21	0,64

Tableau 5.8 : Mesures de $PM_{2,5}$ (moyenne journalière et moyenne horaire entre 12 et 14h, en µg/m³), d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ à 440 nm, d' $AOT_{MODIS-AQUA,Total}$ à 470 nm (ainsi que nombre de pixels et écart-type correspondant), de propriétés optiques et microphysiques des aérosols (moyennes journalières, voir légende de la figure 3.8), d'humidité relative (%) et de pression atmosphérique (hPa) au sol (moyennes entre 12 et 14h) ainsi que de hauteur de « couche imite » (H_{CL}) dérivées du LIDAR CALIOP au cours des journées du 13 juin 2006, 29 juin 2006 et 12 mars 2007 à Lille.

La figure (5.14) complète les mesures photométriques du tableau (5.8) en montrant les distributions en volume moyennes des particules au cours des trois journées d'étude.

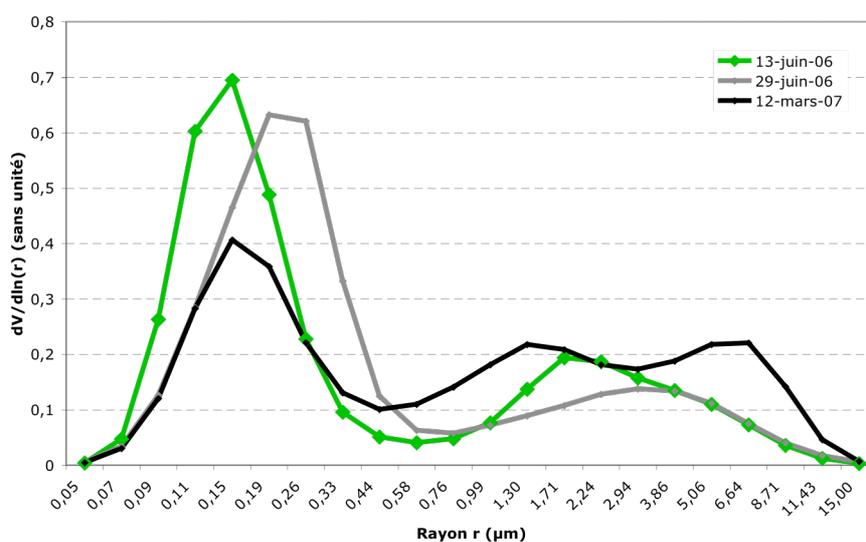


Figure 5.14: Moyenne journalière de la distribution en volume des particules normalisée par la concentration en volume du mode total au cours des journées du 13 juin 2006 (vert), 29 juin 2006 (gris) et 12 mars 2007 (noir) à Lille.

5.2.2. Résultats et discussion

D'après le tableau (5.8), les mesures d'AOT du radiomètre POLDER-3 sont en bon accord avec les valeurs d'AOT photométriques du mode fin au cours des trois journées d'étude malgré un faible nombre de mesures inverses dans la journée du 13 et 29 juin 2006 (resp. égal à 3 et 2). Malgré le peu de mesures du radiomètre POLDER-3 au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest (figures 5.11, 5.12 et 5.13), les mesures d'AOT_{POLDER-3,fin} correspondent, au-dessus de la région de Lille, à un nombre significatif de pixels (50 % des pixels pour un maximum de 3 x 4 pixels POLDER-3) et montrent un écart-type spatial négligeable (entre 0.03 et 0.06) pour les 3 journées considérées. Comme attendu, les mesures d'AOT du mode total restituées par le radiomètre MODIS-AQUA sont supérieures aux mesures d'AOT_{POLDER-3,fin} au cours des trois journées d'étude. On note, dans ce cas, un pourcentage de pixels à la base des mesures plus important (supérieur à 50 % pour un maximum de 7 x 7 pixels MODIS) que pour le radiomètre POLDER-3, reflétant un masque nuageux POLDER plus restrictif dû à sa plus faible résolution spatiale. Le tableau (5.8) montre cependant un écart-type spatial du radiomètre MODIS assez important (égal à 0.15) le 13 juin 2006.

D'après le tableau (5.8), les trois journées peuvent être classées de CQA « Modérée » d'après les moyennes journalières de PM_{2,5} et on observe les résultats suivants:

- Les journées du 13 et 29 juin 2006 enregistrent une moyenne horaire de PM_{2,5} (entre 12 et 14 h) similaire de 19 µg/m³,

- Les journées du 29 juin 2006 et du 12 mars 2007 montrent une moyenne journalière de $PM_{2.5}$ quasi-similaire de 16 à 17 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ au sol.

Nous choisissons donc, par la suite, de comparer, d'une part, les journées du 13 et du 29 juin 2006 (mesures similaires de $PM_{2.5}$ entre 12 et 14h) et, d'autre part, les journées du 29 juin 2006 et du 12 mars 2007 (mesures similaires de $PM_{2.5}$ journalières). Bien qu'on montre des similitudes dans les mesures de $PM_{2.5}$ (moyenne journalière ou horaire entre 12 et 14h) des trois journées d'études, celles-ci affichent toutes des valeurs différentes d' $AOT_{\text{POLDER-3,Fin}}$ à 440 nm. D'ailleurs, d'après le seuil précédemment défini pour le radiomètre POLDER (égal à 0.17 à 440 nm), les journées du 13 et du 29 juin 2006 seraient qualifiées de CQA « Modérée » alors que celle du 12 mars 2007 serait qualifiée de CQA « Bonne ». Autrement dit, que ce soit en comparant les journées du 13 et du 29 juin 2006 ou du 29 juin 2006 et du 12 mars 2007, pour un même contenu au sol, on observe une mesure d' $AOT_{\text{POLDER-3,Fin}}$ différente. Comme il a été vu précédemment, cette différence pourrait non seulement provenir d'un changement des propriétés optiques et microphysiques des aérosols mais aussi d'une variation de la distribution verticale des particules.

En ce qui concerne les propriétés optiques et microphysiques des particules, les aérosols sont dominés par de fines particules le 13 et le 29 juin 2006. Ces deux journées affichent, en effet, un mode fin nettement plus important sur la figure (5.14) ainsi qu'une valeur de coefficient d'Angstrom supérieure à 1.76, et une concentration en volume du mode fin supérieure à 68 % de la concentration en volume totale des particules d'après le tableau (5.8). On note, de même, un rayon effectif total des particules quasi-similaire entre 0.21 et 0.24 μm . Par contre, le 12 mars 2007 montre des particules moins fines que les autres jours avec une concentration en volume du mode fin représentant 44 % de la concentration en volume totale des particules ainsi qu'un coefficient d'Angstrom égal à 1.59 (tableau 5.8). La figure (5.14) montre, de plus, un mode fin nettement moins prononcé le 12 mars 2007 par rapport aux autres journées. D'après le tableau (5.8), alors que les propriétés d'absorption sont quasi-similaires entre le 29 juin 2006 et le 12 mars 2007 (différence de ω_0 et de $\text{Im}(\eta)$ au plus égale à la précision sur la mesure présentée dans le tableau 2.3), on observe une légère différence entre le 13 et le 29 Juin 2006. Le 29 juin 2006 semble, en effet, montrer des particules plus absorbantes ($\text{Im}(\eta)$ égale à 0.01 et ω_0 égale à 0.92). La partie réelle de l'indice de réfraction enregistre, de même, plus de différences entre les journées du 13 et du 29 juin 2006 (supérieure à la précision sur la mesure de $\text{Re}(\eta)$) qu'entre les journées du 29 juin 2006 et du 12 mars 2007.

Les trois journées montrent, par ailleurs, des conditions moyennes (entre 12 et 14h) de faible humidité relative (entre 38 et 51 %) et une première analyse de la pression atmosphérique moyenne au sol montre des conditions météorologiques anticycloniques (pression atmosphérique supérieure ou égale à 1013 hPa) favorisant un mélange homogène des particules dans la couche limite atmosphérique au cours des trois journées d'étude.

Au final, on observe un léger changement de taille des particules entre le 29 juin 2006 et le 12 mars 2007 et une faible variation des propriétés optiques entre le 13 et le 29 juin 2006. Un changement des propriétés optiques des particules pourrait donc, au moins en partie, expliquer le changement de mesures d' $AOT_{\text{POLDER-3,Fin}}$ entre les journées du 13 et du 29 juin 2006.

Les profils de rétrodiffusion atténuée ($\beta^{\text{att}}(z)$) sont calculés à partir de la réponse optique des diffuseurs (molécules et aérosols) atmosphériques. L'extinction suit approximativement une loi en λ^{-4} dans le cas des molécules et, par conséquent, elle augmente rapidement lorsque la longueur d'onde diminue. Le signal moléculaire est donc moins important à 1064 nm qu'à 532 nm. C'est pourquoi nous basons notre analyse sur le profil du coefficient $\beta^{\text{att}}_{1064,\text{Total}}(z)$ (moyenné sur la trace rouge de la figure 5.9) dérivé du LIDAR CALIOP.

D'après ces profils présentés sur les figures (5.11), (5.12) et (5.13), en dessous de 3 Km d'altitude, les trois journées d'étude montrent de fortes valeurs de $\beta^{\text{att}}_{1064,\text{Total}}(z)$ depuis le sol jusqu'à une altitude variable puis une diminution du profil. On observe, par ailleurs, une forte variation spectrale du profil $\beta^{\text{att}}(z)$ (c'est-à-dire une forte différence d'amplitude entre $\beta^{\text{att}}_{532,\text{Total}}(z)$ et $\beta^{\text{att}}_{1064,\text{Total}}(z)$) en dessous de 3 Km pour les 3 journées d'étude. Les aérosols proches du sol semblent donc dominés par de fines particules. Le produit de niveau 2 de description des scènes atmosphériques des figures (5.11) à (5.13) confirme la présence d'aérosols dans les basses couches atmosphériques au-dessus de notre zone (carré blanc) et au cours des trois journées d'étude.

L'augmentation du profil de rétrodiffusion atténué semble négligeable au-dessus de 3 Km le 29 juin 2006 (figure 5.12) et le 12 mars 2007 (figure 5.13). Le produit de niveau 2 dérivé du LIDAR CALIOP confirme l'absence totale de nuages ou de transport de particules au-dessus d'une altitude d'environ 3 Km pour ces deux journées. La journée du 13 juin 2006 est la seule à montrer une augmentation du profil $\beta^{\text{att}}_{1064,\text{Total}}(z)$ non négligeable entre 5 et 6 Km. Ce pic présente, par ailleurs, une faible variation spectrale du profil de coefficient de rétrodiffusion atténué (c'est-à-dire des valeurs similaires de $\beta^{\text{att}}_{1064,\text{Total}}(z)$ et de $\beta^{\text{att}}_{532,\text{Total}}(z)$) signalant la présence de particules de taille importante (aérosols désertiques ou nuages). Notons que la valeur du coefficient d'Angstrom de 1.83 du tableau (5.8) le 13 juin 2006 désigne plutôt la présence d'aérosols de petite taille et non de particules désertiques. On observe, de plus, une mesure négligeable de dépolarisation du signal rétrodiffusé par les composants atmosphériques à 532 nm entre 5 et 6 Km. La forme des particules peut donc être approximée en type sphérique telle que des gouttes nuageuses puisque les particules semblent, par ailleurs, de taille importante. Le pic de $\beta^{\text{att}}_{1064,\text{Total}}(z)$ observé entre 5 et 6 Km le 13 juin 2006 semble donc dû à un nuage composé d'eau (à l'inverse d'un nuage de glace de type Cirrus). Le produit de niveau 2 CALIOP vient appuyer ce résultat. En effet, à l'intérieur de la région de notre étude (carré blanc, bas de la figure 5.11) on observe un nuage d'eau entre 5 et 6 Km (en bleu clair).

Les trois journées d'étude semblent donc afficher des aérosols principalement contenus dans un « réservoir » de hauteur variable selon les journées. D'après les figures (5.11), (5.12) et (5.13), si l'on définit le sommet de ce « réservoir » comme étant au milieu de la forte décroissance du coefficient de rétrodiffusion (en dessous de 3 Km), celui-ci semble se trouver au-dessus de 2 Km le 13 juin 2006, entre 1 et 2 Km le 29 juin 2006 et inférieur ou égal à 1 Km d'altitude le 12 mars 2007. Le sommet de ce « réservoir » est appelé, par abus de langage, la hauteur de couche limite (ou H_{CL}). Il existe plusieurs manières d'obtenir la hauteur H_{CL} à partir du profil de rétrodiffusion atténué $\beta^{\text{att}}_{1064,\text{Total}}(z)$. Parmi celles-ci, le calcul du gradient maximum du profil de rétrodiffusion est la méthode dite « dérivative », aussi utilisée pour l'obtention de la hauteur de couche limite à partir d'un profil LIDAR au sol [*Flamant et al.*, 1997]. Les valeurs de H_{CL} obtenues grâce à cette méthode sont listées au bas du tableau (5.8). Le 13 juin 2006, la valeur du premier gradient maximal du profil correspond, en réalité, à une altitude de 4,63 Km. Nous n'avons pas relevé cette valeur mais la valeur suivante de gradient maximal car, à la vue du profil de la figure (5.11), cette hauteur ne semble pas correspondre à la hauteur H_{CL} mais au fort gradient qu'entraîne la présence d'un nuage composé d'eau. Cette

méthode de calcul de la hauteur H_{CL} est donc toutefois discutable et ceci, notamment dans le cas de couches multiples d'aérosols (à l'intérieur de la couche limite et/ou en altitude). Nous avons, de même, calculé la hauteur H_{CL} grâce au calcul de la dérivée seconde du profil de rétrodiffusion décrite dans l'étude de *Delbarre et al.* [2005]. Les valeurs de hauteur H_{CL} sont alors toutes supérieures aux valeurs précédentes obtenues grâce à la méthode « dérivative » (égale à 2.77 Km le 13 juin 2006, 1.24 Km le 29 juin 2006 et 2.11 Km le 12 mars 2007).

Finalement, mis à part un léger changement des propriétés optiques entre le 13 et le 29 juin 2006, la variation des mesures d'AOT satellitaire d'un facteur ~ 2 du premier au troisième cas d'étude semble s'expliquer en grande partie par un changement de distribution verticale. En effet, nos cas d'étude enregistrent le même contenu en PM au sol ainsi que des particules principalement contenues dans un « réservoir » entre le sol et une hauteur variable. On observe alors, que ce soit en comparant le 13 et le 29 juin 2006 ou le 12 mars 2007 et le 29 juin 2006, qu'une augmentation de la mesure d'AOT POLDER-3 s'accompagne, dans tous les cas, d'une augmentation non négligeable de la hauteur de ce « réservoir » (d'un facteur ~ 2 similaire à celui observé entre les mesures d'AOT POLDER-3).

Il est possible de calculer la valeur du paramètre M_{POL} de la formule (5.5) précédente en considérant la hauteur de couche limite comme premier niveau. Si l'on suppose que la totalité des particules est contenue dans cette hauteur de couche limite (H_{CL}), le rapport R de la formule (5.3) est égal à 1. Il est alors possible, d'après la formule (5.5), de calculer le paramètre $M_{POL}(H_{CL})$. Ce paramètre est fonction de la mesure d'AOT satellitaire, de la hauteur H_{CL} dérivée des mesures du LIDAR CALIOP ainsi que de la section spécifique massique d'extinction, $s_{H_{CL}}$, représentative de la couche limite atmosphérique. Il est fait l'hypothèse d'une humidité relative constante dans la couche limite atmosphérique et égale à celle du sol (tableau 5.8). Cette humidité relative intervient dans le calcul de la section $s_{H_{CL}}$ grâce à la formule (5.7) en fixant un coefficient g égal à 0.55 [*Raut et Chazette, 2007*] et une section $s_{H_{CL}}$ à 0 % d'humidité relative égale à $3.21 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \mu\text{g}^{-1}$ à 530 nm [*Mallet et al., 2003*]. Le paramètre $M_{POL}(H_{CL})$ est ensuite « asséché » grâce à la formule (2.8) et on obtient les valeurs du tableau (5.9) au cours des trois journées d'étude.

Lille	13-juin-06	29-juin-06	12-mars-07
$M_{POL}(H_{CL})$ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	19	16	16
$PM_{2.5}(24\text{h})$ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	20	16	17
$PM_{2.5}(12-14\text{h})$ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	19	19	15
$AOT_{POLDER-3,Fin}$ (440nm)	0.39	0.21	0.12

Tableau 5.9 : Valeur du paramètre $M_{POL}(H_{CL})$ (en $\mu\text{g}/\text{m}^3$) calculé grâce à la hauteur de couche limite H_{CL} dérivée des mesures du LIDAR CALIOP, les valeurs d'humidité relative mesurées au sol (moyennes entre 12 et 14h) et les mesures d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ à 550 nm le 13 juin 2006, le 29 juin 2006 et le 12 mars 2007. On montre aussi les mesures de $PM_{2.5}$ (en moyenne journalières ou horaires entre 12 et 14h) correspondantes en $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

D'après le tableau (5.9), l'écart entre le paramètre $M_{POL}(H_{CL})$ et les mesures de $PM_{2.5}$ (que ce soit sous forme de moyennes journalières ou horaires entre 12h et 14h) est au plus de $3 \mu g/m^3$. Cet écart est, par ailleurs, de l'ordre de la précision sur la mesure de concentration massique. Le paramètre $M_{POL}(H_{CL})$ est toutefois légèrement plus proche des moyennes journalières de $PM_{2.5}$ avec un écart maximum de $1 \mu g/m^3$. Il est aussi possible de calculer les valeurs de $PM_{2.5}$ grâce aux seules mesures d'AOT du radiomètre POLDER en appliquant la relation directe obtenue au chapitre précédent ($PM_{2.5} \approx 25 \times AOT_{POLDER,Fin} + 12$). L'écart entre les valeurs de $PM_{2.5}$ obtenues et mesurées est alors, au maximum, du même ordre que celui obtenu entre le paramètre $M_{POL}(H_{CL})$ et les mesures de $PM_{2.5}$ ($3 \mu g/m^3$). Dans le cas du 12 mars 2007, on obtient un écart légèrement plus important ($4 \mu g/m^3$) lorsqu'on utilise la relation directe hivernale du chapitre précédent (définie du 21 décembre au 21 mars 2005-2006, $PM_{2.5} \approx 43 \times AOT_{POLDER,Fin} + 14$).

Il semble donc possible d'évaluer le contenu en aérosols au sol en termes de $PM_{2.5}$, grâce à l'information de hauteur de couche limite dérivée des mesures du profil CALIOP, de l'AOT satellitaire du radiomètre POLDER-3 et de la valeur d'humidité relative au sol provenant d'une station météorologique. Cependant, ces trois journées d'étude ne nous permettent pas de conclure sur l'importance de prendre en compte la distribution verticale dans l'élaboration d'un produit satellitaire de qualité de l'air puisque l'utilisation du radiomètre POLDER seul permet de dériver une valeur de $PM_{2.5}$ tout aussi proche de celle mesurée au sol. Le manque d'amélioration notable entre ces deux méthodes d'estimation de la masse au sol pourrait s'expliquer par des cas d'étude présentant une mesure de $PM_{2.5}$ généralement assez proche de l'ordonnée à l'origine de la méthode directe (environ égale à $12 \mu g/m^3$) et une valeur d'AOT satellitaire en général assez faible au cours des trois journées d'étude (inférieure à 0.4 à 440 nm). Ces cas d'étude présentent, de plus, une majorité de particules contenue dans la couche limite atmosphérique où elles semblent, par ailleurs, mélangées de manière homogène. L'utilité de prendre en compte la hauteur de couche limite dans la relation entre mesures de $PM_{2.5}$ et d'AOT satellitaires s'impose lors de cas de couches multiples d'aérosols (à l'intérieur et au-dessus de la couche limite) où le rapport R (formule 5.3) est différent de 1. Il reste donc à appliquer ce calcul du paramètre $M_{POL}(H_{CL})$ à des cas météorologiques plus complexes.

Malheureusement, nous ne disposons actuellement que de peu de cas d'études rassemblant des mesures co-localisées de $PM_{2.5}$, photométriques, satellitaires et du LIDAR CALIOP au-dessus de la région de Lille. Parmi ceux-là, le 29 avril 2007 est, à ce jour, la journée présentant la valeur d'épaisseur optique la plus forte (0.78 à 440 nm). Bien qu'il s'agisse du mode total et non du mode fin, cette valeur semble, par ailleurs, validée grâce à la moyenne journalière d'AOT_{AERONET,Total} (égale à 0.64 à 440 nm). Cette journée enregistre une moyenne de $PM_{2.5}$ de $21 \mu g/m^3$ entre 12 et 14h. La figure (5.15) montre la carte d'AOT_{POLDER-3,Fin} à 440 nm et les produits de niveau 1 ($\beta_{1064,Total}^{att}(z)$) et 2 (structure des scènes atmosphériques) du LIDAR CALIOP. Nous ajoutons, dans ce cas, les mesures d'un LIDAR au sol (laser Nd-YAG double à 532 nm) situé sur le toit du laboratoire et à proximité du photomètre à Lille. Celui-ci fournit des mesures depuis janvier 2007. La figure (5.15) montre l'évolution temporelle du signal $\ln(P(z) \times z^2)$ (voir formule 2.14) mesuré par ce LIDAR au sol au cours de la journée du 29 avril 2007.

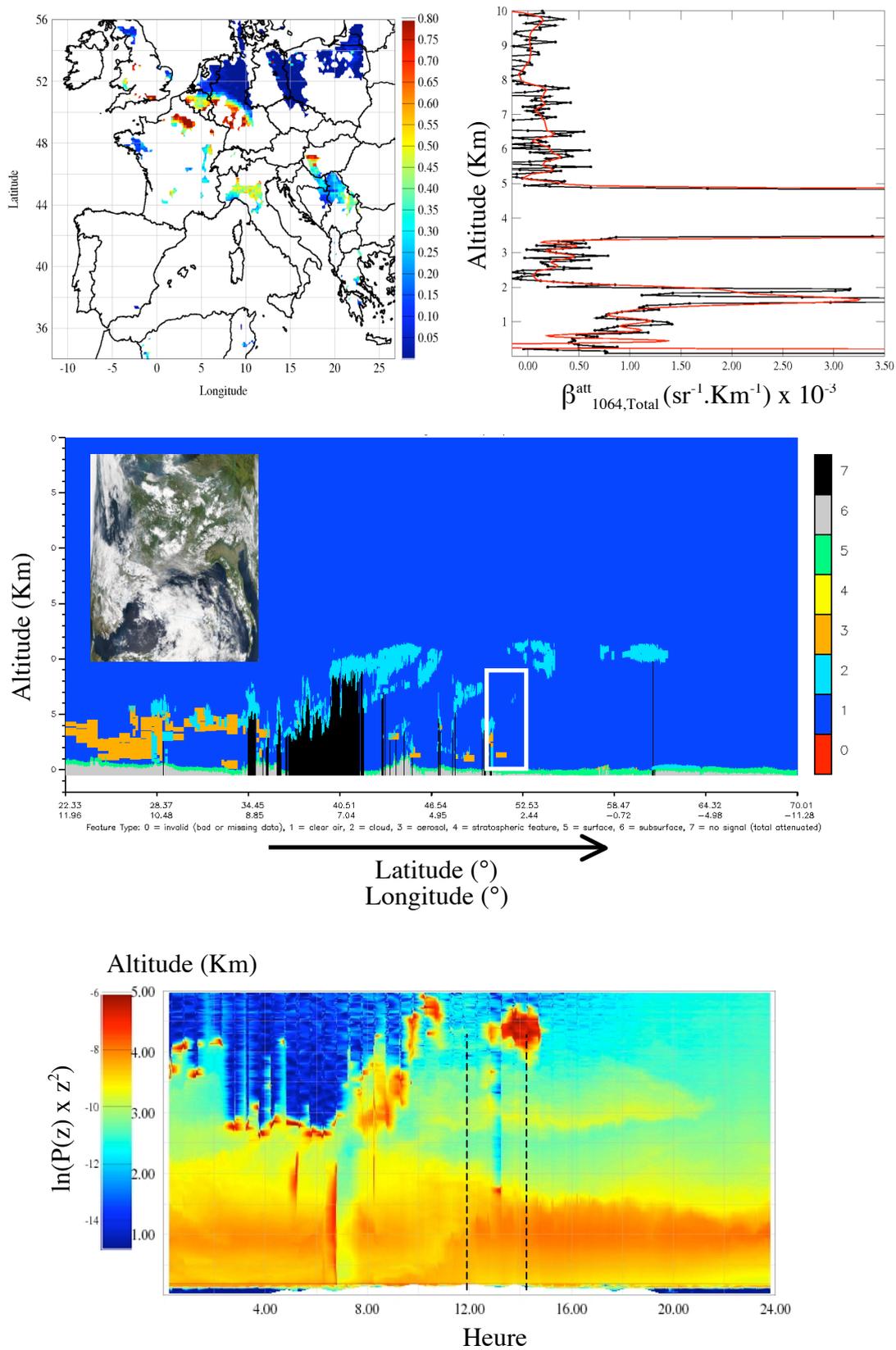


Figure 5.15 : Même légende que la figure (5.11) concernant le 29 avril 2007 et en bas, évolution temporelle du profil du signal LIDAR au sol, $\ln(P(z) \times z^2)$ (voir formule 2.14) à Lille (LIDAR situé sur le toit du laboratoire) le 29 avril 2007. Les traits noirs verticaux en pointillés représentent le passage des radiomètres POLDER-3, MODIS-AQUA et du LIDAR CALIOP entre 12 et 14h.

Dans le cas du 29 avril 2007, les aérosols ne sont pas correctement mélangés dans la couche limite. On observe, en effet, deux pics majeurs du profil $\beta_{1064,Total}^{att}(z)$ en dessous de 3 Km. D'après le profil du LIDAR au sol, on observe, entre 12 et 14h (traits verticaux en pointillés), une couche d'aérosols dont le mélange ne semble pas homogène entre 1 et 2 Km. De plus, le produit de niveau 2 CALIOP semble montrer au-dessus de notre zone d'étude (carré blanc) une couche d'aérosols détachée du sol.

L'augmentation soudaine du profil de $\beta_{1064,Total}^{att}(z)$ entre 4 et 5 Km semble dû à une couche diffusante nuageuse comme le confirme le profil du LIDAR au sol ainsi que le produit de niveau 2 CALIOP (en bleu clair). Cette dernière observation est confirmée par la carte en vraies couleurs du radiomètre MODIS-AQUA qui montre une couverture nuageuse très importante au-dessus de la France, et tout particulièrement, au-dessus de la région de Lille.

On suppose, d'après le profil LIDAR au sol, un contenu négligeable en aérosols au-dessus d'une altitude d'environ 3.7 Km. La hauteur de couche limite dérivée du profil de $\beta_{1064,Total}^{att}(z)$ grâce à la méthode « dérivative » est alors égale à 1,56 Km. Le rapport R entre le contenu (c'est-à-dire l'intégration du profil $\beta_{1064,Total}^{att}(z)$ sur la verticale) en aérosols de la couche limite et de la colonne (autrement dit, par approximation, jusqu'à 3.7 Km) est alors égal à 67%. Grâce à ce rapport R ainsi que la valeur d'humidité relative moyenne entre 12 et 14h (égale à 68%) et les mêmes valeurs de section massique d'extinction « sèche » et de coefficient g que précédemment, on obtient une valeur $M_{POL}(H_{CL})$ égale à $17 \mu\text{g}/\text{m}^3$, soit un écart de $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ avec la mesure de $\text{PM}_{2.5}$ au sol ($21 \mu\text{g}/\text{m}^3$) entre 12 et 14h. On résume ces résultats dans le tableau (5.10).

Date	AOT _{POLDER-3,Fin} (440 nm)	AOT _{AERONET,Total} (440nm)	PM _{2.5} (12-14h, $\mu\text{g}/\text{m}^3$)	H _{CL} (Km)	R (%)	HR (%)	M _{POL} (H _{CL}) ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
29-avr-07	0.78	0.64	21	1.56	67	68	17

Tableau 5.10 : Mesures d'AOT_{POLDER-2,Fin}, d'AOT_{AERONET,Fin}, de PM_{2.5} (moyenne entre 12 et 14h), de hauteur H_{CL} et de rapport R dérivé du profil de $\beta_{1064,Total}^{att}(z)$ du LIDAR CALIOP, d'humidité relative (moyenne entre 12 et 14h) et la valeur du paramètre M_{POL}(H_{CL}) le 29 avril 2007 à Lille.

Par contre, lorsqu'on estime la masse au sol en utilisant uniquement les mesures d'AOT satellitaire et la relation directe obtenue dans le chapitre précédent, on obtient une valeur de PM_{2.5} égale à $32 \mu\text{g}/\text{m}^3$ le 29 avril 2007 à Lille (soit un écart de $11 \mu\text{g}/\text{m}^3$ avec la mesure de PM_{2.5}). Bien qu'il a été fait une forte approximation sur un contenu en aérosols négligeable à partir d'une altitude de 3.7 Km, le cas du 29 avril 2007 met donc en évidence l'importance de prendre en compte la distribution verticale des particules dans l'élaboration d'un produit satellitaire de qualité de l'air. Il est nécessaire de vérifier cette relation sur d'autres cas d'étude et au-dessus d'autres zones en France. L'automatisation du calcul du paramètre M_{POL}(H_{CL}) requiert la connaissance de la hauteur de couche limite pour n'importe quelle situation météorologique ainsi que des mesures d'humidité relative au sol non loin du passage des instruments spatiaux POLDER-3 et CALIOP.

5.3. Conclusions

Nous utilisons, dans un premier temps, la distribution verticale des aérosols simulée par le modèle de chimie-transport CHIMERE pour tenter de contraindre la relation entre les mesures d'AOT satellitaire et de $PM_{2.5}$. Ce modèle montre une nette sous-estimation du contenu au sol en aérosols de type « urbain » ainsi qu'un accord peu satisfaisant lorsque le contenu en $PM_{2.5}$ du premier niveau du modèle est comparé aux mesures de $PM_{2.5}$ au sol d'avril à octobre 2003 en France.

Néanmoins, le modèle CHIMERE semble en accord avec les restitutions satellitaires dans le cas de panaches présentant de forts contenus en aérosols de « pollution » au-dessus d'une large zone géographique dont la couverture nuageuse est réduite. Notre étude est donc basée sur 9 journées de bon accord entre modèle et satellite.

L'estimation de la masse au sol à partir de la combinaison entre le modèle et le satellite requiert le calcul d'une valeur d'AOT dérivée du modèle pour un type d'aérosol « urbain ». On observe une corrélation satisfaisante entre les valeurs calculées d'AOT simulées par le modèle et les mesures d'AOT photométriques au-dessus de la France d'avril à octobre 2003 ($R=0.67$) malgré un facteur important entre les 2 types de mesures (facteur 4). Grâce à la valeur d'AOT simulée par le modèle CHIMERE, le profil d'humidité relative fourni par le modèle MM5 et la mesure d'AOT satellitaire, il est alors possible de calculer le produit de qualité de l'air satellitaire $M_{POL}(H_1)$. La comparaison entre, d'une part, le paramètre $M_{POL}(H_1)$ et les mesures de $PM_{2.5}$ et, d'autre part, les mesures d'AOT_{POLDER-2,Fin} et de $PM_{2.5}$ montrent un coefficient de corrélation quasi-similaire. L'apport de la distribution verticale du modèle CHIMERE est donc actuellement limité quant à la surveillance de la pollution en aérosols en termes de qualité de l'air par le satellite au-dessus de la France d'avril à octobre 2003. Le paramètre $M_{POL}(H_1)$ est, en effet :

- (i) Très sensible aux restitutions du radiomètre POLDER-2, lesquelles peuvent être biaisées, entre autres, par une mauvaise modélisation de la surface,
- (ii) Dépendant d'un profil de concentration massique du modèle CHIMERE précédemment observé comme sous-estimant les mesures (que ce soit au sol ou dans la colonne atmosphérique),
- (iii) Fonction d'un profil d'humidité relative pouvant être mal représenté (spécialement en milieu urbain) et
- (iv) Tributaire d'erreurs dans le calcul d'un AOT simulé pour un type « urbain » d'aérosols.

Finalement, il est important de remarquer que, si l'apport du modèle n'est pas significatif quant à l'évaluation satellitaire de la qualité de l'air, l'effort scientifique pourrait se diriger davantage vers l'apport du satellite à la prévision de la pollution en aérosols par les modèles de chimie-transport.

Nous avons, par la suite, utilisé les produits de niveau 1 (profil de coefficient de rétrodiffusion atténué, $\beta^{att}(z)$) et de niveau 2 (structure de scènes atmosphériques) du LIDAR CALIOP dans le but (i) d'expliquer un changement de relation entre mesures de $PM_{2.5}$ et d'AOT satellitaire par une variation de la distribution verticale des aérosols et (ii) de mettre en évidence l'importance de prendre en compte la distribution verticale des aérosols dans l'élaboration d'un produit satellitaire de qualité de l'air.

Le premier objectif est atteint au cours de trois cas d'étude présentant des mesures localisées photométriques, de $PM_{2.5}$, d'AOT_{POLDER-3,Fin}, d'AOT_{MODIS-AQUA,Total}, météorologiques au sol et de $\beta^{att}(z)$ du LIDAR CALIOP. Parmi ces trois journées, nous comparons deux

couples de jours présentant une mesure de $PM_{2.5}$ similaire mais une mesure d' $AOT_{POLDER-3,Fin}$ différente. Une première analyse montre peu ou pas de changement des propriétés optiques entre les deux couples de journées. Celui-ci n'explique donc pas (entièrement) le changement important d' AOT satellitaire. Par contre, d'après l'étude des profils $\beta^{att}(z)$ du LIDAR CALIOP, on observe que l'augmentation de l' AOT satellitaire est, dans tous les cas, accompagnée d'une augmentation significative de la hauteur du réservoir (notée H_{CL}) contenant, par ailleurs, la plupart des particules. On en déduit donc l'importance d'un changement de distribution verticale des aérosols sur la relation entre mesures satellitaires et de $PM_{2.5}$.

Le deuxième objectif ne peut, par contre, être atteint en se servant de ces trois journées d'études. Les trois journées d'étude n'enregistrent, en effet, pas de mesures d' AOT satellitaire ou de $PM_{2.5}$ assez fortes pour que l'on puisse mettre en évidence une différence notable lors de la prise en compte de la distribution verticale du LIDAR CALIOP. Nous étendons donc notre étude au cas du 29 avril 2007 présentant une forte valeur d' AOT satellitaire et de multiples couches d'aérosols (à l'intérieur et à l'extérieur de la couche limite). L'estimation de la masse au sol est, dans ce cas, plus proche de la mesure de qualité de l'air que celle obtenue par la méthode directe (utilisation de la relation directe entre $PM_{2.5}$ et AOT POLDER-3 dans le chapitre précédent, écart de $11 \mu g/m^3$). Ce résultat est donc très encourageant mais il reste à appliquer notre calcul d'estimation de la masse au sol grâce à la combinaison entre le satellite et le LIDAR CALIOP à d'autres cas et au-dessus d'autres zones d'études.

Conclusion Générale

L'objectif de notre étude a été d'évaluer la capacité satellitaire à estimer la pollution en aérosols en termes de catégories de qualité de l'air (CQA, définies à partir de mesures de concentration massique). Nous avons focalisé notre étude sur la zone de l'Europe de l'Ouest et, particulièrement, la ville de Lille. Ce travail est basé essentiellement sur les mesures des satellites POLDER-2 et POLDER-3 au cours des années 2003, 2005 et 2006. Nous avons principalement utilisé des mesures d'épaisseur optique d'extinction (AOT) et des mesures de concentration massique de particules d'un diamètre aérodynamique inférieur à $2.5 \mu\text{m}$ ($\text{PM}_{2.5}$).

L'étude de la variabilité temporelle de ces mesures au sol nous a permis de mettre en évidence un cycle journalier assez faible et une moyenne journalière représentative de la mesure centrée sur l'heure de passage du satellite. Nous avons montré, en effet, une variation moyenne de ~ 0.07 pour les mesures d'AOT photométriques et de $\sim 4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pour les mesures de $\text{PM}_{2.5}$ au cours de la journée des années 2003, 2005 et 2006. Par ailleurs, la valeur moyenne d'AOT photométrique du mode total a été observée égale à 0.22 au-dessus de l'Europe de l'Ouest de 1994 à 2007 alors que la valeur moyenne annuelle des mesures de $\text{PM}_{2.5}$ est environ de $23 \mu\text{g}/\text{m}^3$ au-dessus de stations de type « urbaines » en 2003. De plus, l'étude de la variabilité spatiale de ces mêmes mesures a montré qu'il était envisageable de confronter une mesure satellitaire couvrant une large zone géographique à une mesure au sol par définition, très locale. Nous avons approfondi cette étude par l'analyse de la variabilité temporelle du type d'aérosols au-dessus de notre zone d'étude. La caractérisation de l'aérosol a montré un aérosol composé d'une majorité de particules fines et faiblement absorbantes (albédo de diffusion simple moyen de 0.91) au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest (1994-2007) et, plus particulièrement, au-dessus de Lille en 2003 où le rayon effectif moyen est égal à $0.31 \mu\text{m}$ et la concentration en volume du mode fin représente $\sim 58 \%$ de la concentration en volume totale.

Si confronter directement des mesures d'AOT à des mesures de $\text{PM}_{2.5}$ au sol n'est, à priori, pas évident, nous avons, cependant, observé une corrélation significative ($R=0.60$) entre les mesures d'AOT photométriques et de $\text{PM}_{2.5}$ à Lille au cours de l'année 2003. La relation entre ces deux types de mesures a été observée très différente en été et hiver 2003 à Lille (pente plus forte d'un facteur d'environ 2 en hiver). Pourtant, que ce soit en moyenne ou lors des pics de pollution, aucune différence majeure n'a été décelée entre les propriétés optiques moyennes des particules de ces deux saisons à Lille. Nous en déduisons une influence beaucoup plus importante de la distribution verticale des aérosols sur la différence de relation entre les mesures d'AOT et de $\text{PM}_{2.5}$ observée en période estivale et hivernale de l'année 2003 à Lille. Comparer les mesures d'AOT restituées par différents radiomètres (radiomètres POLDER-2, POLDER-3 et MODIS-TERRA) aux mesures de $\text{PM}_{2.5}$ au-dessus de la France et au cours de périodes d'études différentes, nous a permis, non seulement de définir une relation statistique directe entre ces deux types de mesures mais aussi d'élaborer un seuil d'AOT satellitaire au-dessus duquel la pollution peut être qualifiée de « Modérée ». La relation entre mesures d'AOT du radiomètre POLDER-2 à 440 nm et de $\text{PM}_{2.5}$ d'avril à octobre 2003 ($\text{PM}_{2.5} \approx 25 \times \text{AOT}_{\text{POLDER-2,Fin}} + 12$) semble fournir le seuil d'AOT (égal à 0.17) le plus robuste pour évaluer un épisode de pollution comme étant de CQA « Modérée ». Nous soulignons la valeur importante de l'ordonnée à l'origine de cette relation, correspondant probablement à un bruit de fond en aérosols sur la colonne ou dans les premiers mètres de l'atmosphère. Cette relation semble, par ailleurs, assez stable pour l'appliquer aux deux radiomètres POLDER-2 et POLDER-3 au cours de la période d'avril à octobre. Il n'a pas été

possible de définir un tel seuil d'AOT satellitaire pour des conditions purement hivernales. Il semble nécessaire de faire intervenir, dans ce cas, une information de distribution verticale des aérosols.

Nous avons commencé par utiliser la distribution verticale de la concentration massique des aérosols simulée par le modèle de chimie-transport CHIMERE. À partir de ce profil vertical et de la mesure d'AOT satellitaire, nous avons été capable d'estimer la concentration massique dans les ~ 40 premiers mètres. Une telle combinaison entre satellite et modèle n'a cependant pas permis d'améliorer de manière significative la corrélation entre mesures d'AOT satellitaires et mesures de $PM_{2.5}$. Cette limitation s'explique, en partie, par un profil de concentration massique du modèle CHIMERE qui sous-estime les mesures, un profil d'humidité relative éventuellement mal représenté ou des erreurs induites par le calcul d'un AOT simulé pour un type d'aérosols « urbain ». Si l'apport du modèle n'est pas significatif quant à l'évaluation satellitaire de la qualité de l'air, l'effort scientifique pourrait se diriger davantage vers l'apport du satellite à la prévision de la pollution en aérosols par les modèles de chimie-transport.

Finalement, nous avons utilisé la distribution verticale des aérosols mesurée par le LIDAR spatial CALIOP. Cette mesure a été co-localisée à des mesures photométriques, de $PM_{2.5}$, et météorologiques au sol ainsi qu'à des mesures d'AOT du radiomètre POLDER-3 (et MODIS-AQUA) au-dessus de Lille. Nous avons, dans un premier temps, expliqué un changement de relation entre mesures de $PM_{2.5}$ et d'AOT satellitaire par une variation de la distribution verticale des aérosols lors de trois journées d'étude. Dans un deuxième temps, il a été possible d'estimer la masse d'aérosols dans la couche de mélange atmosphérique grâce à la hauteur de mélange des particules dérivées du profil du LIDAR CALIOP ainsi qu'à la mesure satellitaire et d'humidité relative au sol. Un cas d'étude montrant des couches multiples en aérosols à l'intérieur et à l'extérieur de la couche limite, ainsi qu'une forte valeur d'épaisseur optique satellitaire, nous a permis de mettre en évidence l'importance de prendre en compte la distribution verticale des aérosols dans l'élaboration d'un tel produit satellitaire de qualité de l'air.

Une des perspectives de ce travail est l'application de notre calcul d'estimation de la masse au sol grâce à la combinaison entre le radiomètre POLDER-3 et le LIDAR CALIOP à d'autres cas et au-dessus d'autres zones d'études. La perspective immédiate est d'utiliser le profil de coefficient de rétrodiffusion atténué du LIDAR CALIOP de manière quantitative. La masse au sol pourra, dans ce cas, être directement estimée à partir de l'inversion du signal du LIDAR CALIOP après correction des effets de transmission dans les premiers mètres de l'atmosphère.

Annexe 1

Parmi l'ensemble des mesures journalières d' $AOT_{AERONET,Fin}$ de chaque station, nous considérons de façon arbitraire que les 5 % des valeurs les plus fortes représentent des événements de pollution particulière majeurs. La méthode de calcul consiste, dans un premier temps, à trouver la valeur ($Z_{max,5\%}$) au-dessus de laquelle il nous reste 5 % de la totalité des mesures par station.

Nous avons utilisé une méthode statistique pour déterminer la valeur $Z_{max,5\%}$ par station. Pour cela, il faut connaître le type de distribution des mesures d' $AOT_{AERONET,Fin}$. À titre d'exemple, la figure (A) montre la distribution des mesures d' $AOT_{AERONET,Fin}$ (à 440 nm) à Lille de 1994 à 2007.

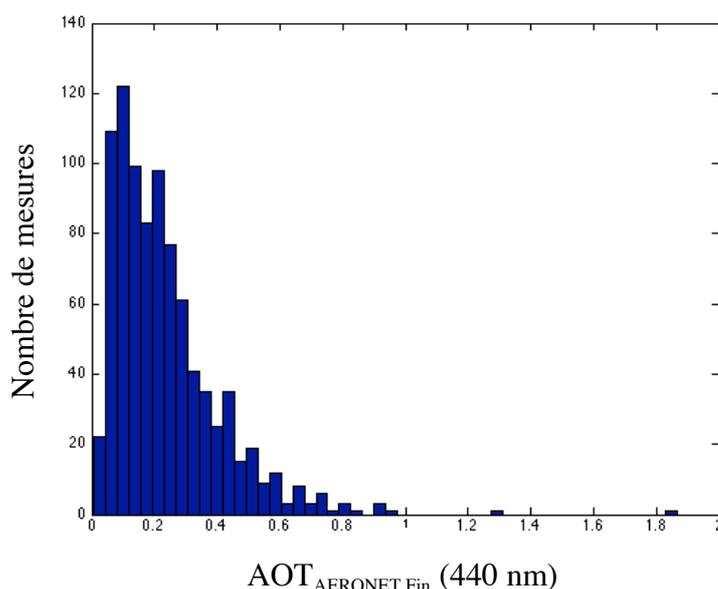


Figure A: Nombre de mesures d' $AOT_{AERONET,Fin}$ (440 nm, niveau 2 avec $\theta_s \geq 45^\circ$, $L_{sim} - L_{mes} \leq 5\%$ et le nombre d'angles de diffusion, $\Theta \geq 21$) à Lille de 1994 à 2007 par intervalles de valeurs d' $AOT_{AERONET,Fin}$ (50 intervalles de même taille, chacun environ égal à 0.04). Le nombre total de mesures est de 893 ; remerciements à Céline Cornet.

Comme le montre la figure (A), les mesures d' $AOT_{AERONET,Fin}$ ne peuvent pas afficher de valeurs négatives, présentent une valeur moyenne très faible et montrent une distribution dissymétrique. La distribution des mesures d' $AOT_{AERONET,Fin}$ peut, par conséquent, être approchée par une loi log-normale. Hors, la méthode statistique consistant à trouver la valeur $Z_{max,5\%}$ s'effectue habituellement grâce à une table de fonction de répartition de la loi normale centrée réduite. Une fois la distribution des mesures d' $AOT_{AERONET,Fin}$ transformée de loi log-normale à loi normale centrée réduite, il est alors possible de calculer la valeur $Z_{max,5\%}$ au-dessus de laquelle l'événement peut être qualifié de « pollution particulière » de la façon suivante :

$$Z_{max,5\%} = \exp(\mu + 1.65 \times \sigma) \quad (A.1)$$

où μ et σ sont respectivement la moyenne et l'écart-type de la distribution des mesures d'AOT_{AERONET,Fin}, une fois transformée de loi log-normale à loi normale centrée réduite.

Annexe 2

Si le satellite héliosynchrone considéré passe à une heure locale H_{Locale}^E au-dessus de l'équateur, l'heure en GMT H_{GMT}^P à laquelle ce même satellite passe au-dessus d'un point P de latitude λ_1 et de longitude λ_2 peut être approximée de la façon suivante :

$$H_{GMT}^P = H_{Locale}^E - \lambda_2 \times \frac{24h}{360^\circ} + c \times \lambda_1 \frac{(24h / N_{orbites})}{360^\circ} \quad (A.2)$$

où h est l'heure, les latitudes λ_1 et longitudes λ_2 sont en degrés décimaux et notées respectivement positives au Nord et à l'Est et négatives au Sud et à l'Ouest, le coefficient c est égal à -1 (resp. +1) lorsque le satellite est descendant (resp. ascendant) et $N_{orbites}$ est le nombre d'orbites (une orbite couvrant 360 ° de la terre) du satellite considéré. Dans le cas des radiomètres embarqués POLDER ou MODIS, on observe 14 à 15 orbites par jour à nos hautes latitudes.

Grâce à la relation (A.2), nous pouvons, par exemple, supposer un passage du radiomètre POLDER à bord de la plate-forme ADEOS-2 (survol de l'équateur du Nord au Sud à 10h30 heure locale, on fixe 14 orbites par jour) au-dessus de Lille (latitude de 50.61° N et longitude de 3.14° E) à 10h04 en heure GMT.

Notons qu'ici, l'heure locale du passage à l'équateur n'est que le temps solaire moyen (de l'année). Nous devrions, en toute rigueur, utiliser le temps solaire vrai (du jour), corrigé du temps solaire moyen par l'équation du temps. En effet, la Terre est sur une orbite elliptique et sa vitesse au cours de l'année n'est pas constante. La correction apportée par l'équation du temps varie de ± 16 minutes au cours de l'année. Nous n'avons pas pris en compte cette correction et le soleil peut donc passer au méridien avec 16 minutes d'avance ou de retard par rapport au temps moyen.

Références

- Ackerman, S. A., K. I. Strabala, W. P. Menzel, R. A. Frey, C. C. Moeller, and L. E. Gumley, Discriminating clear sky from clouds with MODIS, *J. Geophys. Res.*, 103(D24), p 32139–32140, 1998.
- Ackerman A. S., O. S. Toon, D. E. Stevens, A. J. Heymsfield, V. Ramanathan and E. J. Welton, Reduction of tropical cloudiness by soot, *Science*, 288, p 1042-1047, 2000.
- Agence Française de Sécurité Sanitaire et Environnementale (AFSSE), Estimation de l'impact sanitaire d'une pollution environnementale et évaluation quantitative des risques sanitaires. Ed. InVS/Afsse, 157 pages, 2005.
- Airborne Particles Expert Group (APEG), Source Apportionment of Airborne Particulate Matter in the United Kingdom, Department of Environment, London, UK, 1999.
- Airparif Actualité, www.airparif.asso.fr, bulletin n°22, Mars 2004.
- Aitchinson J. and J. A. C. Brown, The lognormal distribution function, Cambridge University Press, Cambridge, 176 pages, 1957.
- Albrecht B., Aerosols, cloud microphysics and fractional cloudiness. *Science*, 245, p 1227–1230, 1989.
- Allen G, Sioutas C, Koutrakis P, Reiss R, Lurmann FW, Roberts PT, Burton R.M. Evaluation of the TEOM method for measurement of ambient particulate mass in urban areas. *J Air waste Manage Assoc*, 47, p 682–689, 1997.
- Al-Saadi J. et al., Improving national air quality forecasts with satellite aerosol observations, *Bull. Am. Meteorol. Soc.* 9, pp. 1249–1261, 2005.
- Anderson, B. E., W. B. Grant, et al., Aerosol from biomass burning over the tropical South Atlantic region: distributions and impacts, *J. Geophys. Res.*, **101**, p 24117-24137, 1996.
- Anderson, T. L., R. J. Charlson, S. E. Schwartz, R. Knutti, O. Boucher, H. Rodhe, and J. Heintzenberg, Climate forcing by aerosols - a hazy picture, *Science*, p 300- 1103, 2003.
- Angström, A., The parameters of atmospheric turbidity, *Tellus*, 16, p 64-75, 1964.
- Anselmo T., R. Clifton, Hunt W., Lee K.-P., Murray T., Powell K., Rodier S.D., Vaughan M., Chomette O., Viollier M., Hagolle O., Lifermann A., Garnier A., Pelon J., Currey J.C., Pitts M., Winker D., CALIPSO Data Management System, Data Products Catalog, Release 2.3, Document No : PC-SCI-503, December 2006.
- Aymoz G., S. Bouallala, P. Coddeville, N. Herbelot, P. Laj, O. Le Bihan, F. Mathe, N. Poisson, M.Rico, L. Rouïl, « PM atmospheric concentrations in France : analysis and

- key findings », communication au meeting de Task Force on Measurements and Modelling (TFMM), Dessau, Allemagne, 2007.
- Bessagnet, B., Hodzic, A., Vautard, R., Beekmann, M., Cheinet, S., Honoré, C., Liousse, C., and Rouil, L.: Aerosol modeling with CHIMERE – Preliminary evaluation at the continental scale, *Atmos. Environ.*, 38, 2803–2817, 2004.
- Blanchard, D.C., and A.H.Woofcock, The production concentration and vertical distribution of the seasalt aerosol, *Ann. N.Y. Acad. Sci.*, 338, p 330-347, 1980.
- Bouallala S., C. Elichegaray, A. Guiard, La qualité de l'air dans les agglomérations françaises, bilan 2003 de l'indice Atmo, données et références, Département de la surveillance de la qualité de l'air, Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME), 31 pages, 2004.
- Bouallala S., C. Elichegaray, A. Maitre, La qualité de l'air dans les agglomérations françaises, bilan 2005 de l'indice Atmo, données et références, Département de la surveillance de la qualité de l'air, Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME), 31 pages, 2006.
- Boucher, O. and T. L. Anderson, GCM assesment of the sensitivity of direct climate forcing by anthropogenic sulphate aerosol size and chemistry, *J. Geophys. Res.*, 100(D12), p 26117-26134, 1995.
- Bréon, F.-M., and S. Colzy, Cloud detection from the spaceborne POLDER instrument and validation against surface synoptic observations, *J. Appl. Meteor.*, 36, p 777-785, 1999.
- Chameides W.L., Yu H., Liu S.C., Bergin M., Zhou X., Mearns L., Wang G., Kiang C. S., Saylor R.D., Luo C., Huang Y., Steiner A. and Giorgi F., Case study of the effects of atmospheric aerosols and regional haze on agriculture : an opportunity to enhance crop yields in China through emission controls, *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 26, p 13626-13633, 1999.
- Chandrasekhar, S., Radiative Transfer, Oxford University Press, London, 1950.
- Charron A., Harrison R.M., Moorcroft S., Booker J., Quantitative interpretation of divergence between PM10 and PM2.5 mass measurement by TEOM and gravimetric (PARTISOL) instruments. *Atmos. Environ.*, 38, p 415-423, 2004.
- Chazette, P. and C. Liousse, A case study of optical and chemical ground apportionment for urban aerosols in Thessaloniki, *Atmos. Environ.* 35, p 2497-2506, 2001.
- Cheng, F., D. Byun and S. Kim, Sensitivity study of the effects of land surface characteristics on meteorological simulations during the TexAQS2000 period in the Houston-Galveston area, 13th PSU/NCAR Mesoscale Model Users' Workshop, June 10 -11, Boulder, CO, 2003.
- Chin, M., Ginoux, P., Kinne, S., Torres, O., Holben, B. N., Duncan, B. N., Martin, R. V., Logan, J. A., Higurashi, A., and Nakajima, T.: Tropospheric aerosol optical thickness

- from the GOCART model and comparisons with satellite and sunphotometer measurements, *J. Atmos. Sci.*, 59, 461–483, 2002.
- Chu, D. A., Y. J. Kaufman, et al., Global monitoring of air pollution over land from the Earth observing system-Terra Moderate imaging spectroradiometer (MODIS), *J. Geophys. Res.*, 108(D21): 4661, 2003.
- Clark W. C., *Carbone dioxide review*, Clarendon Press, Oxford, 1982.
- Corbin, K.C., S. M. Kreidenweis, and T.H.V. Haar, Comparaison of aerosol properties derived from Sun Photometer data and ground-based chemical measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 29, doi:10.1029/2001GL014105, 2002.
- Covert, D. S., Charlson, R. J., and Ahlquist, N. C.: A study of the relationship of chemical composition and humidity to light scattering by aerosols, *J. Appl. Meteorol.*, 11, 968–976, 1972.
- D’Almeida, G., A., P. Koepke, and E. P. Shettle. Atmospheric aerosols. Global climatology and radiative characteristics. A. Deepak Publ., Hampton, Virginia, USA, 420 pages, 1991.
- Deepak, A., and Gali, G., *The international Global Aerosol Program (IGAP) Plan*. Deepak Publishing, Hampton, VA., 210 pages, 1991.
- Delbarre, H., P. Augustin, F. SaRd, B. Campistron, B. Be’nech, F. Lohou, V. Puygrenierb C. Moppert, F. Cousin, P. Fre’ville, E. Fre’jafon, Ground-based remote sensing observation of the complex behaviour of the Marseille boundary layer during ESCOMPTE, *Atmos. Res.* 74, p. 403–433, 2005.
- Deschamps P. Y., F. M. Bréon, M. Leroy, A. Podaire, A. Bricaud, J. C. Buriez, and G. Sèze, The POLDER Mission : Instrument Characteristics and Scientific Objectives, *IEEE Trans, Geosci. Remote Sens.*, 32, p 598-615, 1994.
- Deuzé, J.L., « Etude de la polarisation du rayonnement par les milieux diffusants, application à la polarisation localisée de Vénus », thèse, Université des Sciences et technologies de Lille, 1974.
- Deuzé J.L., F.M. Bréon, P.Y. Deschamps, C. Devaux, M. Herman, A. Podaire, and J.L. Roujean, Analysis of the POLDER (POLarization and Directionnality of Earth’s Reflectances) Airborne Instrument Observations over Land Surfaces, *Remote Sens. Environ.*, 45, p 137-154, 1993.
- Deuzé, J.-L., F.-M. Bréon, C. Devaux, P. Goloub, M. Herman, B. Lafrance, F. Maignan, A. Marchand, F. Nadal, G. Perry, and D. Tanré, Remote sensing of aerosols over land surfaces from POLDER-ADEOS-1 polarized measurements, *J. Geophys. Res.*, 106, p 4913-4926, 2001.
- Diermendjian, D., *Electromagnetic scattering on spherical polydispersions*, *American Elsevier*, Pub, New York, 290 pages, 1969.

- Dubovik, O., and M.D. King, A flexible inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from sun and sky radiance measurements, *J. Geophys. Res.*, 105 (D16), p 20673-20696, 2000.
- Dubovik, O., A. Smirnov, et al., Accuracy assessments of aerosol optical properties retrieved from Aerosol Robotic Network (AERONET) Sun and Sky radiance measurements, *J. Geophys. Res.*, 105(D8), p 9791-9806, 2000.
- Dubovik, O., B. Holben, T. F. Eck, A. Smirnov, Y.J. Kaufman, M. D. King, D. Tanré, I. Slutsker, Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations, *J. Atmos. Sci.*, 59(3), p 590-608, 2002.
- Dudhia, J., A nonhydrostatic version of the Penn State/NCAR mesoscale model: validation tests and simulation of the Atlantic cyclone and cloud front. *Monitoring Weather Review* 121, 1493-1513. 1993.
- Engel-Cox, J.A., C.H. Holloman, B.W. Coutant, and R.M. Hoff, Qualitative and quantitative evaluation of MODIS satellite sensor data for regional and urban scale air quality, *Atmos. Environ.*, 38, 2495-2509, doi:10.1016/j.atmosenv.2004.01.039, 2004.
- European Commission Directorate C Environment and Health. *Baseline Scenarios for the Clean Air For Europe (CAFE) Programme*. Final Report. International Institute for Applied Systems Analysis (IIASA), 90 pages, Février 2005.
- Fan XH, P Goloub, J-L Deuze , HB Chen,WX Zhang, D Tanre, Z Li, Evaluation of PARASOL aerosol retrieval over North East Asia, *Remote Sens. Environ*, doi:10.1016/j.rse.2007.06.010, 2007.
- Fenn, R.W. and Oser, H., Scattering properties of concentric soot-water spheres for visible and infra-red light, *App. Opt.* 4, 1505-1509, 1965.
- Flamant, C., J. Pelon, et al., Lidar determination of the entrainment zone thickness at the top of the unstable marine atmospheric boundary layer, *Boundary-Layer Meteorol.* 83: 247-284, 1997.
- Forster, P., V. Ramaswamy, P. Artaxo, T. Berntsen, R. Betts, D.W. Fahey, J. Haywood, J. Lean, D.C. Lowe, G. Myhre, J. Nganga, R. Prinn, G. Raga, M. Schulz and R. Van Dorland, Changes in Atmospheric Constituents and in Radiative Forcing. *In: Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K.B. Averyt, M.Tignor and H.L. Miller (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, p 129-234, 2007.
- Gasso, S., Hegg, D. A., Covert, D. S., Collins, D., Noone, K. J., Oström, E., Schmid, B., Russel, P. B., Livingston, J. M., Durkee, P. A., and Jossion, H.: Influence of humidity on the aerosol scattering coefficient and its effect on the upwelling radiance during ACE-2, *Tellus*, 52B, 546–567, 2000.
- Generoso, S., Bréon, F.-M., Balkanski, Y., Boucher, O., and Schulz, M.: Improving the

- seasonal cycle and interannual variations of biomass burning aerosol sources, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 1211-1222, 2003.
- Generoso, S., Étude des interactions entre aérosols et climat : assimilation des observations spatiales de POLDER dans LMDz-INCA, Thèse de doctorat de l'université Paris VII, Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, Paris, 165 pages, 2004.
- Gérard, B., Synergie des capteurs POLDER et MODIS pour la télédétection des aérosols troposphériques ; Altimétrie des aérosols au dessus des continents, Thèse de l'Université des sciences et technologies de Lille, Laboratoire d'Optique Atmosphérique, Villeneuve d'Ascq, 212 pages, 2006.
- Ginoux P., Chin, M., Tegen, I., Prospero, J.M., Holben, B., Dubovik, O., Lin, S.-J., Sources and distributions of dust aerosols simulated with the GOCART model. *Journal of Geophysical Research* 106,20255-20273, 2001.
- Ginoux, P., Prospero, J.M., Torres, O., Chin, M., Long term simulation of dust distribution with the GOCART model: correlation with the North Atlantic Oscillation. *Environmental Modeling and Software* 19, 113-128, 2004.
- Goloub P., M. Herman, J.L. Deuzé, P. Lallart, Validation of POLDER-2 basic aerosol parameters over ocean, *soumis à Rem. Sens. Environ.*, 2005.
- Gras, J. L., Southern hemisphere tropospheric aerosol microphysics, *J. Geophys. Res.*, 96(D3), p 5345–5356, 1991.
- Green, D., Fuller, G., Barratt, B., Evaluation of TEOM 'correction factors' for assessing the EU Stage limit values for PM10, *Atmos. Environ.*, 35, p 2589 – 2593, 2001.
- Hale, G.M., and M.R. Querry, Optical constants of water in the 200 nm to 200 μ m wavelength region, *Appl. Opt.*, 12, p 555-6563, 1973.
- Hand, J. L., and W. C. Malm, Review of aerosol mass scattering efficiencies from ground-based measurements since 1990, *J. Geophys. Res.*, 112, D16203, doi:10.1029/2007JD008484, 2007.
- Hänel, G., The properties of atmospheric aerosol particles as functions of the relative humidity at thermodynamic equilibrium with surrounding moist air." *Adv. in Geophys.* 19, p 73-188, 1976.
- Hänel, G., The real part of the mean complex refractive index and the mean density of samples of atmospheric aerosol particles, *Tellus*, 20, p 371-379, 1978.
- Hansen J.E. and L.D. Travis, Light scattering in planetary atmospheres. *Space Sci. Rev.*, 16, p 527-610, doi:10.1007/BF00168069, 1974.
- Hansen J., M. Sato and R. Ruedy, Radiative forcing and climate response. *J. Geophys. Res.*, 102, p 6831-6864, 1997.

- Herman, M., J. L. Deuzé, C. Devaux, P. Goloub, F. M. Bréon, and D. Tanré, Remote sensing of aerosols over land surfaces including polarization measurements and application to POLDER measurements, *J. Geophys. Res.*, 102, p 17039-17049, 1997.
- Herman J. R., P. K. Bhartia, O. Torres, C. Hsu, C. Seftor, and E. Celarier, Global distribution of UV-absorbing aerosol from Nimbus 7/TOMS data, *J. Geophys. Res.*, 102, p 16911-16922, 1997a.
- Herman M., J.L. Deuzé, C. Devaux, P. Goloub, F. M. Bréon, and D. Tanré, Remote Sensing of aerosols over land surfaces including polarization measurements and application to POLDER measurements, *J. Geophys. Res.*, 102, p 17039-17044, 1997b.
- Herman M., J. L. Deuzé, A. Marchand, B. Roger, and P. Lallart, Aerosol remote sensing from POLDER/ADEOS over the ocean. Improved retrieval using non spherical particle model, *J. Geophys Res.*, 110, D10S02, doi : 10.1029/2004JD004798, 2005.
- Hinds W.C., Aerosol technology, Wiley, New York, 442 pages, 1982.
- Hodzic, A., Chepfer, H., Vautard, R., Chazette, P., Beekmann, M, Bessagnet, B., Chatenet B., Cuesta, J., Drobinski, P., Goloub, P., Haeffelin, M., and Morille, Y.: Comparison of aerosol chemistry/transport model simulations with lidar and sun-photometer observations at a site near Paris, *J. Geophys. Res.*, 109, D23201, doi:10.1029/2004JD004735, 2004.
- Hodzic A., R. Vautard, B. Bessagnet, M. Lattuati and F. Moreto, Long-term urban aerosol simulation versus routine particulate matter observations, *Atmos. Environ.* 39, p 5851-5864, 2005.
- Hodzic, A., Vautard, R., Chepfer, H., Goloub, P., Menut, L., Chazette, P., Deuzé, J. L., Apituley, A., and Couvert, P.: Evolution of aerosol optical thickness over Europe during the August 2003 heat wave as seen from CHIMERE model simulations and POLDER data, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 1853-1864, 2006.
- Holben, B. N., T. F. Eck, et al., AERONET-A federated instrument network and data archive for aerosol characterisation, *Rem. Sens. Environ*, 66, p 1-16, 1998.
- Horowitz, L.W., Walters, S., Mauzeralles, D.Z., Emmonds, L.K., Rasch, P.J., Granier, C., Tie, X., Lamarque, J.F., Schultz, M.G., Brasseur, J.P., A global simulation of tropospheric ozone and related tracers : description and evaluation of MOZART, version 2. *J. Geophys. Res.* 108 (D24), 4784, 2003.
- Horvath, H., Atmospheric light absorption : A review., *Atmos. Environ.* 27A(3), p 293-317, 1993.
- Ichoku, C., D. A. Chu, S. Mattoo, Y. J. Kaufman, L. A. Remer, D. Tanre', I. Slutsker, and B. N. Holben, A spatio-temporal approach for global validation and analysis of MODIS aerosol products, *Geophys. Res. Lett.*, 29(12), 8006, doi:10.1029/2001GL013206, 2002.
- Ichoku, C., L. A. Remer, and T. F. Eck, Quantitative evaluation and intercomparison of morning and afternoon Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS)

- aerosol measurements from Terra and Aqua, *J. Geophys. Res.*, 110, D10S03, doi:10.1029/2004JD004987, 2005.
- Jaenicke R., Tropospheric aerosols, In Hobbs, P. V. editor, *Aerosol-Cloud-Climate interactions*, p 1-31, Academic Press, San Diego, CA, 1993.
- Janhäll, S., K. Frans, G. Olofson, P. U. Andersson, J. B. C. Pettersson, M. Hallquist, Evolution of the urban aerosol during winter temperature inversion episodes, *Atmos. Env.*, vol 40, p. 5355–5366, 2006.
- Junge C. E., *Air Chemistry and Radioactivity*, Academic Press, 382 pages, 1963.
- Kacenelenbogen M., J.-F. Léon, I. Chiapello and D. Tanré, Characterization of aerosol pollution events in France using ground-based and POLDER-2 satellite data, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 4851-4866, 2006
- Kaufman, Y. J., D. Tanré, L. A. Remer, E.F. Vermote, A. Chu and B. N. Holben, Operational remote sensing of tropospheric aerosol over land from EOS moderate resolution imaging spectroradiometer, *J. Geophys. Res.*, 102, p 17051-17067, 1997-a.
- Kaufman, Y. J., A. E. Wald, L. A. Remer, B. C. Gao, R. R. Li, and L. Flynn, The MODIS 2.1 μm Channel – Correlation with visible reflectance for use in remote sensing of aerosol, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, 35, p 1286-1298, 1997-b.
- Kaufman Y. J. and Tanré D., Algorithm for remote sensing of tropospheric aerosol from MODIS, Product ID : MOD04, 85 pages, 1998.
- Kaufman Y.J., Holben B.N., Tanré D., Slutzker I., Eck T., Smirnov A., Will aerosol measurements from the Terra polar orbiting satellite represent the daily aerosol abundance and properties, *Geophys. Res. Lett.*, 27, 23, 3861-3864, 2000.
- Kawata Y., Circular polarization of sunlight reflected by planetary atmospheres. *Icarus*, 33, p 217-232, doi:10.1016/0019-1035(78)90035-0, 1978.
- Kinne, S., et al. Monthly averages of aerosol properties: A global comparison among models, satellite data, and AERONET ground data, *J. Geophys. Res.*, 108(D20), 4634, doi:10.1029/2001JD001253, 2003.
- Kinne, S., et al. An AeroCom initial assessment—Optical properties in aerosol component modules of global models, *Atmos. Chem. Phys. Disc.*, 5, 8285– 8330, 2005.
- Klaassen Curtis, D., Amdur, Mary O., Casarett and Doull's Toxicology: The Basic Science of Poisons, Third Edition, editors Doull, John, Macmillan Publishing Company, New York, NY, 1986.
- Köpke, P., M. Hess, I. Schult, and E. P. Shettle, Global aerosol data set. Tech. Rep. 243, Max-Planck Institute, 44 pp, 1997
- Kotchenruther, R. A. and P. V. Hobbs, Humidification factors of aerosols from biomass burning in Brazil., *J. Geophys. Res.*, 103: 32081-32089, 1998.

- Kotchenruther, R. A., Hobbs, P. V., and Hegg, D. A.: Humidification factors for atmospheric aerosol off the mid-Atlantic coast of United States, *J. Geophys. Res.*, 104(D2), 2239–2252, 1999.
- Künzli N, R Kaiser, S Medina, et al., Public-health impact of outdoor and traffic-related air pollution: a European assessment, *Lancet*, 356(9232), p 795-801, 2000.
- Lee and Fernando, The U.S.-Mexican border environment: Air Quality Issues along the U.S.-Mexican Border, Chapitre II : Planetary Boundary Layer Structure in the Paso del Norte Airshed: A Numerical Study, Edited by Alan Sweedler, A Collection of SCERP's Air Research, Monograph Series n°6, San Diego State University Press, 2003.
- Legrand M., J. J. Bertrand, M. Desbois, L. Ménénger, and Y. Fouquart, The potential of infrared satellite data for the retrieval of Saharan-dust optical depth over Africa, *J. Appl. Meteor.*, 28, p 309-318, 1989.
- Lenoble, J., and Brogniez C., A comparative review of radiation aerosol models, *Beitr. Phys. Atmos.*, 57, p 1-20, 1984.
- Lenoble, J., Atmospheric radiative transfer , A. Deepak Publishing, Hampton, 532 pages, 1993.
- Léon, J-F., Evaluation de l'impact radiatif des aérosols d'origine anthropique à l'échelle régionale grâce à une synergie instrumentale entre télédétection et mesures in-situ, Thèse de l'Université Paris 7, Paris, 2000.
- Levy, R. C., L. A. Remer, S. Mattoo, E. F. Vermote, and Y. J. Kaufman, Second-generation operational algorithm: Retrieval of aerosol properties over land from inversion of Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer spectral reflectance, *J. Geophys. Res.*, 112, D13211, doi:10.1029/2006JD007811, 2007.
- Li C., Lau, A. K., Mao, J., and Chu, D. A.: Retrieval, validation, and application of the 1-Km aerosol optical depth From MODIS measurements over Hong Kong, *EEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, 43(11), 2650–2658, 2005.
- Liousse C., H. Cachier, and S.G. Jennings, Optical and thermal measurements of black carbon content in different environments : Variation of specific attenuation cross-section, σ , *Atmos. Environ.*, 27A, p 1203-1211, 1993.
- Liousse, C., Devaux, C., Dulac, F., and Cachier, H.: Aging of savanna biomass burning aerosols: consequences on their optical properties, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 22, 1–17, 1995.
- Liousse, C. H., Penner, J.E., Chuang, C., Walton, J.J., Eddleman, H. Cachier, A global three-dimensional model study of carbonaceous aerosols, *J. of Geophys. Res.*, 101, p 19411-19432, 1996.
- Liu, Y., and co-authors. Improvements to surface flux computations in a non-local-mixing pbl scheme, and refinements to urban processes in the Noah land-surface model with the

- NCAR/ATEC real-time FDDA and forecast system. 16th Conference on Numerical Weather Prediction, Seattle, Washington. January 2004.
- Liu, L., A. A. Lacis, B. E. Carlson, M. I. Mishchenko, and B. Cairns, Assessing Goddard Institute for Space Studies ModelE aerosol climatology using satellite and ground-based measurements: A comparison study, *J. Geophys. Res.*, 111, D20212, doi:10.1029/2006JD007334, 2006.
- Lohmann, U., and J. Feichter, Global indirect aerosol effects: A review, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, p 715–737, 2005.
- Mallet, M., J.-C. Roger, et al., Microphysical and optical properties of aerosol particles in urban zone during ESCOMPTE, *Atmos. Environ.* 69: 73-97, 2003.
- Marley, N.A., S.G. Gaffney, J.C. Baird, C.A. Blazer, P.J. Drayton, and J.E. Frederick, An empirical method for the determination of the complex refractive index of size-fractionated atmospheric aerosols for radiative transfer calculations, *Aerosol Sci. Technol.*, 34, p 535-549, 2001.
- Measures R. M., *Laser Remote Sensing: Fundamentals and Applications*. Wiley & Sons, New York, 217 pages, 1984.
- Medina S., E. Boldo, M. Saklad, E. M. Niciu, M. Krzyzanowski, F. Frank, K. Cambra, H. G. Muecke, B. Zorilla, R. Atkinson, A. Le Tertre, B. Forsberg and the contribution members of the APHEIS group. *APHEIS Health Impact Assessment of Air Pollution and Communication Strategy*. Third year report. Institut de Veille Sanitaire, Saint-Maurice, 232 pages, (<http://www.apheis.net/vfbisnvsApheis.pdf>), 2005.
- Mie, G., Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen, *Ann. Geophys.*, 25, p 377-445, 1908.
- Monahan E.C., D. E. Spiel, and K.I. Davidson, A model of marine aerosol generation via whitecaps and wave disruption, in *Oceanic Whitecaps*, edited by Monahan E.C. and Niocaill G. M., p 167-174, D. Reidel, Norwell, Mass, 1986.
- Muir, D., The suitability of the tapered element oscillating microbalance (TEOMs) for PM10 monitoring in Europe. The use of PM10 data as measured by TEOM for compliance with the European Air Quality Standard, *Atmos. Environ.*, 34, p 3209-3212, 2000.
- Nadal, F., and F. M. Bréon, Parameterization of surface polarized reflectance derived from POLDER spaceborne measurements, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, 37, 1709-1718, 1999.
- Nemmar A., P. H. Hoet, D. Dinsdale, J. Vermynen, M. F. Hoylaerts, B. Nemery, Diesel exhaust particles in lung acutely enhance experimental peripheral thrombosis, *Circulation*, 107, p 1202-1208, 2003.
- O'Neill N. T., O. Dubovik, and T. F. Eck, "Modified Ångström Exponent for the Characterization of Submicrometer Aerosols," *Appl. Opt.*, 40, 2368-2375, 2001.

- O'Neill, N. T., T. F. Eck, A. Smirnov, B. N. Holben, and S. Thulasiraman, Spectral discrimination of coarse and fine mode optical depth, *J. Geophys. Res.*, 108(D17), 4559, doi:10.1029/2002JD002975, 2003.
- Patasnick, H., Rupprecht, E.G., Continuous PM-10 measurement using the tapered element oscillating microbalance, *J Air Waste Manage Assoc.*, 41, p 1079-1083, 1991.
- Pope, C. A., Burnett, R., Thun, M. J., Calle, E. E., Krewski, D., Ito, K. and Thurston, G. D., Lung Cancer, Cardiopulmonary Mortality and Long-term Exposure to Fine Particulate Air Pollution. *Journal of the American Medical Association* 287(9), p.1132-1141, 2002.
- Putaud, J.-P., van Dingenen, R., Baltensperger, U., Brüggemann, E., Charron, A., Facchini, M.C., Decesari, S., Fuzzi, S., Gehrig, R., Hansson, H.-C., Harrison, R.M., Jones, A.M., Laj, P., Lorbeer, G., Maenhunt, W., Mihalopoulos, N., Müller, K., Palmgren, F., Querol, X., Rodriguez, S., Schneider, J., Spindler, G., ten Brink, H., Tunved, P., Tørseth, K., Wehner, B., Weingartner, E., Wiedensohler, A., Wahlin, P., Raes, F., A European aerosol phenomenology. EUR 20411 EN. Joint Research Centre, European Commission, Ispra, Italy, 2003.
- Putaud, J.-P., et al., A European aerosol phenomenology 2: chemical characteristics of particulate matter at kerbside, urban, rural and background sites in Europe. *Atmos. Environ.*, this issue, doi:10.1016/j.atmosenv.2004.01.041, 2004.
- Ramachandran S., PM_{2.5} mass concentrations in comparison with aerosol optical depths over the Arabian Sea and Indian Ocean during winter monsoon, *Atmos. Environ.*, 39(10), p. 1879-1890, 2005.
- Ramaswamy, V., O. Boucher, J. Haigh, D. Hauglustaine, J. Haywood, G. Myhre, T. Nakajima, G.Y. Shi, S. Solomon, Radiative forcing of climate change. In: *Climate Change 2001: The Scientific Basis. Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [Houghton, J.T., et al. (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, p 349–416, 2001.
- Randriamiarisoa, H., Chazette, P., Couvert, P., Sanak, J., and M'égie, G.: Relative humidity impact on aerosol parameters in a Paris suburban area, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 1389–1407, 2006, <http://www.atmos-chem-phys.net/6/1389/2006/>.
- Raut, J.-C. and Chazette, P.: Retrieval of aerosol complex refractive index from a synergy between lidar, sunphotometer and in situ measurements during LISAIR experiment, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 2797-2815, 2007.
- Rayleigh, L., On the transmission of light through an atmosphere containing many small particles in suspension, and on the origin of the blue of the sky, *Phil. Mag.* 47, p 375-384, 1889.
- Reid, J. S., P. V. Hobbs, et al., Physical, chemical, and optical properties of regional hazes dominated by smoke in Brazil, *J. Geophys. Res.*, **103**, p 32059-32080, 1998.

- Remer, L. A., Y. J. Kaufman, D. Tanré, S. Matto, D. A. Chu, J. V. Martins, R.R. Li, C. Ichoku, R.C. Levy, R.G. Kleidman, T. F. Eck, E. Vermote, and B. N. Holben, The MODIS Aerosol Algorithm, Products and validation, *J. Atmos. Sci.*, 62, 947-973, 2005.
- Resch, F. and G. M. Afeti, Submicron film drop production by bubbles in seawater, *J. Geophys. Res.*, 97, C3, p 3679-3683, 1992.
- Ross, J. L., Hobbs, P. V., and Holben, B.: Radiative characteristics of regional hazes dominated by smoke from biomass burning in Brazil: Closure tests and direct radiative forcing, *J. Geophys. Res.*, 103(D24), 31 925–31 941, 1998.
- Salomonson, V. V., W. L. Barnes, P. W. Maymon, H. E. Montgomery, and H. Ostrow, MODIS : Advanced Facility Instrument for studies of the Earth as a System, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, 27, p 145-153, 1989.
- Sassen, K, The polarization lidar technique for cloud research: A review and current assessment. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 72, 1848-1866, 1991.
- Seigneur, C., Current status of air quality models for particulate matter. *Journal of the Air and Waste Management Association*, 51, 1508-1521, 2001.
- Seinfeld J. H. and S. N. Pandis, Atmospheric Chemistry and Physics, from air pollution to climate change, Ed : JohnWiley and Sons, New York, Wiley-intersciences, 1326 pages, 1998.
- Schmidt, H., Derognat, C., Vautard, R., Beekmann, M., A comparison of simulated and observed ozone mixing ratios for the summer of 1998 in Western Europe, *Atmos. Environ.*, 35, 6277–6297, 2001.
- Schulz, M., et al., Radiative forcing by aerosols as derived from the AeroCom present-day and pre-industrial simulations, *Atmos. Chem. Phys. Disc.*, 6, 5095– 5136, 2006.
- Schutz, B. E., H. J. Zwally, C. A. Shuman, D. Hancock, and J. P. DiMarzio, Overview of the ICESat Mission, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L21S01, doi : 10.1029/2005GL024009, 2005.
- Sloane, C. S. Optical properties of aerosols of mixed composition, *Atmos. Environ.* 18, p 871-878, 1984.
- Smirnov, A., et al., Investigation of aerosol optical thickness and in situ ground-based dust concentrations over Barbados, *Geophys. Res. Lett.*, 27, p 1643-1646, 2000.
- Smirnov, A., B.N. Holben, T.F. Eck, I. Slutsker, B. Chatenet, and R.T. Pinker, Diurnal variability of aerosol optical depth observed at AERONET (Aerosol Robotic Network) sites, *Geophys. Res. Lett.*, 29 (23), 2115, doi:10.1029/2002GL016305, 2002.
- Sorteberg A., Berge E., et Eastwood S., Results from high resolution operational meteorological forecasts in complex terrain during wintertime inversions, Tenth Penn State/NCAR MM5 Users' Workshop Mesa Laboratory, NCAR, June 21-23, 2000.

- Spinhirne, J. D., S. P. Palm, W. D. Hart, D. L. Hlavka, and E. J. Welton, Cloud and aerosol measurements from GLAS : Overview and initial results, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L22S03, doi : 10.1029/2005GL023507, 2005.
- Steiner A.L and W.L. Chameides, Aerosol-induced thermal effect increase modeled terrestrial photosynthesis and transpiration, *Tellus*, 57B, p 404-411, 2005.
- Stull R.B., An introduction to boundary layer meteorology, Ed. Springer, ISBN : 978-90-277-2769-5, 680 pages, 1988.
- Takemura, T., H. Okamoto, Y. Maruyama, A. Numaguti, A. Higurashi, and T. Nakajima, Global three-dimensional simulation of aerosol optical thickness distribution of various origins. *J. Geophys. Res.*, 105, 17 853–17 873, 2000.
- Tanré D., P.Y. Deschamps, C. Devaux, and M. Herman, Estimation of the Saharan aerosol optical thickness from blurring effect in Thematic Mapper data, *J. Geophys. Res.*, 93, p 15955-15964, 1988a.
- Tegen I., and I. Fung, Contribution to the atmospheric mineral aerosol load from land surface modification, *J. Geophys. Res.*, 100, p 18707-18726, 1995.
- Tegen, I. , P. Hollrig, M. Chin, I. Fung, D. Jacob, and J. Penner, Contribution of different aerosol species to the global aerosol extinction optical thickness: Estimates from model results. *J. Geophys. Res.*, 102, 23 895–23 915, 1997.
- Twomey S.A., The influence of pollution on the shortwave albedo of clouds. *J. Atmos. Sci.*, 34, p 1149–1152, 1977.
- Tyson P., E. Odada, R. Schultze, C. Vogel, Regional change linkages: Southern Africa. In : Global-Regional Linkages in the Earth System, *IGBP Series*, p 3-73, 2002.
- Van Dingenen, et al., A European aerosol phenomenology--1: physical characteristics of particulate matter at kerbside, urban, rural and background sites in Europe, *Atmos. Environ.*, doi:10.1016/j.atmosenv.2004.01.040, 38 (16), p. 2561-2577, 2004.
- Van de Hulst, H. C., Light scattering by small particles, John Wiley, New York, 470 pages, 1957.
- Van Loon M., Model intercomparison in the framework of the review of the unified EMEP model. Technical report TNO-MEP R2004/282, Apeldoorn, The Netherlands, 2004.
- Vaughan M., S. Young, D. Winker, K. Powell, A. Omar, Z. Liu, Y. Hu and C. Hostetler, Fully automated analysis of space-based lidar data: an overview of the CALIPSO retrieval algorithms and data products, *Laser Radar Techniques for Atmospheric Sensing*, edited by Upendra N. Singh, Proceedings of SPIE Vol. 5575, SPIE, Bellingham, WA, doi: 10.1117/12.572024, 2004.
- Vautard, R., Martin, D., Beekmann, M., Drobinski, P., Friedrich, R., Jaubertie, A., Kley, D., Lattuati, M., Moral, P., Neininger, B., Theloke, J., Paris emission inventory diagnostics

- from ESQUIF airborne measurements and a chemistry transport model. *J. Geophys. Res.*, 108 (D17), doi: 10.1029/2002JD002797, 2003.
- Vautard, R., Bessagnet, B., Chin, M., and Menut, L.: On the contribution of natural Aeolian sources to particulate matter concentrations in Europe: Testing hypotheses with a modelling approach, *Atmos. Environ.*, 39(18), 3291–3303, 2005.
- Vermeulen A., Devaux C., and Herman M., Retrieval of the scattering and microphysical properties of the aerosols from ground-based optical measurements including polarization, I. Method, *Appl. Opt.*, 39(33), p 6207-6220, 2000.
- Vermote E., D. Tanré, J. L. Deuzé, M. Herman and J. J. Morcrette, Second simulation of the satellite signal in the solar spectrum (6S), User Guide Version 0, 1994.
- Vestreng, V., Review and revision of emission data reported to CLRTAP, *EMEP Status Report*, July 2003.
- Von Hoyningen-Huene, W., Schmidt, T., Chan, A.K., Heintzenberg, J., Neusuess, C., Climate relevant aerosol parameters of South-East-Asian forest fire haze. *J. Aerosol Sci.* 29, p. 1259– 1260, 1998.
- Wang, J., and S.A. Christopher, Intercomparison between satellite-derived aerosol optical thickness and PM_{2.5} mass: Implications for air quality studies, *Geophys. Res. Lett.*, 30 (21), 2095, doi:10.1029/2003GL018174, 2003.
- Waquet, F., Apport de l'information multispectrale (0.49-2.2 μm) et polarisée pour la caractérisation des aérosols, Thèse de l'Université des Sciences et Technologies de Lille, Laboratoire d'Optique Atmosphérique, Villeneuve d'Ascq, 221 pages, 2005.
- Wilson, R., Spengler, J.D., *Particles in Our Air: Concentrations and Health Effects. Harvard University Press, Cambridge, MA, 1996.*
- Winker, D. M., R. Couch, and M. P. McCormick: An overview of LITE: NASA's Lidar Inspace Technology Experiment, *Proc. IEEE*, 84, p 164–180, 1996.

Acronymes

AASQA :	Associations Agréées pour la Surveillance de la Qualité de l'Air
ADEME :	Agence De l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie
ADEOS :	Nom de plateforme satellitaire
AERONET :	AErosol RObotic NETwork
AOT :	Aerosol Optical Thickness, épaisseur optique en aérosol
APHEIS :	Air Pollution and Health : European Information System
AQC :	Air Quality Category
AQI :	Air Quality Index
AQUA :	Nom de plateforme satellitaire.
A-Train :	Afternoon Train
BC :	Black Carbon
BDQA :	Banque De la Qualité de l'Air
CALIOP :	Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization
CALIPSO :	Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation
CHR :	Conditions à Hauts Risques
CLA :	Couche Limite Atmosphérique
COV :	Composés Organiques Volatiles
CQA :	Catégories de qualité de l'air
CR* :	Conditions à risques pour certains groupes de personnes
CR :	Conditions à risques
EMEP :	Co-operative program for monitoring and evaluation of the long-range transmissions of air pollutants in Europe
EPA :	Environment Protection Agency
GADS:	Global Aerosol Data Set
GISS:	Goddard Institute for Space Studies
GLAS :	Geoscience Laser Altimeter System
GMAO :	Global Modeling and Assimilation Office (NASA)
GOCART:	Goddard Global Ozone Chemistry Aerosol Radiation and Transport

GSFC:	Goddard Space Flight Center
IQP :	Indice de Qualité sur l'inversion des réflectances Polarisées
IQV :	Indice de Qualité sur les conditions de géométrie de Visée
LAURE :	Loi sur l'Air et l'Utilisation Rationnelle de l'Energie
LIDAR :	Light Detection and Ranging
LITE :	Lidar In-space Technology Experiment
LISAIR :	Lidar pour la surveillance de l' AIR
LMD :	Laboratoire de Météorologie Dynamique
LOA :	Laboratoire d'Optique Atmosphérique
LOSU :	Level of Scientific Understanding
LUT:	Look Up Table
MEDD :	Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable
MISR :	Multiangle Imaging Spectroradiometer
MLA :	Mercury Laser Altimeter
MODIS :	MODerate resolution Imaging Spectroradiometer, radiomètre embarqué sur les plateformes AQUA et TERRA
MOLA :	Mars Orbital Laser Altimeter
NAAQS :	National Ambient Air Quality Standards
NCEP :	National Center for Environmental Prediction
NDVI :	Normalized Difference Vegetation Index
OC :	Organic Carbon
OCO :	Orbiting Carbon Observatory
PARASOL :	Polarisation et Anisotropie des Réflectances au sommet de l'Atmosphère, couplées avec un Satellite d'Observation emportant un Lidar
PHOTONS :	PHOTométrie pour le Traitement Opérationnel de Normalisation Satellitaire
PMx ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) :	Particulate Matter, concentration massique des particules de diamètre aérodynamique inférieur à x μm .
POLDER :	Polarization and Directionality of the Earth's Reflectances, radiomètre embarqué sur la plateforme ADEOS-1, ADEOS-2 et PARASOL
POM:	Particulate Organic Matter
PPM:	Primary Particulate Matter
PREV' AIR:	Plateforme nationale de PREVision de la Qualité de l' AIR
RCFM:	ReConstructed Fine Mass

SCAR-B :	Smoke, Clouds And Radiation-Brazil
SeaWifs :	Sea-viewing Wide field-of-view Sensor
SLA :	Shuttle Laser Altimeter
SOA :	Secondary Organic Aerosol
SS:	Sea salt
SSA :	Single Scatering Albedo, Albédo de simple diffusion
TEOM :	Tapered Element Oscillating Microbalance
TERRA :	Nom de plateforme satellitaire
TL :	Troposphère Libre
TSP :	Total Suspended Particules, charge totale en aérosols
WS :	Water Soluble