



Restitution de l'indice de réfraction complexe et de la granulométrie d'une population de particules sphériques à partir de l'indicatrice de diffusion de la lumière

Christophe Verhaege

► To cite this version:

Christophe Verhaege. Restitution de l'indice de réfraction complexe et de la granulométrie d'une population de particules sphériques à partir de l'indicatrice de diffusion de la lumière. Océan, Atmosphère. Université Blaise Pascal - Clermont-Ferrand II, 2008. Français. NNT : . tel-00730944

HAL Id: tel-00730944

<https://theses.hal.science/tel-00730944>

Submitted on 11 Sep 2012

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

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

N° D'ORDRE : D. U. 1862

UNIVERSITE BLAISE PASCAL
UFR Sciences et Technologies
ECOLE DOCTORALE DES SCIENCES FONDAMENTALES
N° 1862

THESE

Présentée pour obtenir le grade de
DOCTEUR D'UNIVERSITE
Spécialité : Physique de l'Atmosphère

par
Christophe VERHAEGE

Ingénieur ENSMA (Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et d'Aérotechnique)

Restitution de l'indice de réfraction complexe et de la granulométrie d'une population de particules sphériques à partir de l'indicatrice de diffusion de la lumière

Soutenue publiquement le 16 octobre 2008, devant la commission d'examen :

Wolfram WOBROCK	Président du jury
Hélène CHEPFER	Rapporteur
Oleg DUBOVIK	Rapporteur
Pascal PERSONNE	Directeur de thèse
Valery SHCHERBAKOV	Directeur de thèse
Gérard BROGNIEZ	Examineur

Résumé

Un néphélomètre polaire de laboratoire a été développé afin de mesurer la diffusion d'une lumière non polarisée dans différentes directions par une population de particules. Cet appareil mesure la lumière diffusée suivant deux directions de polarisation pour des angles compris entre 10 et 169°. Pour des particules sphériques homogènes, les concentrations minimales détectables ont été évaluées en fonction du diamètre de celles-ci. Lorsque les concentrations sont cinq fois supérieures à ces valeurs seuils, l'incertitude de mesure a été chiffrée à environ 5%.

Une méthode d'inversion de ce type de données utilisant une « look-up table » a été développée afin de restituer simultanément l'indice de réfraction complexe et la granulométrie des particules éclairées, dans le cas où ces particules sont sphériques et homogènes. Cette méthode a été testée sur une large gamme de valeurs d'indices complexes et de diamètres. Il est démontré que lorsque les particules sont faiblement absorbantes (partie imaginaire $< 10^{-4}$) seule la partie réelle peut être chiffrée. Si les particules sont fortement absorbantes seule la partie imaginaire est retrouvée. Entre ces deux cas limites la méthode restitue parfaitement l'indice de réfraction complexe et la granulométrie de ces particules.

Cette méthode a été utilisée avec des mesures réelles collectées en laboratoire et a montré de bonnes performances. Des mesures collectées en nuage avec un néphélomètre aéroporté ont aussi été traitées pour trois cas (deux en nuage et un en contrail). Ce traitement a permis de mettre en évidence que les particules des contrails ne sont pas des particules d'eau sphériques.

Mots clés : diffusion de la lumière ; polarisation ; aérosols ; problème inverse ; indice de réfraction complexe ; granulométrie

Version Anglaise - English Version

Retrieval of the complex refractive index and the size distribution of an ensemble of spherical particles from light scattering data

A laboratory polar nephelometer was developed in order to measure the light scattered by an ensemble of particles from nonpolarized light. The instrument measures the scattered light along two directions of polarization for the scattering angles ranging from 10° to 169° . For homogeneous spherical particles, the detectable minimal concentrations were estimated with respect to the diameter of particles. When the concentrations are five times higher than these threshold values, the uncertainty of measurement was quantified to be about 5%.

It was developed a method of inversion of nephelometer data in order to simultaneously retrieve the complex refractive index and the size distribution of particles. The method is based on the lookup-table approach, and particles are assumed to be homogeneous spheres. This method was tested on a broad range of values of the refractive index and particle diameters. It is shown that only the real part can be quantified for low absorbing particles (imaginary part $< 10^{-4}$). If the particles are strongly absorbing, only the imaginary part can be found. Otherwise, the method retrieves the complex index of refraction and the size distribution.

The method was applied to real laboratory data, and its good performance was confirmed. The data collected in cloud with an airborne nephelometer were also processed. Three cases were considered (two in cloud and one in contrail). It was shown that the particles of the contrails were not spherical water droplets.

Keywords: light scattering; polarization; aerosols; inverse problem; complex refractive index; size distribution

La thèse a été effectuée au sein Laboratoire de Météorologie Physique :

Laboratoire de Météorologie Physique
Université BLAISE PASCAL
24, Avenue des Landais
63177 AUBIÈRE Cedex (France)

Remerciement

Merci aux co-écrivains, Pascal Personne, Valery Shcherbakov, Jean-François Gayet, Jean-Marc André, Daniel Daugeron, Olivier Jourdan, grâce auxquels j'ai pu plagier des parties de leur écrit pour ma thèse.

Je tiens à remercier Hélène Chepfer du Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMD) et Oleg Dubovik du Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA) d'avoir accepté d'être rapporteurs. Je remercie également Gérard Brogniez Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA) et Wolfram Wobrock d'avoir participé au jury de la thèse.

Je remercie Nadine Chaumerliac et Wolfram Wobrock, ancienne directrice et directeur du Laboratoire de Météorologie Physique, pour m'avoir laissé intégrer leur laboratoire pendant ces trois années. Je n'oublie pas Bernard Guillemet, directeur de l'IUT de Montluçon.

Merci à Jean-François Costecèque qui a mis en place le système de cluster sur les PC de GTE. Merci aux chefs de « dépt » GTE Denis Cajal et Pierre Hormière qui m'ont laissé user des postes informatiques de GTE ainsi que l'atelier, sans oublier leur accueil.

Merci à Daniel Robin pour tous les petits travaux effectués pour le néphélomètre ainsi qu'à Myriam Moissaing.

Merci aux anciens du Laboratoire d'Electrotechnique de Montluçon, Corinne Brdys, Alain Laurent, Francis Gary, Pierre Lebars, Denis Cajal, Jean-Pierre Toumazet pour leur bonne humeur et leur accueil pour certains midis sans oublier le prêt gracieux de leur quadricoeur que j'ai bien fait chauffer. Je n'oublie pas Juan Diaz qui a réalisé de belles soudures sans rechigner.

Mention spéciale à Jérôme Gomez qui m'a supporté deux fois (en tout trois semaines) pour aller faire des expériences de mesures de poussières minérales à Karlsruhe.

Je remercie tout le personnel de l'IUT de Montluçon, du Laboratoire de Météorologie Physique et de l'OPGC pour leur accueil et leur gentillesse. Grâce à eux, ma thèse s'est déroulée dans de bonnes conditions.

Je remercie Nadia Personne qui a relu la thèse et a fourni des commentaires d'un œil neuf et d'une personne non-spécialiste.

Merci à mes professeurs de physique (collège, lycée) de ne pas m'avoir écœuré de la physique. Je remercie également les enseignants du DUT GTE de Montluçon et ceux de l'ENSMA de m'avoir fourni un bon niveau en physique qui m'a permis d'arriver à la thèse sans trop de lacunes.

Je remercie ma famille et surtout mes parents de m'avoir laissé continuer mes études aussi longtemps sans avoir essayé de m'en dissuader. Je n'oublie pas Carole, qui a été ma première élève en plus d'être ma sœur. C'est grâce à elle que je suis retourné à l'IUT pour faire le stage avec Pascal et par la suite fait cette thèse.

Je remercie le Conseil Général de l'Allier pour m'avoir soutenu financièrement pendant ces trois années.

Je prie de m'excuser auprès de toutes les personnes que j'ai oubliées et il doit en avoir.

Table des matières

RESUME	3
REMERCIEMENT	5
TABLE DES MATIERES	7
SYMBOLES	11
TABLE DES TABLEAUX	15
TABLE DES ILLUSTRATIONS	17
INTRODUCTION	21
1 LES AEROSOLS	23
1.1 Qui sont-ils ?	23
1.1.1 Taille	24
1.1.2 Forme	25
1.1.3 Origines	26
1.2 Leur rôle	28
1.3 Bilan radiatif terrestre	29
1.3.1 Atmosphère plan parallèle	32
1.3.2 Bilan d'énergie dans l'atmosphère	34
1.4 Conclusion	35
2 PROPRIETES OPTIQUES ET DIFFUSION	36
2.1 Les paramètres de la diffusion de la lumière	36
2.1.1 Définition des sections efficaces d'extinction, de diffusion et d'absorption	37
2.1.1.1 Section efficace d'extinction σ_{ext}	37
2.1.1.2 Section efficace de diffusion σ_{diff}	38
2.1.1.3 Section efficace d'absorption σ_{abs}	38
2.1.2 Facteur d'efficacité	38
2.1.3 Coefficient linéique d'extinction, de diffusion, d'absorption	39
2.1.4 Albédo de diffusion simple	39
2.1.5 Puissance et section efficace de diffusion dans un angle solide élémentaire	39
2.1.6 Fonction de phase de diffusion	41
2.1.7 Facteur d'asymétrie	41
2.2 Nature de la lumière	42
2.2.1 Aspect vibratoire de la lumière	42
2.2.2 Aspect quantique de la lumière	44
2.2.3 Polarisation de la lumière	46

Table des matières

2.2.3.1	Représentation de la polarisation de la lumière	46
2.2.3.2	Les paramètres de Stokes	47
2.2.3.3	La matrice des amplitudes	48
2.2.3.4	La matrice de diffusion	49
2.2.3.5	Degré de polarisation linéaire	50
2.2.4	Diffraction, réfraction et réflexion	50
2.2.4.1	Rôle de la diffraction	51
2.2.4.2	Rôle de l'indice de réfraction (complexe)	51
2.3	Diffusion de la lumière par une goutte	52
2.3.1	Paramètre de taille	52
2.3.2	La théorie de Rayleigh	52
2.3.3	Théorie de l'optique géométrique	54
2.3.4	Théorie de Lorenz - Mie	54
2.3.5	Particules non-sphériques	55
2.4	Diffusion par un spectre de gouttes sphériques	56
2.4.1	Calcul de la courbe de diffusion avec un spectre	56
2.4.2	Définition des paramètres microphysiques	57
2.4.3	Diffusion par différentes distributions de tailles de gouttes	58
2.4.4	Différents indices de réfraction	61
3	LES NEPHELOMETRES	65
3.1	Les différents appareils de mesures des aérosols	65
3.1.1	Mesures en masse	66
3.1.1.1	Collection sur filtre	67
3.1.1.2	Méthode de la jauge β	67
3.1.1.3	Microbalance oscillante (TEOM)	67
3.1.2	Méthodes aérodynamiques	68
3.1.3	Méthodes électriques	68
3.1.4	Méthodes optiques autres que les néphélomètres	69
3.1.4.1	Le compteur optique	69
3.1.4.2	Le lidar	69
3.1.4.3	Mesure par l'extinction	69
3.1.4.4	Mesure par photométrie solaire	70
3.2	Les différents types de néphélomètres	70
3.2.1	Néphélomètre intégré	70
3.2.2	Néphélomètre polaire	71
3.2.3	Néphélomètre polaire mesurant la polarisation de la lumière diffusée	73
3.3	Le néphélomètre polaire à double polarisation de laboratoire	73
3.3.1	Principe de l'appareil	73
3.3.1.1	Caractéristiques physiques	74
3.3.1.2	Mode de fonctionnement	77
3.3.2	Incertitudes de mesure	77
3.3.2.1	Incertitude angulaire	78
3.3.2.2	Incertitude sur l'intensité diffusée	78
3.3.3	Concentration minimale	83
3.3.4	Limite de différenciation	85
3.3.5	Traitement de données brutes	86
3.3.6	Exemples de mesures	88
3.3.7	Améliorations possibles	91
4	INVERSION	93
4.1	Problématique	93

4.1.1	Paramètres recherchés	93
4.1.2	Mise en place des équations	93
4.2	Tests de sensibilité	94
4.2.1	Méthodologie	95
4.2.2	Résultats	98
4.3	Mise en place d'une méthode d'inversion	105
4.3.1	Inversion pour retrouver le spectre à indice de réfraction fixé	105
4.3.2	Méthode de la table de « Look-up » pour la restitution simultanée de la distribution et de l'indice de réfraction	107
4.3.3	Vérification du bon fonctionnement de la méthode d'inversion complète	109
4.3.4	Etude de l'incertitude des paramètres restitués	113
4.3.4.1	Méthodologie	113
4.3.4.2	Résultats	114
4.4	Conclusion	116
5	INVERSION DE DONNEES EXPERIMENTALES	117
5.1	Inversion des données du D2PN	117
5.2	Inversion des données du néphélomètre aéroporté	120
5.3	Conclusion	125
	CONCLUSION	127
	BIBLIOGRAPHIE	129
	ANNEXE A : PETIT RAPPEL HISTORIQUE SUR LA THEORIE DE MIE	135
	ANNEXE B : FACTEUR DE CONVERSION TENSION - $k^2\varphi$	139
	ANNEXE C : TABLEAUX D'INCERTITUDE DE LA METHODE D'INVERSION	141
	ANNEXE D : ARTICLE PUBLIE AU JQSRT	145

Symboles

Symbole	Dénomination	Unité S.I.
α	Paramètre de taille	-
β_{abs}	Coefficient linéique d'absorption	m^{-1}
β_{diff}	Coefficient linéique de diffusion	m^{-1}
β_{ext}	Coefficient linéique d'extinction	m^{-1}
γ	Chapitre 2 : Angle entre le grand axe de l'ellipse et le champ électrique parallèle	rad
γ_1, γ_2	Chapitre 4 : Paramètres de régularisation	-
δ	Chapitre 1 : Epaisseur optique	-
δ	Chapitre 4 : Symbole de Kronecker	-
ε	Ecart type Gaussien du bruit	-
ε_0	Chapitre 2 : Permittivité du vide	F/m
η	Chapitre 1 : Viscosité dynamique	Pa.s
η	Chapitre 2 : Excentricité de l'ellipse	-
θ	Angle polaire ou angle de diffusion	rad
λ	Longueur d'onde	m
μ_0	Perméabilité du vide	H/m
ξ	Ecart-type expérimental	-
π_n, τ_n	Polynôme de Legendre de degré n	-
π_0	Albédo de diffusion simple	-
ρ	Masse volumique	kg/m^3
σ	Section efficace différentiel	m^2/sr
σ_{abs}	Section efficace d'absorption	m^2/sr
σ_{diff}	Section efficace de diffusion	m^2/sr
σ_{ext}	Section efficace d'extinction	m^2/sr
υ	Ecart-type ou incertitude expérimentale relatif	-
φ	Section efficace volumique	$\text{m}^{-1}.\text{sr}^{-1}$
φ_0	Chapitre 2 : Facteur de phase	$\text{m}^{-1}.\text{sr}^{-1}$
$\boldsymbol{\varphi}$	Vecteur de la section volumique différentielle	$\text{m}^{-1}.\text{sr}^{-1}$
$\boldsymbol{\varphi}^*$	Vecteur section volumique efficace mesurée	$\text{m}^{-1}.\text{sr}^{-1}$
$\boldsymbol{\varphi}_{\text{inv}}$	Vecteur section efficace volumique après inversion	$\text{m}^{-1}.\text{sr}^{-1}$
ϕ	Angle azimutal	rad
Φ	Flux de photons	s^{-1}
χ	Partie imaginaire de l'indice de réfraction	-
ω	Pulsation	s^{-1}
Ω	Angle solide	sr
$\mathbf{\Omega}$	Matrice de lissage	-
$\mathbf{a}$	Chapitre 2 : Vecteur de l'ellipse de polarisation	V/m
$\mathbf{a}$	Chapitre 4 : Vecteur la distribution volumique	
$\mathbf{a}^0$	Vecteur de la distribution initiale	
a_n, b_n	Coefficient complexe de diffusion	-
b	Biais de mesure	V
$\mathbf{b}$	Chapitre 2 : Vecteur de l'ellipse de polarisation	V/m

Symbole	Dénomination	Unité S.I.
B(T)	Loi de Planck	
B	Matrice de Jacobi des dérivés premières	-
c	Vitesse de la lumière	m/s
C	Concentration	
C _{min}	Concentration minimale	
C _N	Concentration volumique en nombre	m ⁻³
C _V	Concentration volumique en volume	m ³ /m ³
C	Matrice de covariance des erreurs de restitution	-
dΩ	Élément d'angle solide	sr
dl	Élément de longueur	m
$\frac{dN(r)}{dr}$		
$\frac{dN(D)}{dD}$	Distribution en nombre	m ⁻³ .m ⁻¹
$\frac{dV(r)}{dr}$		
$\frac{dV(r)}{dr}$	Distribution en volume	m ³ /m ³ .m
d _{capt}	Diamètre de l'élément sensible du capteur	m
D	Diamètre de la particule	m
D03	Diamètre volumique médian	m
Det	Déterminant de C	-
D _L	Diamètre du faisceau laser	m
D _m	Diamètre moyen	m
D _{Stk}	Diamètre de Stokes	m
e	Ecart-type de la distribution	-
e _i	Variable aléatoire	-
E	Champs électrique	V/m
F	Facteur de conversion tension - section efficace volumique	m ⁻¹ .sr ⁻¹ .V ⁻¹
g	Chapitre 1 : Accélération de la gravité	m/s ²
g	Chapitre 2 : Facteur d'asymétrie	-
G	Sensibilité ou réponse en tension du capteur	V/W
h	Constante de Planck	J.s/m ²
H	Chapitre 2 : Champs magnétique	A/m
H	Chapitre 4 : Matrice de l'inversion	-
I	1 ^{er} paramètre de Stokes	W/(m ² .sr)
I _⊥	Intensité diffusée suivant la polarisation perpendiculaire	W/m ²
I _{//}	Intensité diffusée suivant la polarisation parallèle	W/m ²
I ₀	Intensité incidente	W/m ²
I	Matrice identité	-
J	Terme source	
k	Nombre d'onde	m ⁻¹
k	Vecteur d'onde	m ⁻¹
K	Matrice noyau	-
L	Chapitre 1 : Luminance	W/(m ² .m.sr)
L _{bras}	Longueur du bras	m
LWC	Contenu en eau liquide	kg/m ³
m	Indice de réfraction complexe	-

Symbole	Dénomination	Unité S.I.
n	Partie réelle de l'indice de réfraction	-
p	Fonction de phase de diffusion	-
$^{\circ}P$	Degré de polarisation	-
$\mathbf{P}$	Vecteur de Poynting	W
P	Puissance reçue	W
P_0	Puissance incidente	W
P_{abs}	Puissance absorbée	W
P_{diff}	Puissance diffusée	W
P_{ext}	Puissance d'extinction	W
P_L	Puissance du laser	W
P_{tra}	Puissance transmise	W
q	Numéro de l'itération	-
Q	2 ^{ème} paramètre de Stokes	W/(m ² .sr)
Q_{abs}	Facteur d'efficacité d'absorption	-
Q_{diff}	Facteur d'efficacité de diffusion	-
Q_{ext}	Facteur d'efficacité d'extinction	-
r	Rayon de la particule	m
r_v	Rayon médian	m
$\mathbf{r}$	Coordonnée spatiale	-
RMS	Valeur du Root Mean Square (écart quadratique moyen)	-
S_i	Elément de la matrice des amplitudes	-
S_{ij}	Elément de la matrice de diffusion	-
$\mathbf{S}$	Matrice des amplitudes	-
t	Temps	s
T	Tension du capteur	V
T_k	Tension capteur pour la k ^{ème} mesure	V
$T_{\perp}$	Tension du capteur mesurant la polarisation perpendiculaire	V
$T_{//}$	Tension du capteur mesurant la polarisation parallèle	V
U	3 ^{ème} paramètre de Stokes	W/(m ² .sr)
u	Ecart-type ou incertitude expérimentale	V
$\mathbf{U}$	Matrice de sensibilité	-
V	4 ^{ème} paramètre de Stokes	W/(m ² .sr)
V_{ch}	Vitesse de chute	m/s
$\mathcal{V}_{ech}$	Volume d'échantillonnage	m ³
$\mathbf{W}$	Matrice de covariance des erreurs de mesures	-
z	Côte verticale	m

Table des tableaux

Tableau 1-1 : Vitesse de chute pour des gouttes d'eau de différents diamètres	23
Tableau 1-2 : Flux d'émission de particules en Mt/an (1Mt = 10 ⁶ tonnes). Extrait du Delmas, 2005, d'après Andreae, 1997 et IPCC, 2001	27
Tableau 2-1 : Tableau des paramètres de Stokes pour des états de polarisations usuelles.	48
Tableau 3-1 : concentration minimale en nombre et en volume pour un spectre de largeur 1 et de diamètre volumique médian variable.	84
Tableau 4-1 : Compilation d'indices de réfraction complexe $m = n + i\chi$ de divers aérosols pour la longueur d'onde de 0.8 μm . Extrait de d'Almeida et al., 1991	97
Tableau 4-2 : Estimation de l'incertitude de restitution de la méthode d'inversion sur les mesures de diffusion totale du D2PN avec un bruit de mesure de 10% (angle de mesure de 19° à 160°). Les paramètres restitués sont : n l'indice réel, χ l'indice imaginaire, C_V concentration en volume, D_m diamètre moyen, D03 diamètre volumique médian.	115
Tableau 4-3 : Estimation de l'incertitude de restitution de la méthode d'inversion sur les mesures de diffusion suivant la polarisation parallèle du D2PN avec un bruit de mesure de 10% (angle de mesure de 10° à 160°). Les paramètres restitués sont : n l'indice réel, χ l'indice imaginaire, C_V concentration en volume, D_m diamètre moyen, D03 diamètre volumique médian.	115
Tableau 4-4 : : Estimation de l'incertitude de restitution de la méthode d'inversion sur les mesures de diffusion suivant la polarisation perpendiculaire du D2PN avec un bruit de mesure de 10% (angle de mesure de 19° à 169°). Les paramètres restitués sont : n l'indice réel, χ l'indice imaginaire, C_V concentration en volume, D_m diamètre moyen, D03 diamètre volumique médian.	115
Tableau 5-1 : Tableau récapitulatif des tests en aveugle de la méthode de restitution. DEHS : Di-Ethyl-Hexyl-Sebaçate est une huile transparente. 50% + 50% correspond à un mélange de 50% DEHS, 50% d'éthanol, 5% + 95%, mélange de 5 % DEHS et 95% d'éthanol.	119
Tableau 5-2 : Indice de réfraction et paramètres microphysiques (12 classes de rayon) issus de l'inversion des données du néphélomètre aéroporté et paramètres microphysiques du FSSP.	120

Table des illustrations

Figure 1-1 : La partie haute de cette figure montre les différentes particules associées à leur taille. La partie basse donne la longueur d'onde des rayonnements électromagnétiques. Sur la dernière partie, la largeur de la gamme des aérosols est fournie (d'après Hinds 1998).	24
Figure 1-2 : Diagramme montrant les différents mécanismes associés au nuage et leur relation avec les aérosols. Les petits points représentent les particules aérosols, les larges cercles les gouttes. Les traits droits représentent les flux solaires incident et réfléchi, les traits ondulés les radiations terrestres et les traits pointillés sont la pluie. CDNC : cloud droplet number concentration, CCN : cloud condensation nuclei, LWC : liquid water content. (d'après Haywood et Boucher, 2000)	29
Figure 1-3 : Résumé des différents composants constituant le forçage radiatif du climat. Tous ces forçages radiatifs sont le résultat d'un ou plusieurs facteurs. Ces valeurs sont les forçages en 2005 par rapport au début de l'ère industrielle (environ 1750). Les activités humaines ont causé des changements significatifs : gaz à longue durée de vie, ozone, albédo, vapeur d'eau et contrails. La seule cause naturelle est le changement de l'irradiation solaire. Les forçages positifs réchauffent le climat et les négatifs le refroidissent. Les lignes noires correspondent aux incertitudes. (d'après IPCC report IV, 2007)	30
Figure 1-4 : Détails des composantes des forçages radiatifs pour les émissions des principaux gaz et aérosols. Ces valeurs sont les différences entre l'année 2005 et 1750. (S) et (T) représentent respectivement les changements pour les espèces stratosphériques et troposphériques. (d'après IPCC report IV, 2007)	31
Figure 1-5 : Bilan d'énergie journalier dans l'atmosphère terrestre en W/m^2 pour une température de surface de $15^\circ C$. Les chiffres sont indicatifs, ils ne sont connus qu'à quelques W/m^2 près (extrait de Delmas, 2005).	34
Figure 2-1 : Schéma de l'extinction et de la diffusion de la lumière, interceptée par une population de particules ($P < P_0$)	36
Figure 2-2 : Système de coordonnées sphériques	40
Figure 2-3 : Une onde électromagnétique plane	43
Figure 2-4 : Etude pour le vecteur de Poynting	44
Figure 2-5 : Diagramme de l'ellipse de polarisation	47
Figure 2-6 : Effet de l'indice de réfraction	51
Figure 2-7 : Fonction de phase en coordonnées polaires pour de très petites particules (diffusion en Rayleigh)	53
Figure 2-8 : section volumique totale normalisée $k^2\varphi(\theta)$ en fonction de l'angle θ de diffusion et pour différents rayons du mode du spectre (indice de réfraction de $1,33+10^{-8}i$, longueur d'onde de 800 nm, $C_N=10^6 \text{ cm}^{-3}$, écart-type=1)	59
Figure 2-9 : section volumique totale normalisée $k^2\varphi(\theta)$ en fonction de l'angle θ de diffusion et pour différents rayons du mode du spectre et différentes polarisations (indice de réfraction de $1,33+10^{-8}i$, longueur d'onde de 800 nm, $C_N=10^6 \text{ cm}^{-3}$, écart-type=1)	60

Figure 2-10 : section volumique totale normalisée $k^2\varphi(\theta)$ en fonction de l'angle θ de diffusion et pour différentes largeurs du spectre (indice de réfraction de $1,33+10^{-8}i$, longueur d'onde de 800 nm, $C_N = 10^6 \text{ cm}^{-3}$, rayon médian=5 μm). _____	61
Figure 2-11 : section volumique totale normalisée $k^2\varphi(\theta)$ en fonction de l'angle θ de diffusion et pour différents indices imaginaires (indice de réfraction réel de 1,33, longueur d'onde de 800 nm, $C_N=10^6 \text{ cm}^{-3}$, rayon médian = 5 μm , écart-type=1) _____	62
Figure 2-12 : section volumique totale normalisée $k^2\varphi(\theta)$ en fonction de l'angle θ de diffusion et pour différents indices réels pour des gouttes faiblement absorbantes (indice de réfraction imaginaire de 10^{-8} , longueur d'onde de 800 nm, $C_N=10^6 \text{ cm}^{-3}$, rayon moyen = 5 μm , écart-type=1) _____	63
Figure 2-13 : section volumique totale normalisée $k^2\varphi(\theta)$ en fonction de l'angle θ de diffusion et pour différents indices réels dans le cas de particules fortement absorbantes (indice de réfraction imaginaire de 1, longueur d'onde de 800 nm, $C_N=10^6 \text{ cm}^{-3}$, rayon moyen = 5 μm , écart-type=1). _____	64
Figure 3-1 : Quantité et résolution de différents appareils de mesures d'aérosols (d'après McMurry, 2000) _____	66
Figure 3-2 : schéma de principe du néphélomètre intégré TSI 3568 _____	71
Figure 3-3 : Principe de mesure du néphélomètre aéroporté. _____	72
Figure 3-4 : Schéma de principe du néphélomètre de laboratoire D2PN. _____	74
Figure 3-5 : Vue éclatée du néphélomètre. Le bras tournant a été représenté dans deux positions. _____	75
Figure 3-6 : Schéma de principe du canon et de ses différents éléments. La première figure représente le cas où le capteur seul est utilisé, alors que la deuxième représente le cas où une lentille est insérée entre le volume de mesure et le capteur. _____	76
Figure 3-7 - Schéma de principe du fonctionnement du D2PN _____	77
Figure 3-8 : Définition de l'angle de diffusion θ _____	78
Figure 3-9 - Tension de sortie avec composante continue de l'ensemble capteur-amplificateur dans l'obscurité (gain 1000 - calibres 10mV/div et 1ms/div) _____	80
Figure 3-10 - Tension de sortie sans composante continue de l'ensemble capteur-amplificateur dans l'obscurité (gain 1000 - calibres 5mV/div et 1ms/div) _____	80
Figure 3-11 - Indicatrice de diffusion dont chaque point est une seule mesure. Les deux courbes ont été volontairement décalées. _____	81
Figure 3-12 - Indicatrice de diffusion : moyenne de 15 allers-retours soit 30 mesures. Les deux courbes ont été volontairement décalées. _____	82
Figure 3-13- Incertitude-type de type A relative de la moyenne des tensions en fonction du nombre de mesures. (Moyenne sur l'ensemble des angles de mesure) _____	83
Figure 3-14 : Evolution du coefficient d'asymétrie g d'une goutte en fonction de son rayon et de son indice pour une longueur d'onde de 0,8 μm . _____	86
Figure 3-15 : Indicatrice de diffusion normalisée pour des gouttes d'eau produite par un VOAG (Vibrating Orifice Aerosols Generator) (diamètre volumique médian d'environ 30 μm). _____	88

Figure 3-16 : Indicatrice de diffusion normalisée pour des gouttes d'eau produites par la chambre à brouillard de la Direction Départementale de l'Équipement (DDE) (diamètre volumique médian d'environ 10 μm).	89
Figure 3-17 : Indicatrice de diffusion normalisée pour des gouttes d'eau produite par un générateur bubbling de Pallas (diamètre volumique médian d'environ 2 μm).	89
Figure 3-18 : Intensité diffusée pour des gouttes d'eau (indice réel de 1,33) générées par un bubbling Pallas.	90
Figure 3-19 : Intensité diffusée pour des gouttes de DEHS (Di-Ethyl Hexyl Sebaçate, indice réel de 1,45, huile permettant la calibration des instruments) générées par un bubbling Pallas.	90
Figure 4-1 : Graphiques 3D du RMS en fonction des parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction. La partie de gauche correspond au test sans bruit de mesure et celle de droite avec un bruit de 10 %. Cas pour des particules faiblement absorbantes $m = 1.5 + 10^{-8}i$	99
Figure 4-2 : Graphiques 3D du RMS en fonction des parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction. La partie de gauche correspond au test sans bruit de mesure et celle de droite avec un bruit de 10 %. Cas pour des particules fortement absorbantes $m = 1.5 + 1i$	100
Figure 4-3 : Graphiques 3D du RMS en fonction des parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction. La partie de gauche correspond au test sans bruit de mesure et celle de droite avec un bruit de 10 %. Cas pour des particules d'indice $m = 1.5 + 10^{-4}i$	101
Figure 4-4 : Graphiques 3D du RMS en fonction des parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction. La partie de gauche correspond au test sans bruit de mesure et celle de droite avec un bruit de 10 %. Cas pour des particules d'indice $m = 1.5 + 10^{-3}i$	101
Figure 4-5 : Graphiques 3D du RMS en fonction des parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction. La partie de gauche correspond au test sans bruit de mesure et celle de droite avec un bruit de 10 %. Cas pour des particules d'indice $m = 1.5 + 10^{-2}i$	102
Figure 4-6 : Graphiques 3D du RMS en fonction des parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction. La partie de gauche correspond au test sans bruit de mesure et celle de droite avec un bruit de 10 %. Cas pour des particules d'indice $m = 1.5 + 10^{-1}i$	102
Figure 4-7 : Graphiques 3D du RMS en fonction de l'écart-type de la distribution et la partie réelle de l'indice de réfraction. La partie de gauche correspond au test sans bruit de mesure et celle de droite avec un bruit de 10 %. Cas pour des particules d'indice $m = 1.44 + 5.10^{-3}i$	103
Figure 4-8 : Graphiques 3D du RMS en fonction du rayon médian de la distribution et la partie réelle de l'indice de réfraction. La partie de gauche correspond au test sans bruit de mesure et celle de droite avec un bruit de 10 %. Cas pour des particules d'indice $m = 1.44 + 5.10^{-3}i$	103
Figure 4-9 : Variations du RMS. La mesure synthétique a été calculée avec un indice de réfraction complexe $m = 1,5 + i 10^{-3}$	109
Figure 4-10 : Variations du RMS. La mesure synthétique a été calculée avec un indice de réfraction complexe $m = 1,5 + i 10^{-8}$	110

Figure 4-11 : Variations du RMS. La mesure synthétique a été calculée avec un indice de réfraction complexe $m = 1,5 + i \cdot 10^{-4}$	110
Figure 4-12 : Variations du RMS. La mesure synthétique a été calculée avec un indice de réfraction complexe $m = 1,5 + i \cdot 10^{-2}$	111
Figure 4-13 : Variations du RMS. La mesure synthétique a été calculée avec un indice de réfraction complexe $m = 1,5 + i \cdot 10^{-0}$	111
Figure 4-14 : Variations du RMS. La mesure synthétique a été calculée avec un indice de réfraction complexe $m = 1,5 + i$, pour un néphélomètre polaire parfait (angles de mesures de 0 à 180°)	112
Figure 5-1 : Partie haute : section efficace volumique de diffusion pour de grosses gouttes d'eau, mesurée par le D2PN et après inversion. Le générateur de gouttes est un VOAG. Partie basse : Distribution dimensionnelle volumique en volume (25 classes)	117
Figure 5-2 : Variations du RMS dans le cas de la restitution pour des gouttes d'eau.	118
Figure 5-3 : Distributions volumiques en volume issues du FSSP et de l'inversion des données du néphélomètre aéroporté (cas Eau 1)	121
Figure 5-4 : Variations du RMS dans le cas de la restitution pour des gouttes d'eau avec les données du néphélomètre aéroporté (Eau 1).	122
Figure 5-5 : Sections volumiques efficaces normalisées mesurée et calculée avec les paramètres issus de l'inversion de données du néphélomètre aéroporté (cas Eau 1)	122
Figure 5-6 : Variations du RMS dans le cas de la restitution pour le cas des mesures de contrail avec le néphélomètre aéroporté.	123
Figure 5-7 : Sections volumiques efficaces normalisées mesurée et calculée avec les paramètres issus de l'inversion de données du néphélomètre aéroporté (cas Contrails)	124

Introduction

Les aérosols (particules en suspension dans l'air) affectent le climat suivant différents processus. Le premier effet est l'influence directe des aérosols sur la lumière via la diffusion et l'absorption. Le second effet est la modification des propriétés radiatives et de la durée de vie des nuages car les aérosols servent de noyaux de condensation pour la formation des gouttelettes en suspension.

D'après les derniers rapports de l'IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change) 2001 et 2007, ces processus sont mal quantifiés et leurs incertitudes sont grandes. Ces incertitudes sur le forçage radiatif des aérosols sont du même ordre de grandeur que le forçage des gaz à effet de serre.

Pour réduire ces incertitudes, il est nécessaire d'étudier les effets des aérosols sur toute la surface de la planète. Ceci est effectué grâce à des satellites qui embarquent différents instruments tels que des lidars, radiomètres (POLDER), ... Ces instruments permettent d'avoir une couverture bidimensionnelle globale à l'échelle de la planète, mais il est nécessaire de les calibrer afin que leurs mesures soient exploitables.

Pour valider ces instruments embarqués sur satellites, il est nécessaire de développer une instrumentation de laboratoire et aéroportée. Afin de mieux caractériser les propriétés optiques des aérosols, le Laboratoire de Météorologie Physique (LaMP) de Clermont-Ferrand a développé deux néphélomètres polaires : un aéroporté qui mesure la diffusion totale et un autre de laboratoire qui mesure la diffusion de la lumière suivant deux polarisations perpendiculaires entre elles.

Ces deux néphélomètres fournissent directement un certain nombre de caractéristiques optiques des aérosols, mais leurs propriétés microphysiques sont obtenues via des algorithmes de restitution. Une inversion est déjà utilisée afin de restituer la distribution en taille pour des particules sphériques, mais pas l'indice de réfraction qui permet de remonter à la nature de la particule.

Le but principal de cette thèse est d'estimer la capacité de la restitution de l'indice de réfraction complexe avec les données du néphélomètre polaire à double

polarisation, en même temps que la restitution de la distribution en taille d'une population de particules sphériques.

Ce mémoire s'articulera autour de quatre parties :

- La première partie sera consacrée à définir les aérosols et la problématique environnementale associée en particulier à son impact sur le bilan radiatif de la planète. Egalement dans cette partie, les paramètres caractérisant ces aérosols seront décrits.
- Dans la deuxième partie, la diffusion de la lumière par une particule puis par une population d'aérosols sera explicitée. Un certain nombre de relations entre différents paramètres de la diffusion sera mis en valeur. Un rapide rappel de la nature de la lumière est également fourni.
- La partie trois est dédiée à la description et aux caractéristiques du néphélomètre polaire à double polarisation (D2PN : Dual Polarization Polar Nephelometer) et sa particularité parmi les autres instruments de mesures pour les aérosols.
- Dans la quatrième partie, la restitution de l'indice de réfraction ainsi que les paramètres microphysiques à partir des mesures du D2PN de la lumière diffusée sera développée. Il s'agira en particulier des tests de sensibilité des mesures du D2PN, sans oublier les tests et l'estimation de la précision d'une méthode d'inversion adaptée à cet appareil.
- La cinquième et dernière partie sera constituée de tests à partir de données réelles issues de mesures du D2PN et du néphélomètre aéroporté.

Comme cette année 2008 correspond à l'année anniversaire des 100 ans de la publication de la théorie de Gustav Mie, un court rappel historique et biographique est placé en annexe A afin de situer cette découverte parmi d'autres dates clés de la science.

1 Les aérosols

1.1 Qui sont-ils ?

Les aérosols désignent les particules solides ou liquides qui sont en suspension dans l'atmosphère. Elles sont en suspension dans l'air car leur vitesse de chute est très faible (de l'ordre du cm/h) et c'est pourquoi leurs trajectoires suivent sensiblement l'écoulement de l'air. Cette vitesse de chute se calcule avec l'équation suivante :

$$V_{ch} = \frac{\rho D^2 g}{18\eta} \quad (1.1)$$

Avec V_{ch} : vitesse de chute (m/s)

ρ : masse volumique de la particule (kg/m³)

η : viscosité dynamique de l'air (Pa.s)

D : diamètre de la particule (m)

g : accélération de la gravité (m/s²)

Des vitesses de chute pour différents diamètres de gouttes d'eau ont été regroupées dans le tableau ci-dessous.

Diamètre de la particule (µm)	Vitesse de chute (cm/s)
1 µm	0,0017
10 µm	0,17
50 µm	4,19

Tableau 1-1 : Vitesse de chute pour des gouttes d'eau de différents diamètres

Dans la vie de tous les jours, elles sont appelées différemment suivant leur provenance, comme par exemple : poussières, brouillard, brume, ... On inclut également dans les aérosols, les hydrométéores qui sont constitués d'eau, liquide ou solide, présente sous forme de gouttelettes ou de cristaux. Ces hydrométéores sont les éléments constituant les nuages.

1.1.1 Taille

La taille des aérosols s'étend de $10^{-3} \mu\text{m}$ à $100 \mu\text{m}$, soit une étendue de 5 décades (voir figure 1-1)(Hinds, 1998). La définition de la taille des particules dépend de leur forme.

Les particules dont l'échelle est nanométrique correspondent à un regroupement de molécules appelées grappes moléculaires. La taille typique des molécules diatomiques est de l'ordre de 0,3 à 0,6 nm. A l'autre bout de l'échelle, les particules de diamètre important (supérieur à $50 \mu\text{m}$) ne restent pas longtemps dans l'atmosphère, du fait de leur vitesse de chute non négligeable (voir tableau 1-1).

Afin de limiter l'imprécision d'appellation des aérosols au sujet de leur taille, il est usuel de diviser la population d'aérosols en particules fines dont les diamètres vont de $10^{-3} \mu\text{m}$ à $2 \mu\text{m}$ et les grosses particules de $2 \mu\text{m}$ à $100 \mu\text{m}$ (Renoux, 1998).

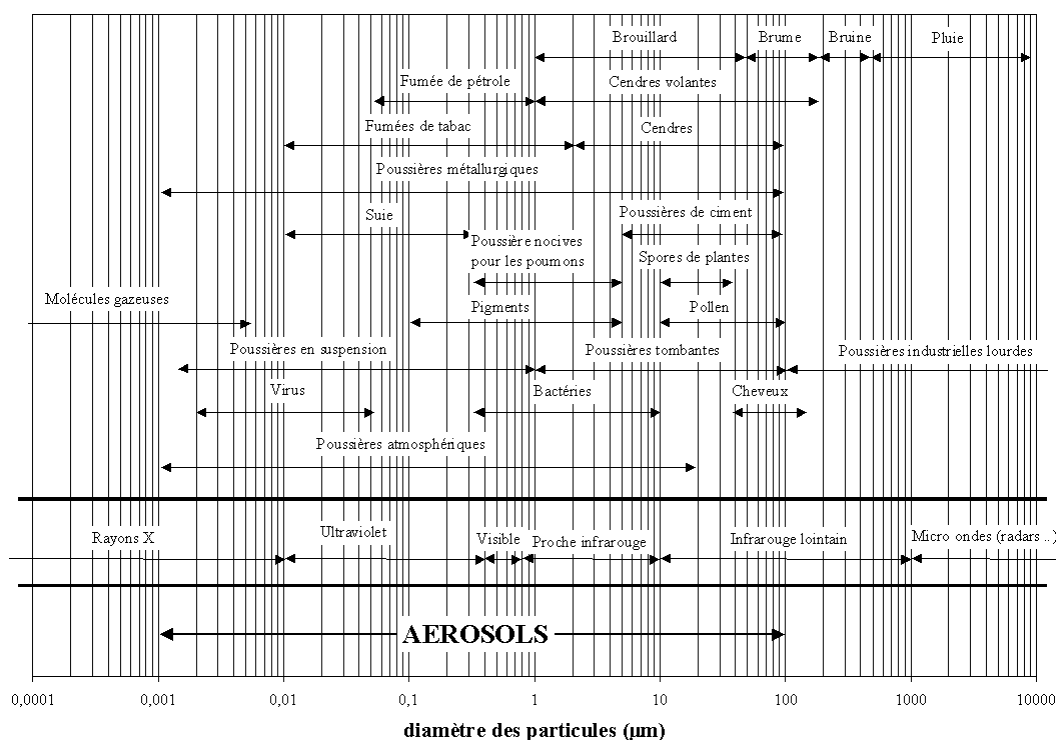


Figure 1-1 : La partie haute de cette figure montre les différentes particules associées à leur taille. La partie basse donne la longueur d'onde des rayonnements électromagnétiques. Sur la dernière partie, la largeur de la gamme des aérosols est fournie (d'après Hinds 1998).

Pour compléter la description de la figure 1-1, les tailles d'autres éléments (non aérosols car très rarement présents dans l'atmosphère) sont données ci-dessous :

- liaison O-H d'une molécule d'eau : 0,15 nm ($1,5 \cdot 10^{-4}$ μm)
- enzyme, protéine : 1 nm (10^{-3} μm)
- cellule animale : 10 μm
- cellule végétale : 100 μm

Dans le chapitre 3, nous verrons que ce travail de thèse ne concerne que les particules dont le diamètre est supérieur à 0,2 μm (cf. paragraphe 3.3.4).

1.1.2 Forme

Les aérosols présentent des formes variées. Ils ont souvent des formes sphériques dans le cas de gouttelettes liquides. Les solutions aqueuses d'acide sulfurique et d'autres sels constituent une grande partie de la masse des gouttes de petites tailles.

Les aérosols sous formes de sels (NaCl, sels d'ammonium, ...) peuvent présenter des déliquescentes (Covert et al., 1972). C'est le passage rapide de l'état cristallin à l'état liquide sous forme de goutte.

Sous forme cristalline, le chlorure de sodium a une forme cubique. Les cristaux de sulfate d'ammonium et de potassium sont généralement aussi de forme cubique mais les arêtes sont arrondies.

Les cristaux de glace peuvent avoir des formes très différentes (étoiles, plaques, ...) suivant leurs conditions de formations (température, humidité, sursaturation, ...) (Nakaya et Terada, 1935). Ils cristallisent sous forme hexagonale.

Suite à des combustions et des recondensations de substances faiblement volatiles, des chaînes d'agrégats de solides plus ou moins sphériques peuvent se former. Ces agrégats résultent de la coagulation des sphères.

La caractérisation de la taille des particules sphériques est simple : la mesure de leur diamètre est suffisante. Pour les particules non-sphériques, leur classement fait appel à des « diamètres équivalents » dépendant de leurs propriétés. Par exemple, dans un impacteur à cascade, les particules sont classées

suivant leur diamètre de Stokes. Ces diamètres correspondent à leurs propriétés aérodynamiques qui font intervenir leur coefficient de trainée et leur masse volumique.

$$D_{Stk} = \sqrt{\frac{18\mu V_{ch}}{g\rho}} \quad (1.2)$$

Avec V_{ch} : vitesse de chute (m/s)

D_{Stk} : diamètre de Stokes de la particule (m)

μ : viscosité dynamique (Pa.s)

ρ : masse volumique (kg/m³)

g : accélération de la gravité (m/s²)

Les autres paramètres sont définis comme pour l'équation 1.1.

Le problème de la détermination de la taille par la diffusion de la lumière est gênant aussi pour des particules de formes quelconques. Trier ou dimensionner des particules du point de vue optique (avec un compteur ou un spectromètre) conduit à un « diamètre optique équivalent » qui peut ne correspondre à aucune autre taille ou relation avec les autres diamètres. Pour une taille « optique », on peut obtenir plusieurs tailles physiques suivant la forme et/ou la nature (indice de réfraction) de la particule.

Lorsqu'une taille ou diamètre de particule de forme non-sphérique est fourni, il est donc nécessaire de connaître la méthode de détermination afin de savoir de quel diamètre il s'agit.

1.1.3 Origines

On distingue les aérosols en deux grandes familles : les aérosols primaires et les aérosols secondaires.

Les aérosols primaires sont des particules de taille variable (de 0,1 à quelques dizaines de micromètres de diamètre) émises directement sous forme solide. Leurs compositions chimiques sont celles de leurs sources. Les sources peuvent être terrigènes (poussières éoliennes), marines, volcaniques ou anthropiques.

Les aérosols dits secondaires sont formés dans l'atmosphère à partir de composés déjà présents dans l'air comme les composés gazeux. Leurs formations

sont basées sur la condensation et la coalescence. Par exemple, la production photochimique d'aérosols suivie de la formation de gouttelettes autour d'un noyau est une explication du smog de Los Angeles (Hussar et al., 1976).

Les différentes origines des aérosols solides sont fournies dans le tableau ci-après. Ce tableau est extrait du livre de Delmas, 2005. Ces données sont issues des travaux d'Andreae, 1997 et de l'IPCC, 2001.

Origine de la source	Sources	Flux (Mt/an)	
		Estimation moyenne	Estimation Min. et Max.
Naturelles (90%)	PRIMAIRES		
	Poussières minérales	2 000	1 000-3 000
	Sels de mer	3 000	1 000-10 000
	Cendres volcaniques	33	4-10 000
	Carbone organique (> 1 µm) (débris, cires vasculaires, ...)	56	26-90
	SECONDAIRES		
	Sulfates biogéniques	90	80-150
	Sulfates volcaniques	21	9-50
	Carbone organique (oxydation COV ¹ biogéniques)	16	8-40
	Nitrates	4	2-8
	TOTAL	5 220	2 130-23 340
ANTHROPIQUES (10%)	PRIMAIRES		
	<u>Carbone organique (0-2 µm)</u>		
	Feux de végétation	54	45-80
	Comb. fuel fossile	28	10-30
	<u>Carbone élémentaire (0-2 µm)</u>		
	Feux de végétation	5,7	5-9
	Comb. Fuel fossile	6,6	6-8
	Poussières industrielles	100	40-130
	SECONDAIRES		
	Sulfates	120	70-220
	Nitrates	14	10-20
	Carbone organique (oxydation des COV anthropiques)	1	0,5-2
	TOTAL	330	250-660

Tableau 1-2 : Flux d'émission de particules en Mt/an (1Mt = 10⁶ tonnes). Extrait du Delmas, 2005, d'après Andreae, 1997 et IPCC, 2001

¹ COV = Composés organiques volatils.

On peut remarquer l'importance des flux d'émission des sels de mer et du flux de poussières minérales. Ces grandes quantités s'expliquent par la présence des déserts et des océans, qui représentent la majorité de la surface de la planète et dont la surface retient faiblement ces particules.

1.2 Leur rôle

Les aérosols servent de vecteurs d'éléments chimiques entre les différentes parties de l'atmosphère. Ils influent de façon importante la composition chimique des précipitations. Ils participent également au bilan radiatif de la planète de deux façons : un effet direct et un effet indirect.

L'effet direct correspond à l'interaction de ces aérosols avec les rayonnements solaire ou terrestre. Il est lié à leur capacité d'absorption du rayonnement infrarouge (effet de serre) et de réflexion (albédo) et d'absorption du rayonnement visible.

L'effet indirect est le fait qu'ils servent de noyaux de condensation nuageux ou de noyaux glaçogènes qui initient la formation de gouttelettes ou de cristaux de glace. Il faut noter que leur effet indirect est important car une part significative des nuages ne précipite pas et que la composition chimique des aérosols est modifiée après passage par la phase liquide dans les nuages.

Il existe aussi un effet semi-direct. Les aérosols absorbent le rayonnement solaire, de ce fait le profil de température de l'atmosphère est modifié. Cette modification du profil influe sur les conditions de formation des nuages.

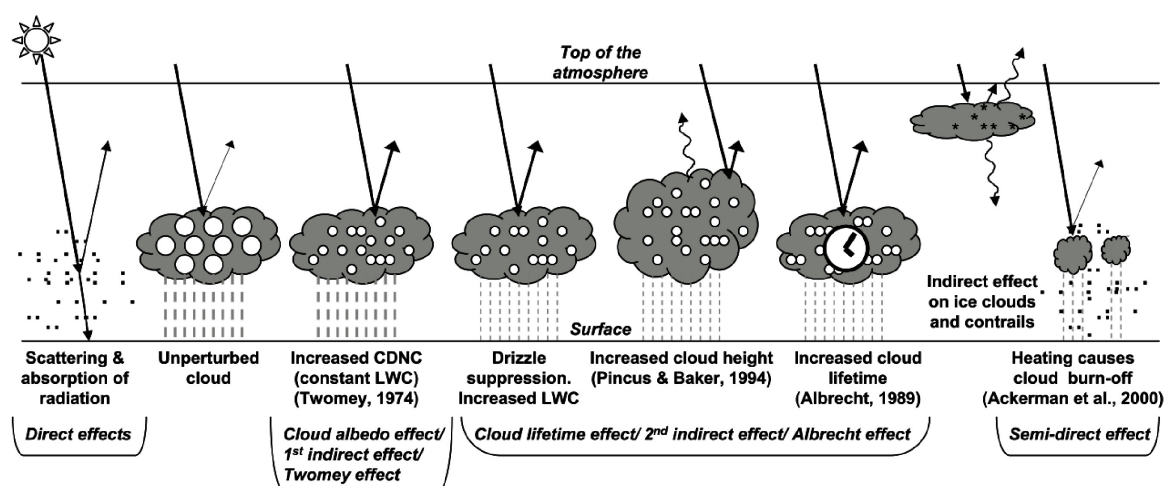


Figure 1-2 : Diagramme montrant les différents mécanismes associés au nuage et leur relation avec les aérosols. Les petits points représentent les particules aérosols, les larges cercles les gouttes. Les traits droits représentent les flux solaires incident et réfléchi, les traits ondulés les radiations terrestres et les traits pointillés sont la pluie. CDNC : cloud droplet number concentration, CCN : cloud condensation nuclei, LWC : liquid water content. (d'après Haywood et Boucher, 2000)

Les nuages précipitants contenant seulement de grosses gouttes ne sont pas perturbés par un surplus d'aérosols. De ce fait, les propriétés radiatives de ces nuages ne sont pas modifiées et renvoient vers l'espace une faible quantité de lumière.

Les nuages en cours de formation utiliseront les aérosols naturels et anthropogéniques disponibles comme noyaux de condensation. Ces nuages contiendront ainsi plus de gouttes mais de plus petites tailles.

Ce phénomène a pour conséquence principale d'augmenter l'effet parasol des nuages (moins de rayonnement solaire à la surface de la Terre car les nuages ont réfléchi plus de lumière vers l'espace) : c'est l'effet Twomey (1974). Ce surplus d'aérosols a d'autres effets tels que l'augmentation de la hauteur des nuages (Pincus et Baker, 1994) et l'augmentation de la durée de vie des nuages (effet Albrecht, 1989).

1.3 Bilan radiatif terrestre

L'impact des aérosols est très important sur le bilan radiatif de la planète. Cependant l'incertitude de ces imports est également très importante (IPCC report IV, 2007), comme on peut le voir sur la figure ci-dessous, qui représente les différents termes de forçage radiatif et leurs marges d'erreur.

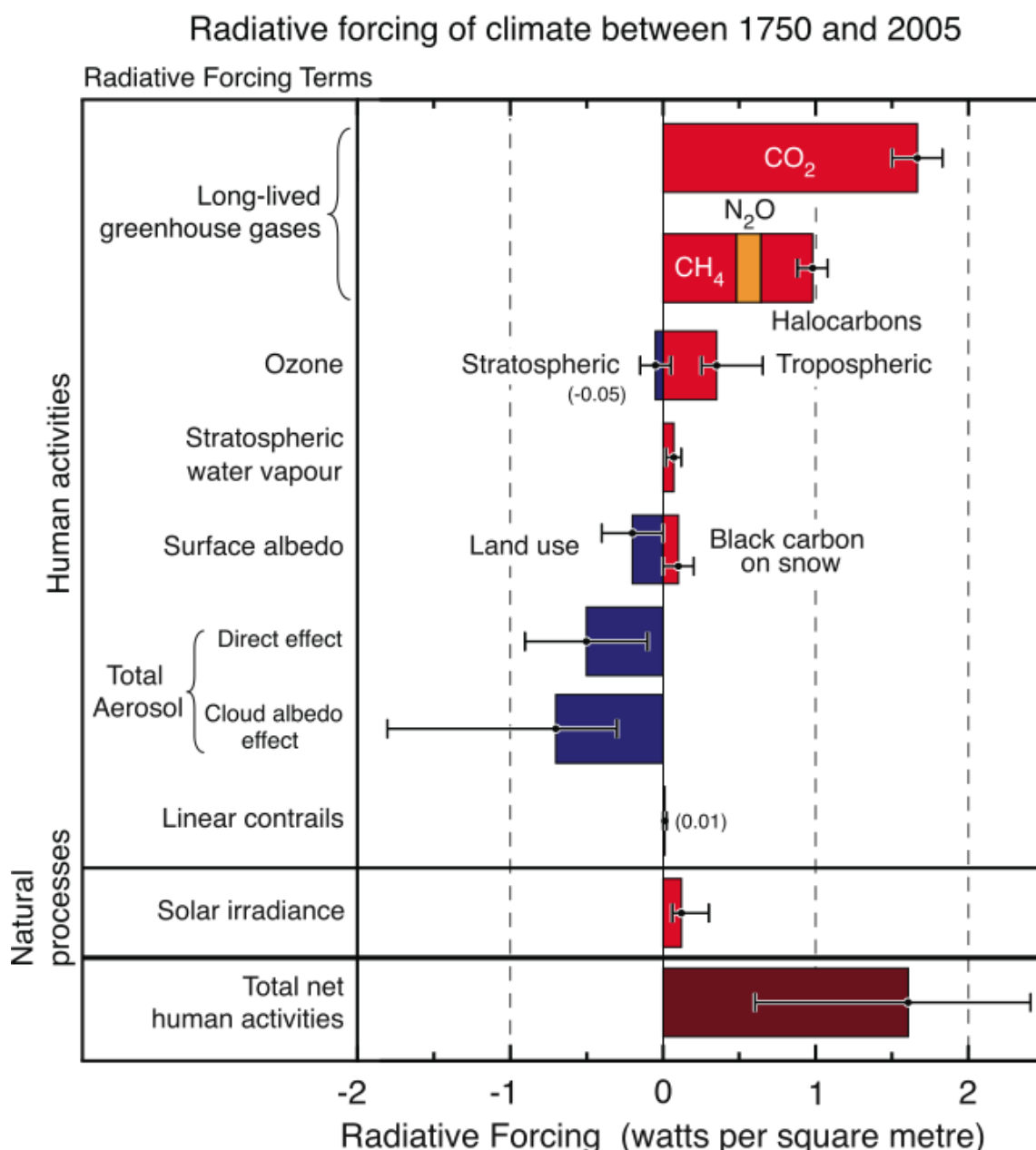


Figure 1-3 : Résumé des différents composants constituant le forçage radiatif du climat. Tous ces forçages radiatifs sont le résultat d'un ou plusieurs facteurs. Ces valeurs sont les forçages en 2005 par rapport au début de l'ère industrielle (environ 1750). Les activités humaines ont causé des changements significatifs : gaz à longue durée de vie, ozone, albédo, vapeur d'eau et contrails. La seule cause naturelle est le changement de l'irradiation solaire. Les forçages positifs réchauffent le climat et les négatifs le refroidissent. Les lignes noires correspondent aux incertitudes. (d'après IPCC report IV, 2007)

On peut voir que l'incertitude des effets des aérosols (Direct effect et cloud albedo effect) vaut plus du double de sa valeur, ou correspond à la valeur du forçage du CO₂, d'où l'intérêt d'étudier leur impact aussi bien chimique (effet indirect) que d'un point de vue optique.

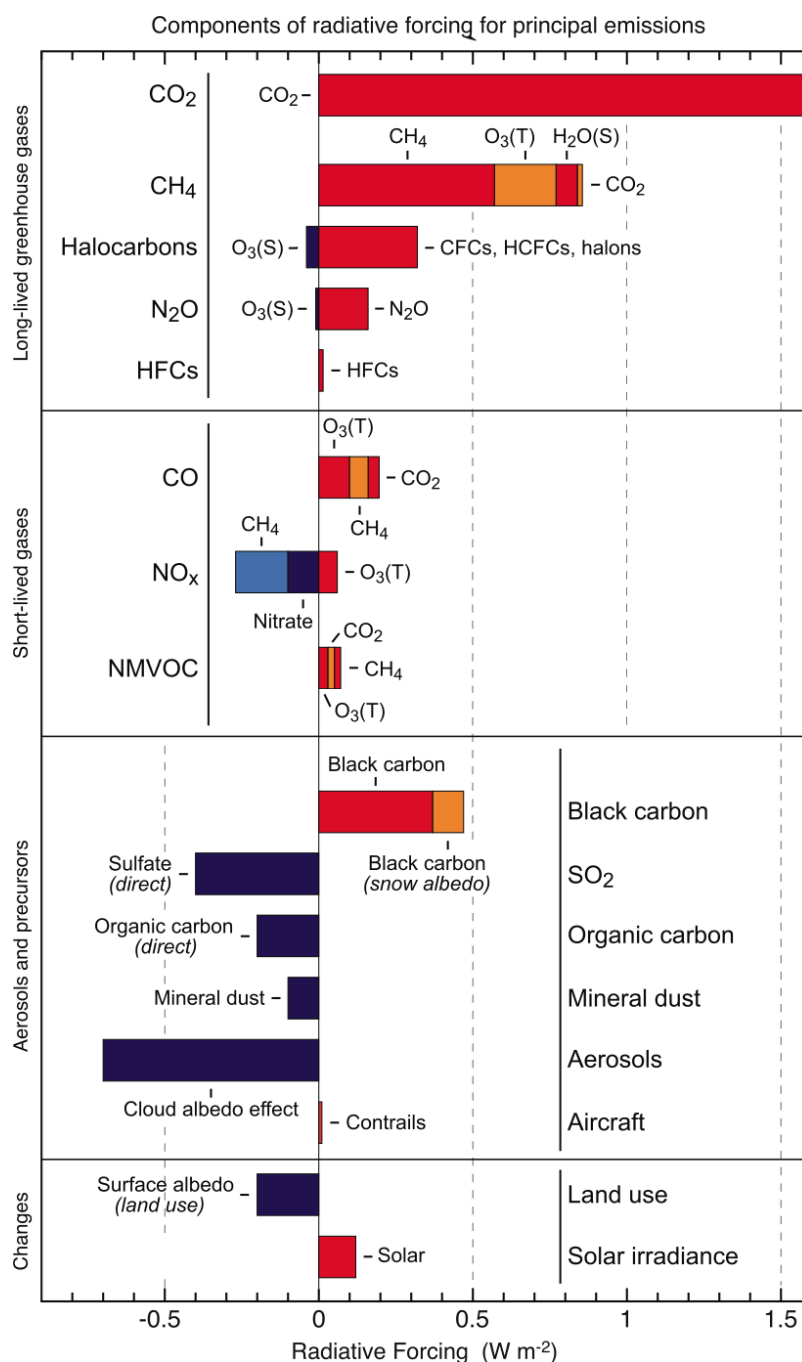


Figure 1-4 : Détails des composantes des forçages radiatifs pour les émissions des principaux gaz et aérosols. Ces valeurs sont les différences entre l'année 2005 et 1750. (S) et (T) représentent respectivement les changements pour les espèces stratosphériques et troposphériques. (d'après IPCC report IV, 2007)

Le graphique ci-dessus (figure 1-4) représente le forçage radiatif de différents gaz et aérosols suivant leur provenance. On peut remarquer que suivant l'origine des aérosols, leur impact sur le climat est différent. Généralement les aérosols ont tendance à refroidir l'atmosphère alors que le « black carbon » réchauffe l'atmosphère.

Un modèle couramment utilisé pour déterminer le bilan radiatif terrestre est l'atmosphère plan parallèle.

1.3.1 Atmosphère plan parallèle

(Delmas, 2005 ; Liou, 2002 ; Lenoble, 1993)

L'atmosphère est supposée homogène sur l'horizontale et la sphéricité est négligée. Au cours de ce paragraphe, un certain nombre de termes de transfert radiatif vont apparaître. Tous ces termes seront explicités de manière plus détaillée dans le chapitre 2.

On utilise l'Equation du Transfert Radiatif (ETR) :

$$dL(l, s) = -\beta_{ext} L(l, s) dl + \beta_{abs} B(T) dl + \frac{\beta_{diff}}{4\pi} \left\{ \int_{4\pi} p(s, s_i) L(l, s_i) d\Omega_i \right\} dl \quad (1.3)$$

On introduit J le terme source :

$$J(l, s) = \beta_{abs} B(T) + \frac{\beta_{diff}}{4\pi} \left\{ \int_{4\pi} p(s, s_i) L(l, s_i) d\Omega_i \right\} \quad (1.4)$$

Avec $L(l, s)$: luminance à la position l et la direction s

β_{ext} : coefficient d'extinction

β_{abs} : coefficient d'absorption

β_{diff} : coefficient de diffusion

$p(s, s_i)$: fonction de phase entre l'angle s et s_i

dl : élément de longueur

$d\Omega$: élément d'angle solide

$B(T)$: loi de Planck pour l'émission

Dans ce modèle, on utilise seulement la dimension verticale de l'atmosphère, représentée par la coordonnée z dirigée vers le haut. Le sol est à $z = 0$ et le sommet de l'atmosphère (TOA : Top Of Atmosphere) se situe à $z = z_{TOA}$.

De plus, on effectue le changement de variable en introduisant la profondeur (ou épaisseur) optique δ :

$$\delta = \delta(z) = - \int_{z_{TOA}}^z \sigma_{ext}(z') dz' \quad (1.5)$$

De ce fait $d\delta(z) = -\sigma_{ext}(z)dz$ et au sommet de l'atmosphère $\delta(z_{TOA}) = 0$.

L'angle zénithal θ est mesuré par rapport à la verticale. On effectue le changement de variable $\mu = \cos(\theta)$. Pour $\mu < 0$, le rayonnement est descendant et pour $\mu > 0$, le rayonnement est montant.

En réalisant l'intégration de l'ETR, on obtient pour le rayonnement descendant au niveau $\delta(z)$:

$$L^\downarrow(\delta, \mu, \phi) = L^\downarrow(0, \mu, \phi) \cdot \exp\left(-\frac{\delta}{-\mu}\right) + \int_0^\delta J(\delta', \mu, \phi) \cdot \exp\left(-\frac{\delta - \delta'}{-\mu}\right) \frac{d\delta'}{-\mu} \quad (1.6)$$

Et pour le rayonnement montant au niveau $\delta(z)$:

$$L^\uparrow(\delta, \mu, \phi) = L^\uparrow(\delta_s, \mu, \phi) \cdot \exp\left(-\frac{\delta_s - \delta}{\mu}\right) + \int_\delta^{\delta_s} J(\delta', \mu, \phi) \cdot \exp\left(-\frac{\delta' - \delta}{\mu}\right) \frac{d\delta'}{\mu} \quad (1.7)$$

Le terme source J devient :

$$J(\delta, \mu, \phi) = \frac{J(l, s)}{\beta_{ext}} = (1 - \pi_0)B(T) + \frac{\pi_0}{4\pi} \int_{-1}^1 \int_0^{2\pi} p(\mu, \phi, \mu', \phi') L(\delta, \mu', \phi') d\mu' d\phi' \quad (1.8)$$

Avec π_0 qui est l'albédo de diffusion simple (terme explicité au chapitre 2).

Cette équation du transfert radiatif nécessite la connaissance du coefficient d'extinction β_{ext} , de l'albédo de diffusion simple π_0 , de la fonction de phase p , du profil de température T , ...

On peut donc remarquer que pour améliorer notre connaissance en transfert radiatif dans l'atmosphère, il est nécessaire de bien déterminer les coefficients d'albédo de diffusion simple, la fonction phase de diffusion et le coefficient d'extinction. Dans ce but, le développement d'instruments permettant les mesures de l'extinction et de la diffusion est important. Les néphélomètres polaires sont appropriés pour la mesure de la fonction de phase et du coefficient de diffusion.

1.3.2 Bilan d'énergie dans l'atmosphère

Grâce à ce type de modèle et à des mesures, un bilan d'énergie dans l'atmosphère terrestre a été établi (figure 1-5). Cette figure, extraite de Delmas (2005) représente les flux d'énergie dans l'atmosphère pour une température de surface de 15°C.

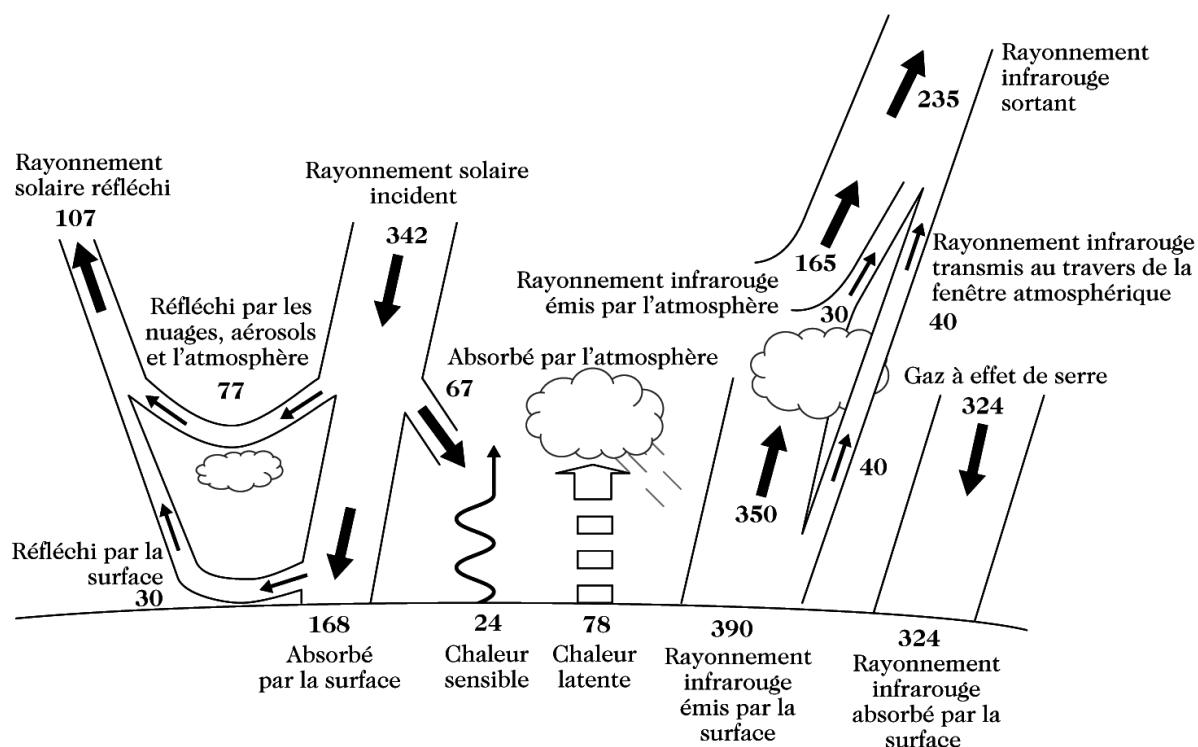


Figure 1-5 : Bilan d'énergie journalier dans l'atmosphère terrestre en W/m^2 pour une température de surface de 15°C. Les chiffres sont indicatifs, ils ne sont connus qu'à quelques W/m^2 près (extrait de Delmas, 2005).

Cette figure fournit la contribution des différents éléments intervenants dans le bilan radiatif de la planète. Les chiffres sont donnés à titre indicatif. Compte tenu des incertitudes, ces valeurs sont connues qu'à quelques W/m^2 près.

1.4 Conclusion

Les aérosols sont très variés aussi bien en termes de taille, de forme que de nature. Leur rôle dans l'atmosphère est très important aussi bien de façon directe que de façon indirecte (modification des propriétés des nuages : contenu en eau, taille des gouttes, durée de vie). Ces particules modifient le bilan radiatif de l'atmosphère et une grande incertitude sur la valeur de leur forçage radiatif perdure. Il est donc nécessaire de les étudier plus en détail.

2 Propriétés optiques et diffusion

Les propriétés optiques des aérosols conditionnent la propagation de la lumière à travers des couches atmosphériques (voir le chapitre précédent : effet direct) et modifient le bilan radiatif de la Terre. Le début de ce chapitre rappelle les principales définitions et propriétés de la lumière qui servent pour l'étude de la diffusion par les particules. Dans la seconde partie, nous étudierons plus en détails la diffusion de la lumière par des particules.

2.1 Les paramètres de la diffusion de la lumière

Lorsque la lumière intercepte une particule, son intensité diminue. Cette diminution s'appelle l'extinction. Cette **extinction** correspond à deux phénomènes : la diffusion et l'absorption.

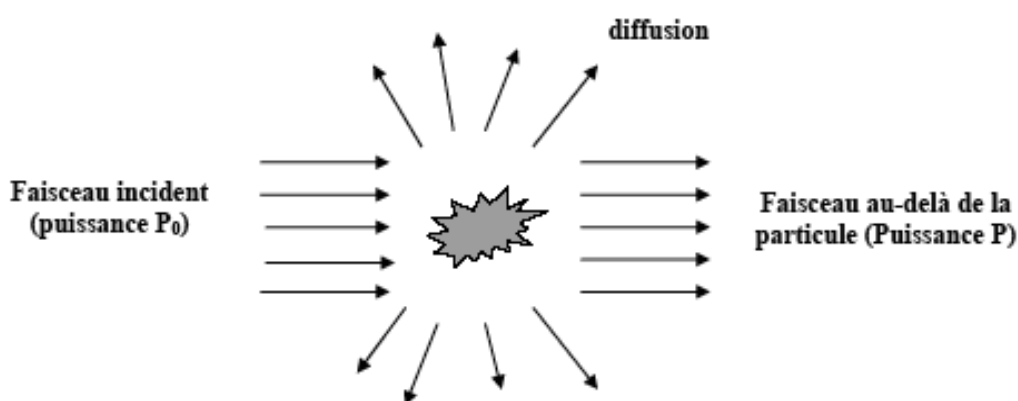


Figure 2-1 : Schéma de l'extinction et de la diffusion de la lumière, interceptée par une population de particules ($P < P_0$)

La **diffusion** est définie comme le changement de direction des photons au cours de leur propagation, en gardant la même longueur d'onde (diffusion élastique). Ce phénomène est dû à la présence de dipôles à l'intérieur de la particule. Lorsqu'un obstacle (particule solide ou liquide, molécules, ...) intercepte une onde électromagnétique (appelée également lumière), des charges électriques dans l'obstacle se mettent à osciller à cause du champ électrique de l'onde incidente. Ces charges électriques lorsqu'elles décèlent, rayonnent une énergie électromagnétique dans toutes les directions. Ce rayonnement est appelé rayonnement diffusé.

L'**absorption** correspond à la transformation du rayonnement en d'autres formes d'énergie : chaleur, énergie de réaction chimique, ... L'absorption

correspond à la fin de la vie d'un photon. Cette absorption est associée aux transitions des niveaux d'énergie des électrons.

Il existe un autre phénomène de diffusion avec changement de longueur d'onde : c'est la diffusion inélastique. Dans notre cas, elle ne sera pas prise en compte car elle est de très faible intensité.

2.1.1 Définition des sections efficaces d'extinction, de diffusion et d'absorption

2.1.1.1 Section efficace d'extinction σ_{ext}

L'extinction peut se définir comme la différence entre la puissance incidente et la puissance transmise dans un tube de flux :

$$P_{ext} = P_0 - P_{tra} \quad (2.1)$$

Avec P_{ext} : puissance d'extinction (W)

P_0 : puissance incidente (W)

P_{tra} : puissance transmise (W)

Mais on peut également la définir comme la somme des puissances absorbée et diffusée :

$$P_{ext} = P_{diff} + P_{abs} \quad (2.2)$$

Avec P_{diff} : puissance diffusée (W)

P_{abs} : puissance absorbée (W)

L'utilisation des formes ci-dessus n'est pas très pratique, c'est pourquoi une nouvelle quantité, la **section efficace d'extinction** va être définie σ_{ext} telle que :

$$P_{ext} = \sigma_{ext} \cdot I_0 \quad (2.3)$$

Avec I_0 intensité incidente sur le milieu en W/m² et avec σ_{ext} en m².

Cette section efficace n'est pas à confondre avec la section géométrique de la particule, elle dépend de plusieurs paramètres :

- la taille de la particule
- la forme de la particule
- l'état de surface

- la nature (indice de réfraction)
- la longueur d'onde incidente
- et d'autres paramètres

2.1.1.2 Section efficace de diffusion σ_{diff}

La section efficace de diffusion σ_{diff} est définie de la façon suivante :

$$P_{diff} = \sigma_{diff} \cdot I_0 \text{ avec } \sigma_{diff} \text{ en m}^2 \quad (2.4)$$

La puissance P_{diff} est diffusée dans tout l'espace, c'est-à-dire dans un angle solide de 4π stéradians autour de la particule. Par conséquent la section efficace de diffusion caractérise la lumière diffusée dans toutes les directions.

2.1.1.3 Section efficace d'absorption σ_{abs}

La section efficace d'absorption σ_{abs} est définie de la façon suivante :

$$P_{abs} = \sigma_{abs} \cdot I_0 \text{ avec } \sigma_{abs} \text{ en m}^2 \quad (2.5)$$

L'équation (2.2) devient :

$$\sigma_{ext} = \sigma_{abs} + \sigma_{diff} \quad (2.6)$$

2.1.2 Facteur d'efficacité

Le facteur d'efficacité Q_x est le rapport de la section efficace sur la surface de la particule projetée perpendiculairement au faisceau.

Pour une particule sphérique,

$$Q_x = \frac{4\sigma_x}{\pi D^2} \quad (2.7)$$

Avec σ_x : section efficace

D : diamètre de la particule.

x correspond à extinction, absorption, diffusion.

Q_x est un nombre sans dimension.

On définit de la même façon, les facteurs d'efficacité d'extinction Q_{ext} , d'absorption Q_{abs} et de diffusion Q_{diff} .

Comme pour les sections efficaces, on retrouve l'équation :

$$Q_{ext} = Q_{abs} + Q_{diff} \quad (2.8)$$

2.1.3 Coefficient linéique d'extinction, de diffusion, d'absorption

Pour une population de particules, on définit le coefficient linéique β (m^{-1}) de la façon suivante :

$$\beta_X = \int_0^{\infty} \sigma_X(r) \frac{dN(r)}{dr} dr \quad (2.9)$$

Avec $\frac{dN(r)}{dr}$ la distribution en nombre volumique des particules ($m^{-3}.m^{-1}$)

r : le rayon de la particule

X : soit extinction, diffusion, absorption.

2.1.4 Albédo de diffusion simple

Les photons peuvent être diffusés ou absorbés par les particules. L'albédo de diffusion simple π_0 est défini comme le rapport de la partie diffusée sur la partie éteinte de la lumière incidente.

$$\pi_0 = \frac{\sigma_{diff}}{\sigma_{ext}} = \frac{Q_{diff}}{Q_{ext}} = \frac{Q_{diff}}{Q_{diff} + Q_{abs}} \quad (2.10)$$

2.1.5 Puissance et section efficace de diffusion dans un angle solide élémentaire

Jusqu'à maintenant, nous n'avons pas pris en compte la direction de diffusion. Nous allons introduire cette notion.

On considère le système de coordonnées sphériques centré sur la particule (figure 2-2). L'onde incidente se propage suivant l'axe Oz.

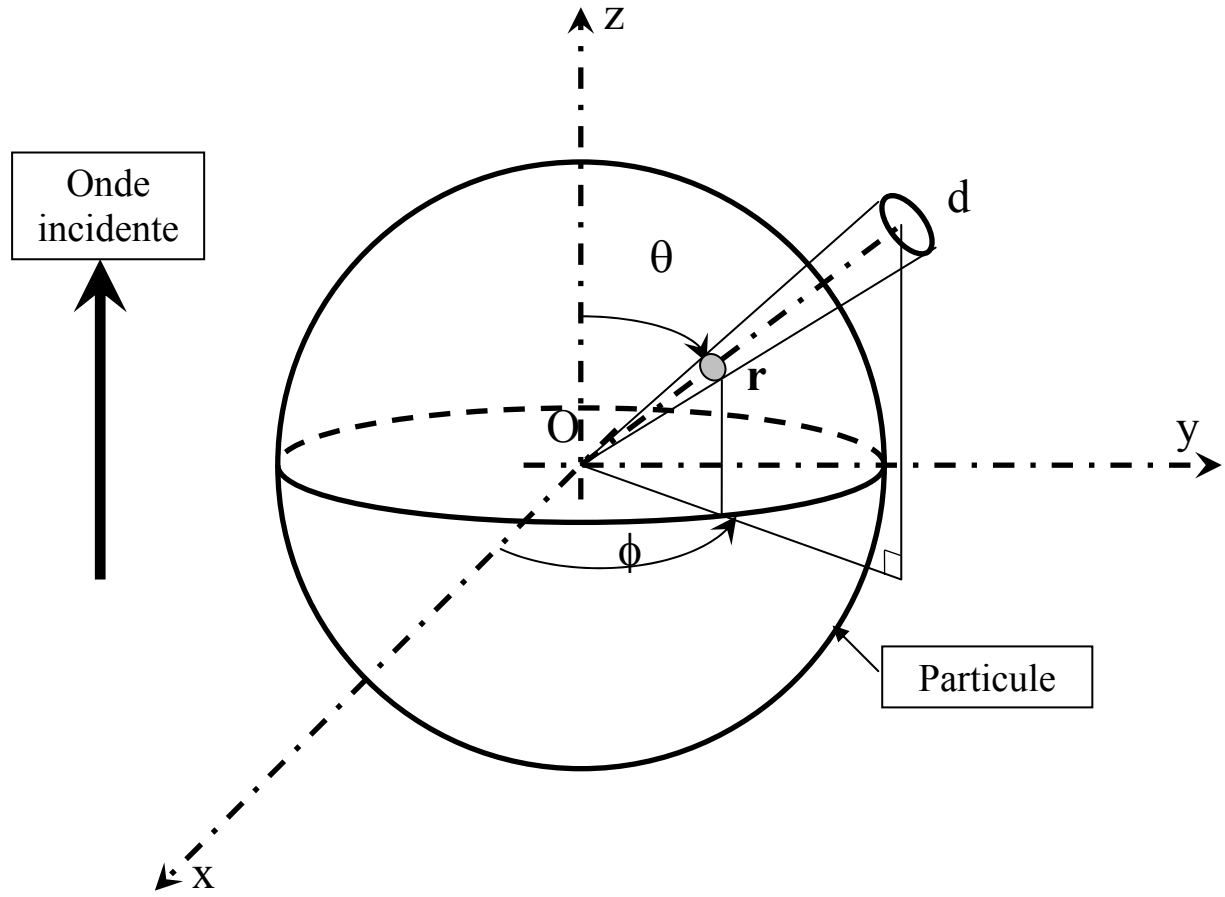


Figure 2-2 : Système de coordonnées sphériques

Les angles θ et ϕ sont respectivement l'angle polaire et l'angle azimutal.

La puissance diffusée dans l'angle solide élémentaire $d\Omega$ autour de la direction (θ, ϕ) est donnée par la relation suivante :

$$dP(\theta, \phi) = \sigma(\theta, \phi) \cdot I_0 \cdot d\Omega \quad (2.11)$$

La section efficace différentielle $\sigma(\theta, \phi)$ est exprimée en m^2/sr et l'angle solide $d\Omega$ en sr.

La section efficace différentielle $\sigma(\theta, \phi)$ est reliée à la section efficace σ_{diff} par la relation :

$$\sigma_{diff} = \int_{4\pi} \sigma(\theta, \phi) d\Omega \quad (2.12)$$

Pour les particules sphériques ou orientées aléatoirement, l'équation précédente devient indépendante de ϕ .

$$\sigma_{diff} = 2\pi \int_0^{\pi} \sigma(\theta) \sin(\theta) d\theta \quad (2.13)$$

2.1.6 Fonction de phase de diffusion

Le caractère directionnel de la diffusion peut être décrit par la fonction de phase de diffusion p . Cette fonction de phase donne la probabilité pour qu'un photon incident soit diffusé dans la direction (θ, ϕ) . Elle est habituellement normalisée à 4π .

$$\int_{4\pi} p(\theta, \phi) d\Omega = \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} p(\theta, \phi) \sin(\theta) d\theta d\phi = 4\pi \quad (2.14)$$

$$\text{ou bien} \quad \frac{1}{4\pi} \int_{4\pi} p(\theta, \phi) d\Omega = \frac{1}{4\pi} \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} p(\theta, \phi) \sin(\theta) d\theta d\phi = 1 \quad (2.15)$$

En relation avec les sections efficaces simple et différentielle :

$$p(\theta, \phi) = 4\pi \frac{\sigma(\theta, \phi)}{\sigma_{diff}} \quad (2.16)$$

Lorsque la diffusion est due à des particules sphériques ou lorsque les particules sont orientées de façon aléatoire dans l'espace, elle ne dépend que de l'angle de diffusion θ . L'équation 2-14 devient

$$\int_0^{\pi} p(\theta) \sin(\theta) d\theta = 2 \quad (2.17)$$

2.1.7 Facteur d'asymétrie

Le facteur d'asymétrie g permet de déterminer la quantité de lumière diffusée vers l'avant et vers l'arrière.

$$g = \frac{1}{4\pi} \int_{4\pi} p(\theta, \phi) \cos(\theta) d\Omega = \frac{1}{\sigma_{diff}} \int_{4\pi} \sigma(\theta, \phi) \cos(\theta) d\Omega \quad (2.18)$$

Pour les particules sphériques ou orientées aléatoirement,

$$g = \frac{1}{2} \int_0^\pi p(\theta) \cos(\theta) \sin(\theta) d\theta = \frac{2\pi}{\sigma_{diff}} \int_0^\pi \sigma(\theta) \cos(\theta) \sin(\theta) d\theta \quad (2.19)$$

La valeur de g est comprise entre -1 et 1. Pour une valeur positive de g , la diffusion en direction de la lumière incidente sera prépondérante. Pour une valeur négative, elle sera principalement dirigée dans la direction opposée (rétro diffusion). Pour g nulle, la diffusion est isotrope ou symétrique.

Le facteur d'asymétrie augmente avec la taille de la particule à condition que l'indice de réfraction de la particule soit plus grand que l'indice du milieu environnant. Ce facteur diminue quand la différence d'indices entre la particule et le milieu augmente (Zege et al., 1991).

2.2 Nature de la lumière

Convention de notation : la notation des vecteurs est une **minuscule** gras (sauf les vecteurs **E**, **H**, **P** qui représentent les champs électriques, magnétiques et le vecteur de Poynting), celle des matrices en **MAJUSCULES** gras. Les produits scalaire et vectoriel seront symbolisés par $\bullet$ et $\wedge$ respectivement.

2.2.1 Aspect vibratoire de la lumière

La lumière est une onde électromagnétique. Elle est représentée à l'aide d'un champ électrique **E** et d'un champ magnétique **H**, fonctions d'une coordonnée temporelle t et de coordonnées spatiales $\mathbf{r}$. Dans le cas le plus simple, celui d'une onde plane se propageant dans le vide, les champs **E** et **H** sont perpendiculaires et oscillent en phase suivant les relations :

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &= \mathbf{E}_0 \cos(\omega t - \mathbf{k} \bullet \mathbf{r} - \varphi_0) \\ \mathbf{H} &= \mathbf{H}_0 \cos(\omega t - \mathbf{k} \bullet \mathbf{r} - \varphi_0) \end{aligned} \quad (2.20)$$

Le vecteur d'onde $\mathbf{k}$, orienté suivant la normale au plan d'onde, indique la direction de propagation de l'onde. Il est orthogonal à **E** et **H**. Son module k est égal à ω/c où c est la vitesse de la lumière dans le vide et ω la pulsation reliée à la longueur d'onde λ par $\omega = \frac{2\pi c}{\lambda}$. Les amplitudes des champs sont données par les

vecteurs $\mathbf{E}_0$ et $\mathbf{H}_0$. Leur produit scalaire est nul car ils sont orthogonaux. Enfin φ_0 est un facteur de phase constant. L'onde électromagnétique est une onde transversale, et le vecteur $\mathbf{k}$ est orthogonal à $\mathbf{E}_0$ et $\mathbf{H}_0$ (figure 2-3).

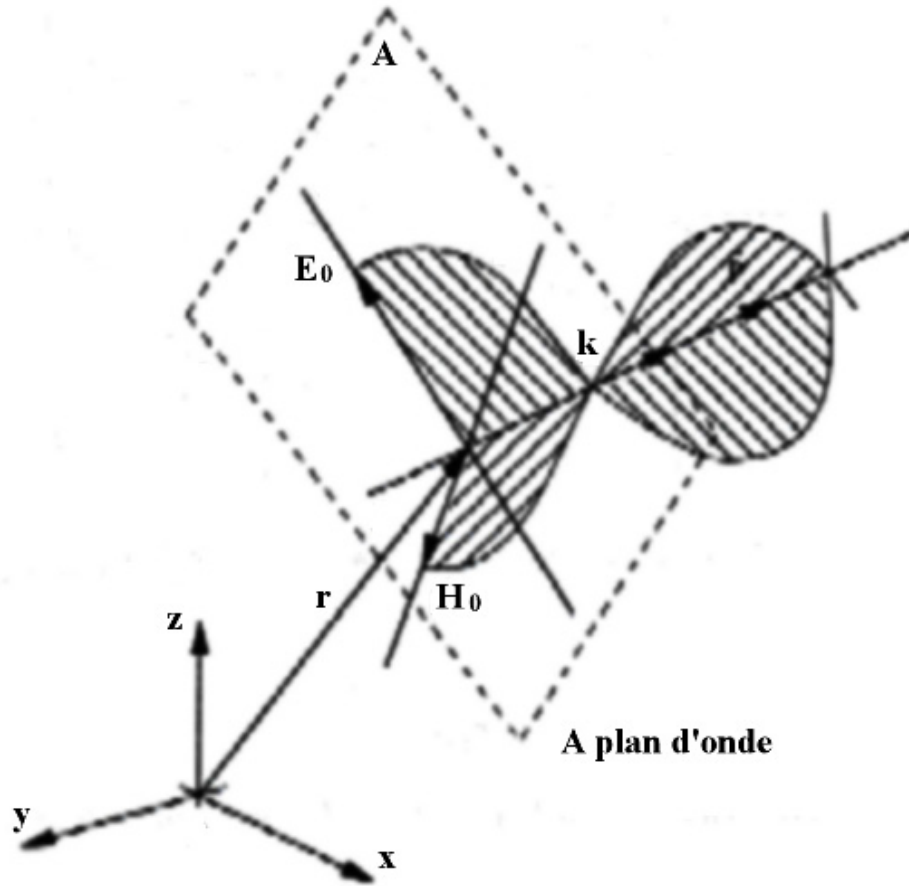


Figure 2-3 : Une onde électromagnétique plane

La puissance transportée par l'onde à travers une surface unité perpendiculaire à $\mathbf{k}$ est donnée par l'amplitude du vecteur de Poynting $\mathbf{P}$ (W/m^2) défini par :

$$\mathbf{P} = \mathbf{E} \wedge \mathbf{H} \quad (2.21)$$

Dans le cas d'une onde plane :

$$\mathbf{P} = (\mathbf{E}_0 \wedge \mathbf{H}_0) \cos^2(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \varphi_0) \quad (2.22)$$

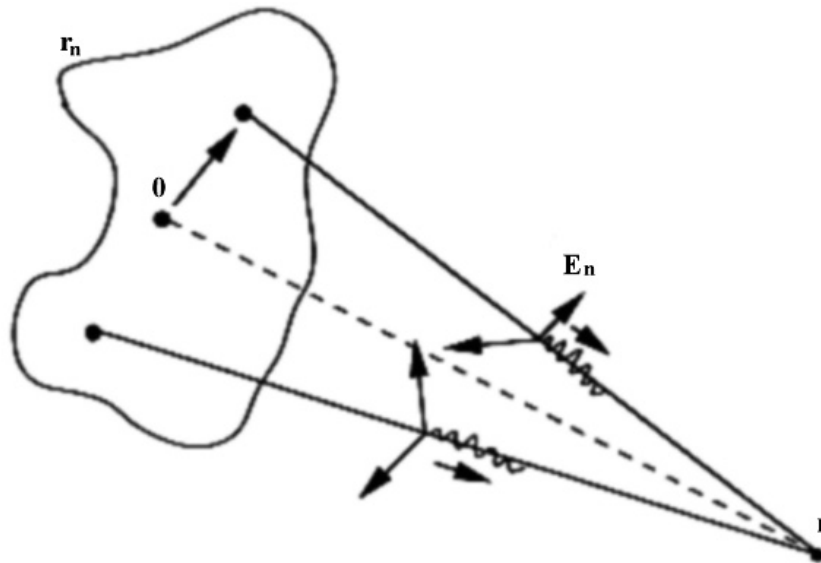


Figure 2-4 : Etude pour le vecteur de Poynting

En un point représenté par le vecteur-position $\mathbf{r}$ fixé (figure 2-4), le module du vecteur de Poynting varie très rapidement au cours du temps (exemple pour $\lambda=0,8 \mu\text{m}$, la période est de $2,67 \cdot 10^{-15} \text{ s}$) et les détecteurs usuels (œil $0,1\text{s}$, film photographique environ la milliseconde, photodiode, ...) ne mesurent qu'une valeur moyenne temporelle $\langle \mathbf{P} \rangle$ qui est l'intensité $I(\mathbf{r}, t)$ telle que :

$$I(\mathbf{r}, t) = \langle \mathbf{P} \rangle = \frac{1}{T} \int_t^{t+T} |\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)| dt \quad (2.23)$$

Où T est très grand devant $\frac{2\pi}{\omega}$

Cette grandeur I correspond à la puissance par unité de surface et s'exprime en W/m^2 , elle s'appelle intensité d'éclairement, ou densité de flux d'éclairement.

Pour une onde plane, on obtient :

$$I(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \cdot c \langle \mathbf{E}^2 \rangle = \frac{\varepsilon_0 \cdot c}{2} |\mathbf{E}_0|^2 \quad (2.24)$$

Avec ε_0 : permittivité du vide ($\varepsilon_0 = 8,854187 \times 10^{-12} \text{ F/m}$).

2.2.2 Aspect quantique de la lumière

La lumière possède deux descriptions : l'aspect vibratoire et l'aspect quantique (la particule élémentaire s'appelle photon). Pour une onde monochromatique, chaque photon transporte un quantum (une certaine quantité

indivisible) d'énergie $h\nu$ (h constante de Planck et $\nu = \frac{\omega}{2\pi}$). La densité du flux de photons Φ à travers une surface unité au point $\mathbf{r}$ est alors exprimé par $\Phi = \frac{I}{h\nu}$.

L'émission de l'onde lumineuse prend naissance lors de la transition descendante d'un électron entre deux niveaux d'un atome de la source. L'énergie perdue par l'électron est égale à $h\nu$, énergie emportée par le photon. La durée de transition entre deux niveaux d'énergie est très courte (de l'ordre de la 10^{-9} s).

Les atomes émettent des photons aléatoirement dans le temps les uns par rapport aux autres. Pour chaque photon, la direction du champ électrique $\mathbf{E}_n$ associé à la $n^{\text{ième}}$ vibration varie elle aussi de façon aléatoire. Pour l'onde électromagnétique de fréquence ν en un point $\mathbf{r}$, nous obtenons une superposition de toutes les ondes élémentaires $\mathbf{E}_n$ oscillant à la même fréquence émise par chaque atome, soit :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_n \mathbf{E}_n(\mathbf{r}, t - t_n) \quad (2.25)$$

Où apparaissent les retards aléatoires t_n . En fait, t_n est la somme de deux termes : $t_n = \tau_n + \delta_n$

- le premier terme prend en compte les retards aléatoires d'émission des ondes au niveau de chaque atome
- le second est le temps nécessaire à l'onde pour franchir la distance $|\mathbf{r} - \mathbf{r}_n|$ séparant le point de mesure de la position $\mathbf{r}_n$ de l'atome émetteur.

Les ondes $\mathbf{E}_n$ provenant de la même transition ont toutes la même structure. Cependant les directions de ces vecteurs sont aléatoires. Dans ces conditions, il n'existe pas de relation de phase entre ses 3 composantes E_x , E_y , E_z . Au point $\mathbf{r}$, la normale à la surface d'onde porte le vecteur d'onde $\mathbf{k}$ et on a $\mathbf{E} \cdot \mathbf{k} = 0$, comme pour une onde plane. En orientant l'axe Oz parallèlement à $\mathbf{k}$, la composante E_z est nulle en $\mathbf{r}$. L'intensité $I(\mathbf{r}, t)$ s'exprime par :

$$I(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \cdot c \langle \mathbf{E}^2 \rangle = \frac{\varepsilon_0 \cdot c}{2} \left[\langle E_x^2 \rangle + \langle E_y^2 \rangle \right] \quad (2.26)$$

Comme la lumière n'a aucune direction privilégiée,

$$\langle E_x^2 \rangle = \langle E_y^2 \rangle \quad (2.27)$$

On voit qu'il est alors possible de remplacer la description vectorielle par la description scalaire, où seule l'amplitude instantanée E mesurée sur un axe arbitraire est considérée, la direction du champ étant ignorée. L'intensité s'écrit alors :

$$I(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 c \langle E^2 \rangle \quad (2.28)$$

2.2.3 Polarisation de la lumière

Contrairement au son, qui se décrit entièrement par l'intensité de l'onde, la lumière nécessite deux éléments supplémentaires : la polarisation et la phase. La lumière diffusée peut être polarisée alors que la lumière incidente naturelle ne l'est pas.

2.2.3.1 Représentation de la polarisation de la lumière

Les ondes lumineuses sont dites polarisées lorsque les champs $\mathbf{E}$ et $\mathbf{H}$ gardent une direction ou un formalisme (circulaire, elliptique, ...) déterminé au cours de la propagation. Le plan défini par $\mathbf{E}$ et le vecteur $\mathbf{k}$ est appelé plan de polarisation.

Dans le cas d'une onde plane, le vecteur champ électrique $\mathbf{E}$ peut s'écrire sous la forme suivante :

$$\mathbf{E} = \mathbf{a} \cos(\mathbf{k} \cdot \mathbf{z} - \omega t) + \mathbf{b} \sin(\mathbf{k} \cdot \mathbf{z} - \omega t) \quad (2.29)$$

$\mathbf{a}$ et $\mathbf{b}$ sont deux vecteurs constants et perpendiculaires entre eux ($\mathbf{a} \cdot \mathbf{b} = 0$), ainsi qu'à la direction de polarisation ($\mathbf{a} \cdot \mathbf{k} = \mathbf{b} \cdot \mathbf{k} = 0$).

A z donné, l'extrémité du vecteur $\mathbf{E}$ décrit une ellipse de vibration (figure 2-5). La forme de cette ellipse représente l'état de polarisation de l'onde électromagnétique.

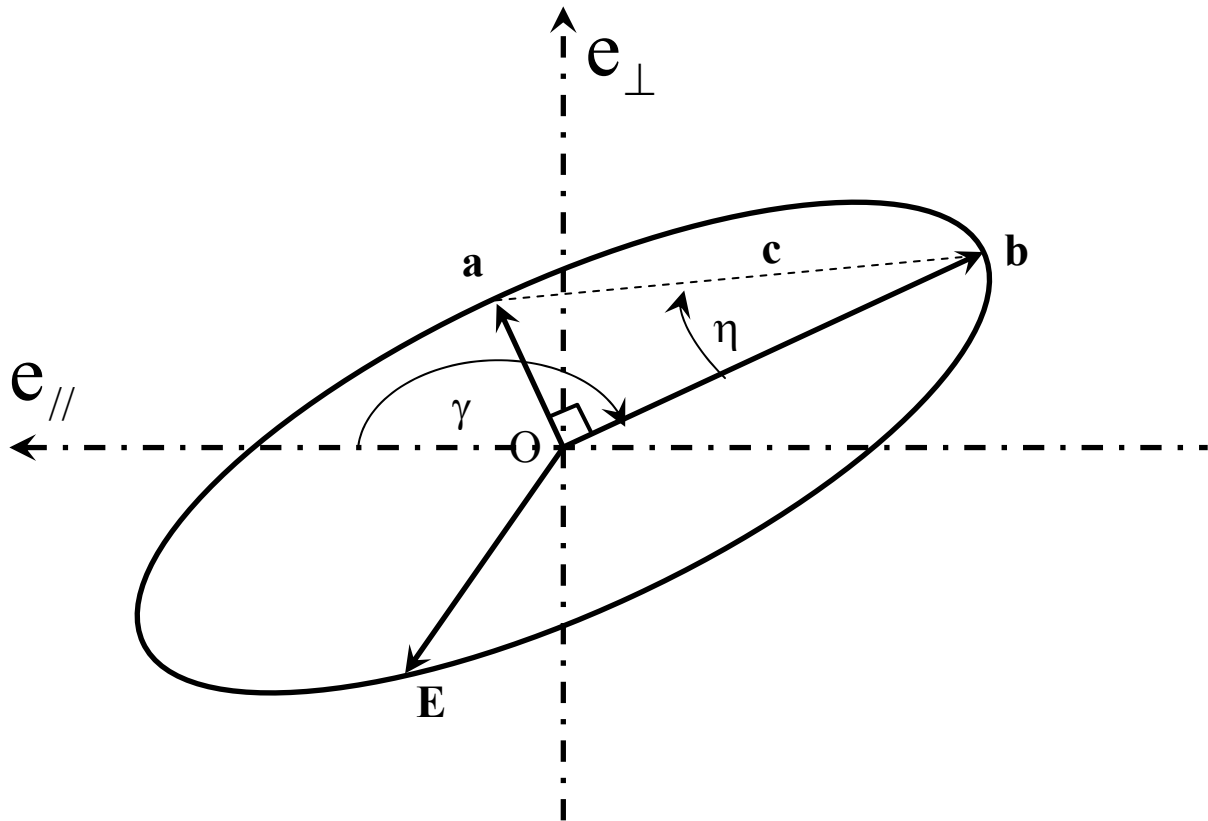


Figure 2-5 : Diagramme de l'ellipse de polarisation

On définit les paramètres suivants :

$c = \sqrt{a^2 + b^2}$ représente l'amplitude de l'ellipse

$|\tan(\eta)| = \frac{a}{b}$ représente l'excentricité de l'ellipse

γ représente l'angle entre $e_{//}$ et le grand axe de l'ellipse (positif dans le sens horaire).

2.2.3.2 Les paramètres de Stokes

Les paramètres de Stokes sont utilisés pour décrire l'état de polarisation de la lumière. Ils se déduisent des paramètres de l'ellipse. Ces paramètres ont l'avantage d'être facilement mesurables (Boren et al, 1993).

Ces paramètres ont été définis de la façon suivante par Stokes en 1852 :

$$\begin{aligned}
 I &= c^2 \\
 Q &= c^2 \cdot \cos(2\eta) \cdot \cos(2\gamma) \\
 U &= c^2 \cdot \cos(2\eta) \cdot \sin(2\gamma) \\
 V &= c^2 \cdot \sin(2\eta)
 \end{aligned}
 \tag{2.30}$$

La grandeur I correspondant au carré de l'amplitude du champ électrique, est en fait l'intensité de l'onde au facteur $\frac{k}{2\omega\mu_0}$ près.

μ_0 : perméabilité du vide ($4\pi \cdot 10^{-7}$ H/m) et $\mu_0 \varepsilon_0 c^2 = 1$

Le tableau suivant donne les valeurs (normalisées par c^2) des paramètres de Stokes pour des états de polarisations usuelles.

	Non polarisée	Polarisation linéaire				Polarisation circulaire	
		$\gamma = 0^\circ$	$\gamma = 90^\circ$	$\gamma = 45^\circ$	$\gamma = -45^\circ$	à gauche	à droite
I	1	1	1	1	1	1	1
Q	0	1	-1	0	0	0	0
U	0	0	0	1	-1	0	0
V	0	0	0	0	0	-1	1

Tableau 2-1 : Tableau des paramètres de Stokes pour des états de polarisations usuelles.

2.2.3.3 La matrice des amplitudes

Une particule éclairée par une onde plane incidente de champ électrique $\mathbf{E}_{\text{inc}}$ émet une onde diffusée $\mathbf{E}_{\text{diff}}$. Il est possible d'exprimer les composantes parallèle et perpendiculaire du champ électrique diffusé en fonction du champ incident $\mathbf{E}_{\text{inc}}$ sous la forme :

$$\mathbf{E}_{\text{diff}} = \mathbf{S} \cdot \mathbf{E}_{\text{inc}} \tag{2.31}$$

$\mathbf{S}$ représente la matrice des amplitudes ou matrice de Mueller (Mueller, 1948). Pour une particule de forme quelconque,

$$\mathbf{S} = \begin{pmatrix} S_2 & S_3 \\ S_4 & S_1 \end{pmatrix} \tag{2.32}$$

Dans tout ce qui suivra, nous ferons l'hypothèse que le champ électrique diffusé est sphérique, donc il vérifie :

$$\mathbf{E}_{\text{diff}} = \frac{\mathbf{E} e^{jkr}}{-jkr} \quad (2.33)$$

où r est l'abscisse radiale, k le nombre d'onde ($k = \frac{2\pi}{\lambda}$), j imaginaire pur.

Cette hypothèse est vraie pour les particules sphériques ou orientées aléatoirement.

Avec cette hypothèse, l'équation 2-31 devient :

$$\mathbf{E}_{\text{diff}} = \begin{pmatrix} E_{//\text{diff}} \\ E_{\perp\text{diff}} \end{pmatrix} = \frac{e^{jkr}}{-jkr} \begin{pmatrix} S_2 & 0 \\ 0 & S_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{//\text{inc}} \\ E_{\perp\text{inc}} \end{pmatrix} \quad (2.34)$$

Avec $E_{//\text{diff}}$: composante parallèle du champ diffusé

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

$E_{//\text{inc}}$: composante parallèle du champ incident

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

S_i ($i = 1$ à 4) : les fonctions d'amplitudes sont complexes et dépendent de θ et ϕ .

2.2.3.4 La matrice de diffusion

A partir de l'équation 2-32, la matrice de diffusion S_{ij} peut être écrite :

$$\begin{pmatrix} I_{\text{diff}} \\ Q_{\text{diff}} \\ U_{\text{diff}} \\ V_{\text{diff}} \end{pmatrix} = \frac{1}{k^2 r^2} \begin{pmatrix} S_{11} & S_{12} & S_{13} & S_{14} \\ S_{21} & S_{22} & S_{23} & S_{24} \\ S_{31} & S_{32} & S_{33} & S_{34} \\ S_{41} & S_{42} & S_{43} & S_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I_{\text{inc}} \\ Q_{\text{inc}} \\ U_{\text{inc}} \\ V_{\text{inc}} \end{pmatrix} \quad (2.35)$$

Les paramètres S_{ij} dépendent de la particule (forme, taille, nature).

Dans le cas d'une particule sphérique ou orientée aléatoirement, les éléments S_3 et S_4 de la matrice des amplitudes sont nuls (équation 2.32).

La matrice de diffusion devient :

$$\begin{pmatrix} I_{diff} \\ Q_{diff} \\ U_{diff} \\ V_{diff} \end{pmatrix} = \frac{1}{k^2 r^2} \begin{pmatrix} S_{11} & S_{12} & 0 & 0 \\ S_{12} & S_{11} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & S_{33} & S_{34} \\ 0 & 0 & -S_{34} & S_{33} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I_{inc} \\ Q_{inc} \\ U_{inc} \\ V_{inc} \end{pmatrix} \quad (2.36)$$

$$\begin{aligned} S_{11} &= \frac{1}{2} (|S_2|^2 + |S_1|^2) \\ S_{12} &= \frac{1}{2} (|S_2|^2 - |S_1|^2) \\ S_{33} &= \text{Re}(S_1 S_2^*) \\ S_{34} &= \text{Im}(S_2 S_1^*) \end{aligned} \quad (2.37)$$

Les paramètres de Stokes de l'onde diffusée sont une combinaison linéaire des paramètres de Stokes de l'onde incidente. Les éléments de la matrice de diffusion se déduisent des éléments de la matrice des amplitudes (Abhyankar et al., 1969).

La matrice de diffusion S permet de calculer I_{diff} en fonction de I_{inc} et par conséquent les sections efficaces.

2.2.3.5 Degré de polarisation linéaire

On définit le degré de polarisation linéaire $^{\circ}P$ par :

$$^{\circ}P = \frac{I_{\perp} - I_{\parallel}}{I_{\perp} + I_{\parallel}} = -\frac{S_{12}}{S_{11}} \quad (2.38)$$

avec $I_{\parallel}$: intensité de la lumière diffusée suivant la direction parallèle par rapport au plan de diffusion. $I_{\parallel}$ est proportionnelle à $S_{11} + S_{12}$.

$I_{\perp}$: intensité de la lumière diffusée suivant la direction perpendiculaire par rapport au plan de diffusion. $I_{\perp}$ est proportionnelle à $S_{11} - S_{12}$.

Par la suite, lorsque les termes parallèle ou perpendiculaire seront utilisés seuls, la référence sera le plan de diffusion.

2.2.4 Diffraction, réfraction et réflexion

Les propriétés physiques de la lumière diffusée par les petites particules peuvent être décrites par les effets combinés et mutuellement interférant de la

diffraction, de la réfraction et de la réflexion. La réflexion est un phénomène bien connu mais elle contribue pour moins de 5% à la diffusion (Van de Hulst, 1957). Par conséquent, nous ne parlerons plus de cet effet.

2.2.4.1 Rôle de la diffraction

La diffraction est un effet de bord. Cela se passe quand le front d'onde passe près de la particule. Une fraction du rayonnement proche du bord de la particule se courbe vers la particule pour « éclairer son ombre ». On peut montrer que la lumière diffractée est proportionnelle à la surface projetée de la particule. Ce phénomène a lieu quelle que soit la forme de la particule.

La section efficace d'extinction pour une grosse sphère est composée de la section efficace réfractée $\frac{\pi D^2}{4}$ et de la section efficace diffractée qui vaut aussi $\frac{\pi D^2}{4}$. Ceci explique le paradoxe de la diffraction : l'efficacité de d'extinction pour les grosses particules vaut 2 (Van de Hulst, 1957).

2.2.4.2 Rôle de l'indice de réfraction (complexe)

L'indice de réfraction joue un rôle important dans l'extinction :

- déviation de la direction du front d'onde (effet lentille)
- dissipation (absorption)

L'indice de réfraction est responsable de la courbure du front d'onde arrivant sur une particule et ceci de la même manière que les effets observés dans les lentilles. Pour un petit indice de réfraction m , la courbure est faible, alors que pour un m grand la dispersion est grande.

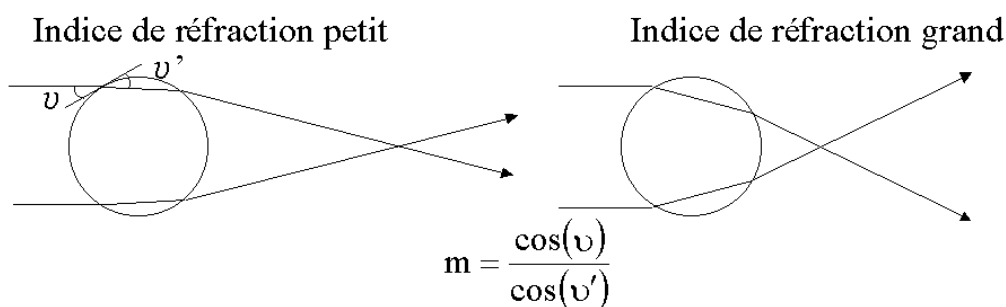


Figure 2-6 : Effet de l'indice de réfraction

Pour les milieux absorbants, comme les oxydes métalliques et le carbone, l'indice de réfraction m est complexe. L'onde réfractée est maintenant hétérogène, avec un décroissement de l'amplitude de la luminance énergétique quand elle pénètre dans la particule.

L'indice de réfraction m peut s'exprimer par $m = n + \chi i$ où n est la partie réelle et χ la partie imaginaire de l'indice de réfraction.

2.3 Diffusion de la lumière par une goutte

Pour étudier la diffusion par une goutte sphérique, trois possibilités existent suivant le rapport de la taille de la particule sur la longueur d'onde : la théorie de Rayleigh, la théorie de Mie et la théorie de l'optique géométrique.

2.3.1 Paramètre de taille

La taille d'une particule est définie par son paramètre de taille α qui est le rapport de son périmètre sur la longueur d'onde λ de la lumière incidente :

$$\alpha = k.r = \frac{2\pi r}{\lambda} = \frac{\pi D}{\lambda} \quad (2.39)$$

Avec α paramètre de taille [sans dimension]

λ longueur d'onde de la lumière incidente [dimension d'une longueur].

D diamètre de la particule [dimension d'une longueur] (si la particule est sphérique)

k nombre d'onde

λ et D doivent être dans la même unité.

2.3.2 La théorie de Rayleigh

La théorie de Rayleigh est appliquée pour $\alpha \ll 1$. C'est typiquement le cas d'étude de la diffusion de lumière par les molécules ou par les particules de très petite taille.

La section efficace différentielle de diffusion (figure 2-7) s'écrit :

$$\begin{aligned}\sigma_{//}(\theta) &= \frac{\pi^4 D^6}{8\lambda^4} \left(\frac{n-1}{n+2} \right)^2 \cos^2(\theta) \\ \sigma_{\perp}(\theta) &= \frac{\pi^4 D^6}{8\lambda^4} \left(\frac{n-1}{n+2} \right)^2 \\ \sigma(\theta) &= \frac{\pi^4 D^6}{8\lambda^4} \left(\frac{n-1}{n+2} \right)^2 (1 + \cos^2(\theta))\end{aligned}\tag{2.40}$$

Avec n : l'indice de réfraction de l'aérosol.

D : diamètre de la particule

λ : longueur d'onde

θ : angle de diffusion

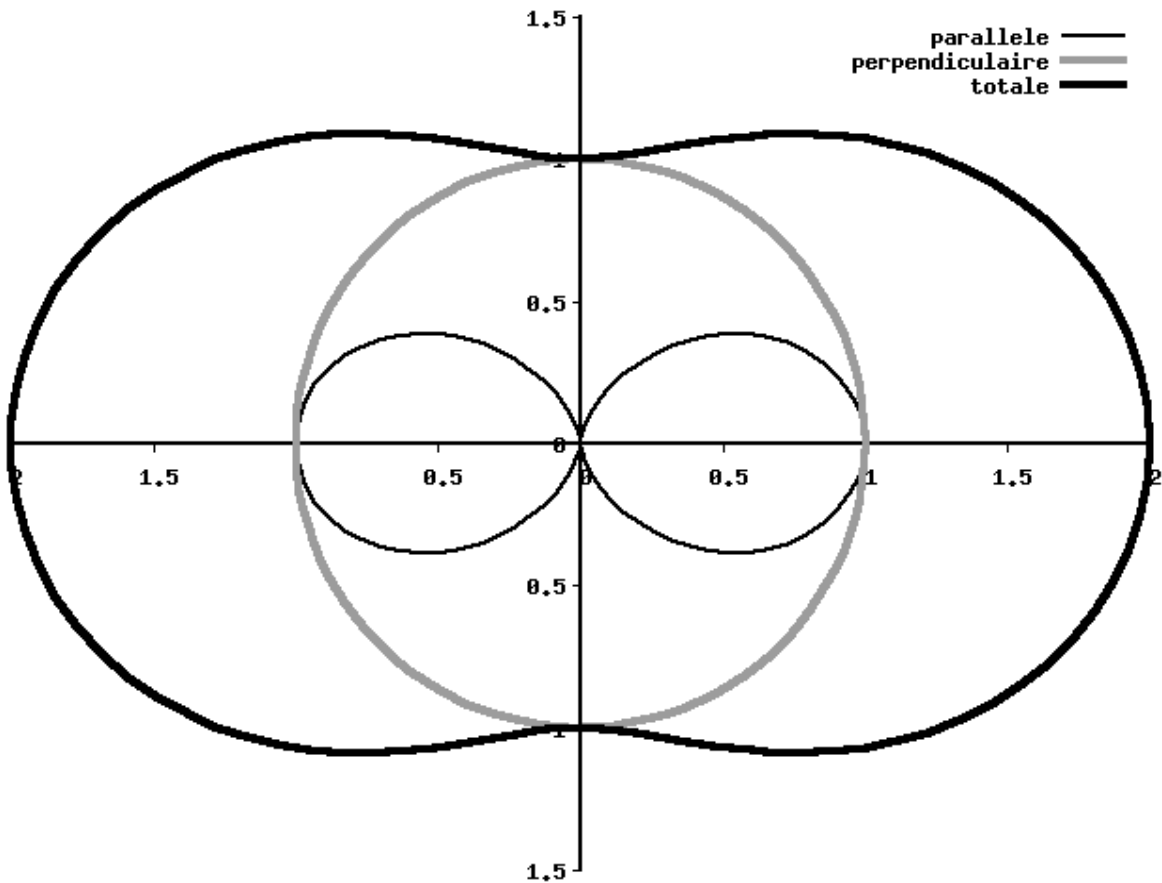


Figure 2-7 : Fonction de phase en coordonnées polaires pour de très petites particules (diffusion en Rayleigh)

Pour les particules répondant à la théorie de Rayleigh, le coefficient d'asymétrie g est nul.

2.3.3 Théorie de l'optique géométrique

Cette théorie s'applique pour les grosses particules ($\alpha \gg 1$). Cette méthode utilise les lois de Descartes (réflexion, réfraction, ...). Elle est utilisée dans les méthodes de ray-tracing ou lancers de photons.

2.3.4 Théorie de Lorenz - Mie

La théorie de Lorenz-Mie est utilisée pour les particules de tailles intermédiaires. Si la théorie de Mie est utilisée pour des particules de très petites tailles, la théorie de Rayleigh est retrouvée et avec des particules de grandes tailles, les résultats de l'optique géométrique se vérifient.

En principe, l'interaction de la particule avec le rayonnement électromagnétique incident peut être déterminée en résolvant les équations de Maxwell avec les conditions aux limites correspondant à la forme de la particule. Cependant, il existe des solutions pour certaines formes comme les sphères, les ellipsoïdes et les cylindres infinies (Van de Hulst, 1957 ; Barber and Hill, 1990).

Gustav Mie (1908) a fourni la première solution des équations de Maxwell pour les diélectriques et des sphères. Il a pris comme point de départ l'équation d'onde :

$$\Delta\Psi + \left(\frac{2\pi m}{\lambda}\right)^2 \Psi = 0 \quad (2.41)$$

Cette équation doit être satisfaite à la fois par les champs électriques et par les champs magnétiques. Cette équation est résolue pour l'intérieur et l'extérieur de la particule, de telle sorte que les solutions convergent aux limites de la particule. La méthode de séparation des variables permet d'arriver à une solution formelle qui peut être décrite avec l'utilisation des fonctions de Bessel.

Les solutions de Mie, pour l'équation de l'onde sphérique pour une sphère homogène, sont :

$$\begin{aligned} S_1(\theta) &= \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \{a_n(\alpha, m)\pi_n(\cos\theta) + b_n(\alpha, m)\tau_n(\cos\theta)\} \\ S_2(\theta) &= \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \{b_n(\alpha, m)\pi_n(\cos\theta) + a_n(\alpha, m)\tau_n(\cos\theta)\} \end{aligned} \quad (2.42)$$

Pour obtenir les sections efficaces dans le cadre de la lumière incidente non-polarisée, il faut utiliser :

$$\sigma(\theta) = \frac{|S_1(\theta)|^2 + |S_2(\theta)|^2}{2k^2} \quad (2.43)$$

La partie S_1 correspond à la polarisation perpendiculaire et S_2 à la polarisation parallèle.

π_n et τ_n sont les fonctions angulaires dérivées des polynômes de Legendre. Elles se calculent par récurrence :

$$\begin{aligned} \pi_0(\theta) &= 0 \\ \pi_1(\theta) &= 1 \\ \pi_n(\theta) &= \frac{2n-1}{n-1} \cos \theta \pi_{n-1} - \frac{n}{n-1} \pi_{n-2} \\ \tau_n &= n \cos \theta \pi_n - (n+1) \pi_{n-1} \end{aligned} \quad (2.44)$$

L'une des parties les plus complexes est le calcul des coefficients a_n et b_n . Ces coefficients font intervenir le paramètre de taille α , l'indice de réfraction complexe m et les fonctions de Bessel (Van de Hulst, 1957). Différentes techniques existent pour améliorer leur temps de calcul et leur précision (Barber and Hill, 1990, Shen and Cai, 2005).

2.3.5 Particules non-sphériques

Pour les particules de très petites tailles, la théorie de Rayleigh reste valable. Pour les grosses particules, l'optique géométrique (le lancer de rayons) est utilisable. Pour les particules de tailles intermédiaires et de formes assez simples (symétrie de révolution par exemple), il existe des théories pour différentes formes et pour différentes tailles de particules. Par exemple, la théorie T-matrix (Mishchenko et al., 1996) permet un calcul assez rapide pour les particules ellipsoïdes aplaties ou allongées. Pour des formes complexes ou quelconques, des théories commencent à être élaborées (Mishchenko et al., 2000) telles que les méthodes des éléments finis (Silvester et Ferrari, 1996) ou méthode du « Finite Difference Time Domain » (Yang et Liou, 1998). Ces techniques sont très précises mais très coûteuses en temps de calcul, ce qui constitue leur principal handicap.

2.4 Diffusion par un spectre de gouttes sphériques

Jusqu'à maintenant, nous avons vu comment utiliser différentes méthodes pour calculer la diffusion par une particule isolée. Dans ce chapitre, l'étude par une population de sphères va être étudiée. Une étude de la sensibilité de l'indicatrice de diffusion aux caractéristiques de cette population (taille, largeur du spectre et indice de réfraction complexe) est l'objet de ce paragraphe. Ces paramètres sont ceux que l'on souhaite retrouver avec notre instrument.

2.4.1 Calcul de la courbe de diffusion avec un spectre

La diffusion de la lumière est additive : l'énergie totale diffusée est la somme des énergies diffusées par chaque particule. C'est la diffusion simple.

Ceci est valable pour une concentration en particules faible (inférieure à 10^6 particules/cm³) (Delmas et al., 2005). Pour les valeurs plus élevées en concentration, il est nécessaire de prendre en compte l'extinction de la lumière incidente. C'est la diffusion multiple.

Comme la plupart des cas étudiés lors de cette thèse sont en diffusion simple, la diffusion multiple ne sera pas abordée.

La section efficace volumique correspond la section efficace différentielle d'une population de particules contenue. Les néphélomètres polaires mesurent une section efficace volumique.

$$\varphi(\theta) = \int_0^\infty \sigma(\theta, D, m) \left(\frac{dN(D, m)}{dD} \right) dD \quad (2.45)$$

Avec N la concentration volumique des particules en nombre/m³. $\varphi(\theta)$ est la section efficace volumique en m²/(m³.sr) ou m⁻¹.sr⁻¹.

Couramment, la distribution n'est pas fournie en nombre, mais en volume. L'équation ci-dessus se transforme en :

$$\varphi(\theta) = \int_0^\infty \sigma(\theta, D, m) \frac{6}{\pi D^3} \frac{d\mathcal{V}(D, m)}{dD} dD \quad (2.46)$$

Avec $\mathcal{V}$ la concentration volumique des particules en volume, soit des m³/m³.

Et sous une forme plus générale pour les distributions en diamètre ou en surface.

$$\varphi(\theta) = \frac{1}{C_p} \int_0^\infty \sigma(\theta, D, m) \left(\frac{2}{D} \right)^p \frac{dX(D, m)}{dD} dD \quad (2.47)$$

Avec $X = N$ pour $p = 0$ (distribution en nombre) ; $X = \mathcal{D}$ pour $p = 1$ (distribution en diamètre) ; $X = S$ pour $p = 2$ (distribution en surface) ; $X = \mathcal{V}$ pour $p = 3$ (distribution en volume)

$C_p = 1$ pour $p = 0$ (distribution en nombre) et $p = 1$ (distribution en diamètre)

$C_p = \pi$ pour $p = 2$ (distribution en surface)

$C_p = 4\pi/3$ pour $p = 3$ (distribution en volume)

Pour effectuer des simulations numériques, il n'est bien sûr pas possible de réaliser l'intégrale du diamètre de 0 à l'infini. Pour cela, il est nécessaire de déterminer correctement les bornes, en prenant garde ne pas oublier des particules même peu nombreuses mais qui peuvent avoir un fort impact sur la diffusion. En effet, les grosses particules ont un impact plus important que les petites.

$k^2 \varphi(\theta)$ est la section efficace volumique qui est normalisée par le nombre d'onde, son unité est $\mu\text{m}^{-3} \cdot \text{sr}^{-1}$.

2.4.2 Définition des paramètres microphysiques

Dans cette section, les paramètres microphysiques seront exposés très brièvement. Seules ceux qui sont utilisés dans cette thèse sont explicités.

Concentration en nombre

$$C_N = \int_0^\infty \frac{dN(D)}{dD} dD = \int_0^\infty \frac{6}{\pi D^3} \left(\frac{d\mathcal{V}(D)}{dD} \right) dD \quad (2.48)$$

$\frac{dN(D)}{dD}$ est la distribution volumique en nombre ($\text{m}^{-3} \cdot \text{m}^{-1}$)

$\frac{d\mathcal{V}(D)}{dD}$ est la distribution volumique en volume ($\text{m}^3 / (\text{m}^3 \cdot \text{m})$)

Concentration en volume

$$C_V = \int_0^{\infty} \frac{\pi D^3}{6} \frac{dN(D)}{dD} dD = \int_0^{\infty} \left(\frac{d\mathcal{V}(D)}{dD} \right) dD \quad (2.49)$$

La concentration en volume correspond au volume total des particules. Pour le cas de gouttes d'eau, la concentration en volume peut aussi exprimer le contenu en eau liquide (LWC, Liquid Water Content, en g/m³). Pour obtenir le LWC, il suffit de multiplier la concentration en volume par la masse volumique de l'eau (1 000 kg/m³).

Diamètre moyen

$$D_m = \frac{\int_0^{\infty} \frac{dN(D)}{dD} D \cdot dD}{C_N} = \frac{\int_0^{\infty} \frac{6}{\pi D^2} \left(\frac{d\mathcal{V}(D)}{dD} \right) dD}{C_N} \quad (2.50)$$

Diamètre volumique médian D03

Le diamètre volumique médian correspond au diamètre tel que le volume des gouttes dont la taille est inférieure à D03 est égal au volume des gouttes dont la taille est supérieure à D03.

$$\int_0^{D03} \left(\frac{d\mathcal{V}(D)}{dD} \right) dD = \int_{D03}^{\infty} \left(\frac{d\mathcal{V}(D)}{dD} \right) dD \quad (2.51)$$

ou

$$\int_0^{D03} \frac{\pi D^3}{6} \frac{dN(D)}{dD} dD = \int_{D03}^{\infty} \frac{\pi D^3}{6} \frac{dN(D)}{dD} dD \quad (2.52)$$

2.4.3 Diffusion par différentes distributions de tailles de gouttes

Dans cette section, les différentes sections efficaces volumiques sont calculées pour des gouttes d'eau avec des spectres différents, afin de pouvoir les comparer et effectuer certaines constatations. La distribution des gouttes est log normal :

$$\frac{d\mathcal{V}(r)}{d \ln r} = \frac{C_V}{\sqrt{2\pi}e} \exp \left[-\frac{(\ln r - \ln r_V)^2}{2e^2} \right] \quad (2.53)$$

avec r_V le rayon volumique médian, e l'écart-type ou largeur (la largeur n'a pas d'unité car c'est l'écart-type du logarithme du rayon) et C_V la concentration.

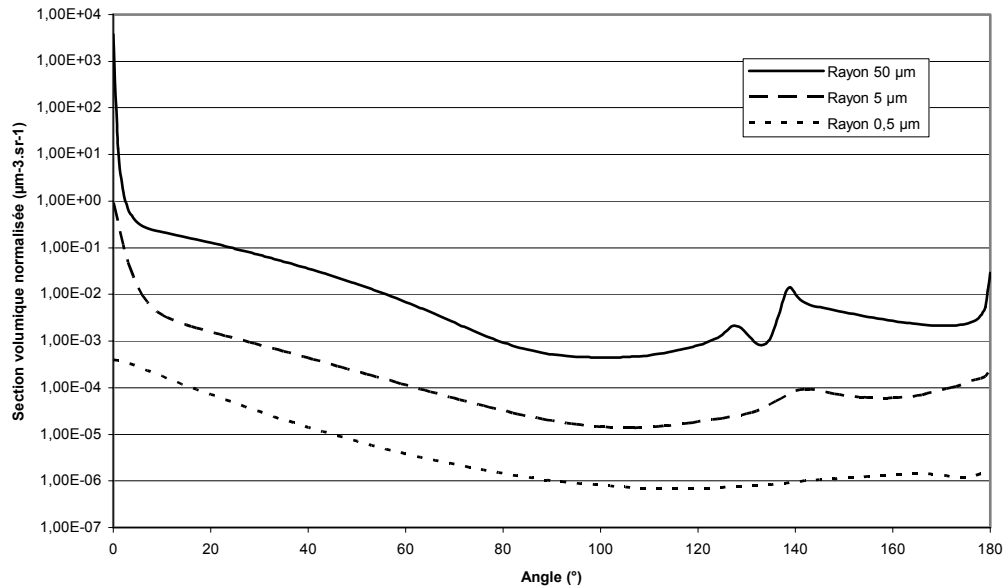


Figure 2-8 : section volumique totale normalisée $k^2\phi(\theta)$ en fonction de l'angle θ de diffusion et pour différents rayons du mode du spectre (indice de réfraction de $1,33+10^{-8}i$, longueur d'onde de 800 nm, $C_N=10^6 \text{ cm}^{-3}$, écart-type=1)

La figure 2-8 représente la section volumique efficace de diffusion pour une population de gouttes. Dans ce graphique, le rayon du mode de la distribution varie de 0,5 μm à 50 μm . La concentration en nombre, qui vaut $10^6 \text{ particules/cm}^3$, ne varie pas, tout comme l'écart-type (valeur de 1) de la distribution monomodale en nombre. L'indice de réfraction est $1,33 + 10^{-8} i$.

On peut remarquer que plus le rayon est grand, plus les particules diffusent et il y a davantage de fluctuations en particulier en rétrodiffusion. Pour les petites particules, il n'y a pas de maximum marqué ou arc-en-ciel. Un seul arc-en-ciel est visible pour les gouttes de 5 μm de rayon et 2 sont visibles pour les grosses gouttes. On peut également remarquer le changement de concavité entre 10 et 70° des sections volumiques avec le changement du diamètre modale des particules.

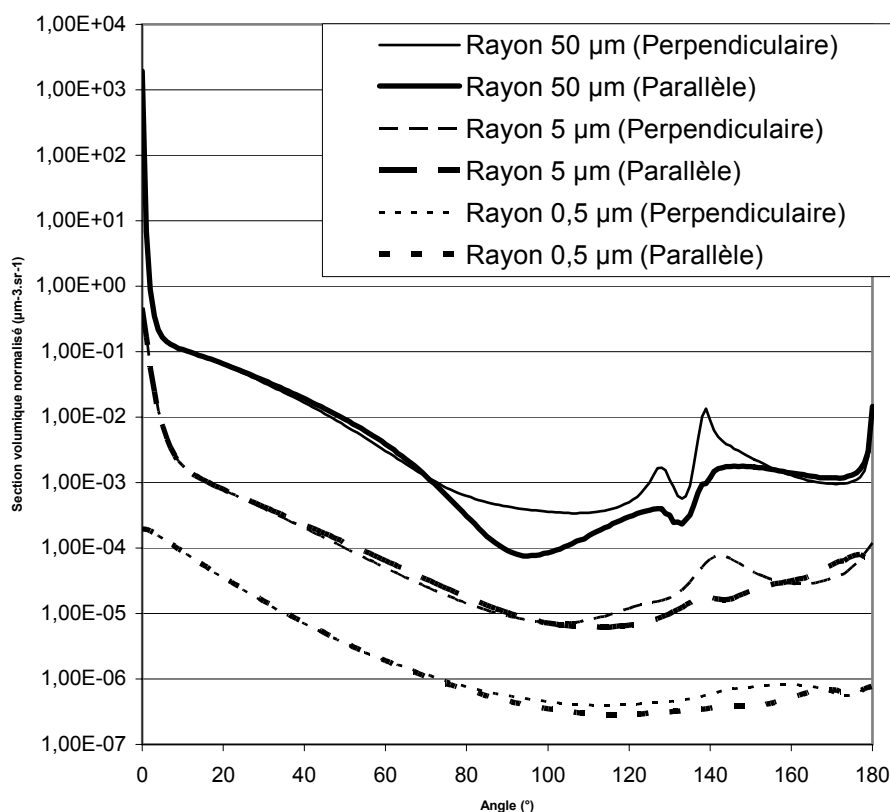


Figure 2-9 : section volumique totale normalisée $k^2\phi(\theta)$ en fonction de l'angle θ de diffusion et pour différents rayons du mode du spectre et différentes polarisations (indice de réfraction de $1,33+10^{-8}i$, longueur d'onde de 800 nm, $C_N=10^6 \text{ cm}^{-3}$, écart-type=1)

Les remarques précédentes pour la diffusion totale sont également valables pour les polarisations parallèle et perpendiculaire au plan d'observation. On peut également constater que les valeurs sont identiques pour les deux polarisations pour les petits angles ($\theta < 25^\circ$). Pour les angles plus grands, on observe plus de fluctuations pour la polarisation perpendiculaire. On peut remarquer que les arcs-en-ciel sont polarisés perpendiculairement.

Le graphique suivant (figure 2-10) présente la même chose que la figure 2-8, mais dans ce cas la largeur de la distribution varie. Le rayon du mode est 5 μm .

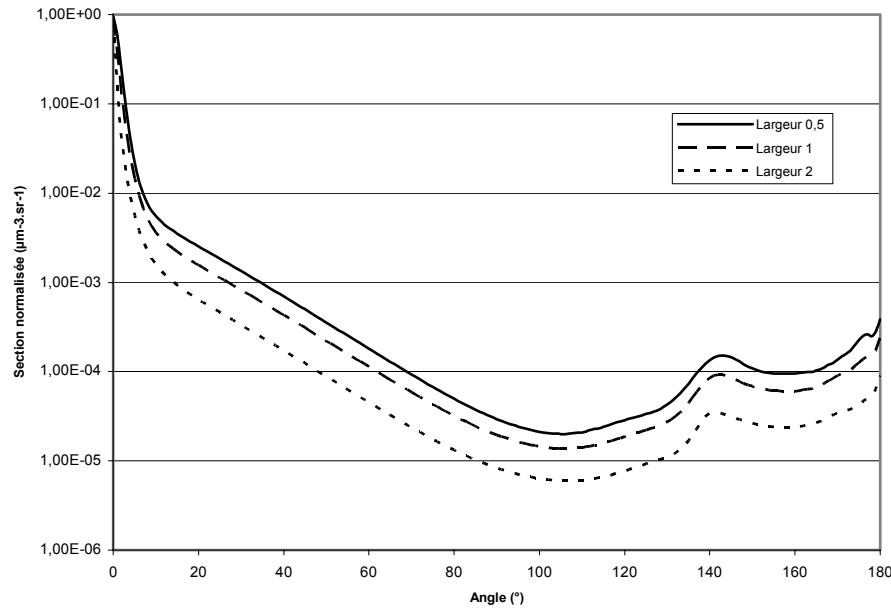


Figure 2-10 : section volumique totale normalisée $k^2\phi(\theta)$ en fonction de l'angle θ de diffusion et pour différentes largeurs du spectre (indice de réfraction de $1,33+10^{-8}i$, longueur d'onde de 800 nm, $C_N = 10^6 \text{ cm}^{-3}$, rayon médian = $5 \mu\text{m}$).

On peut remarquer que plus la largeur est faible et plus la courbe présente des oscillations en rétrodiffusion (vers 175°). Ceci est dû au fait qu'il y a moins de gouttes de tailles différentes qui compensent leurs fluctuations entre elles. La diffusion est moins forte pour une grande largeur. Les grosses gouttes, qui diffusent plus, compensent l'effet des petites gouttes mais le nombre de gouttes moyennes est plus faible car la concentration en particules reste la même (10^6 particules/ cm^3).

2.4.4 Différents indices de réfraction

Les figures 2-11, 2-12 et 2-13 représentent la section efficace volumique de diffusion normalisée d'une population de gouttes suivant l'angle de diffusion. La population est monomodale avec un diamètre volumique médian de $5 \mu\text{m}$ et un écart-type de 1. Pour la figure 2-11, la partie imaginaire de l'indice de réfraction varie de 10^{-8} (particules non-absorbantes) à 1 (particules très absorbantes), la partie réelle est constante et vaut 1,33.

L'eau a un indice imaginaire de $1,25 \cdot 10^{-7}$, les poussières minérales environ de $5 \cdot 10^{-3}$, la suie de 0,43, les particules métalliques autour de 5.

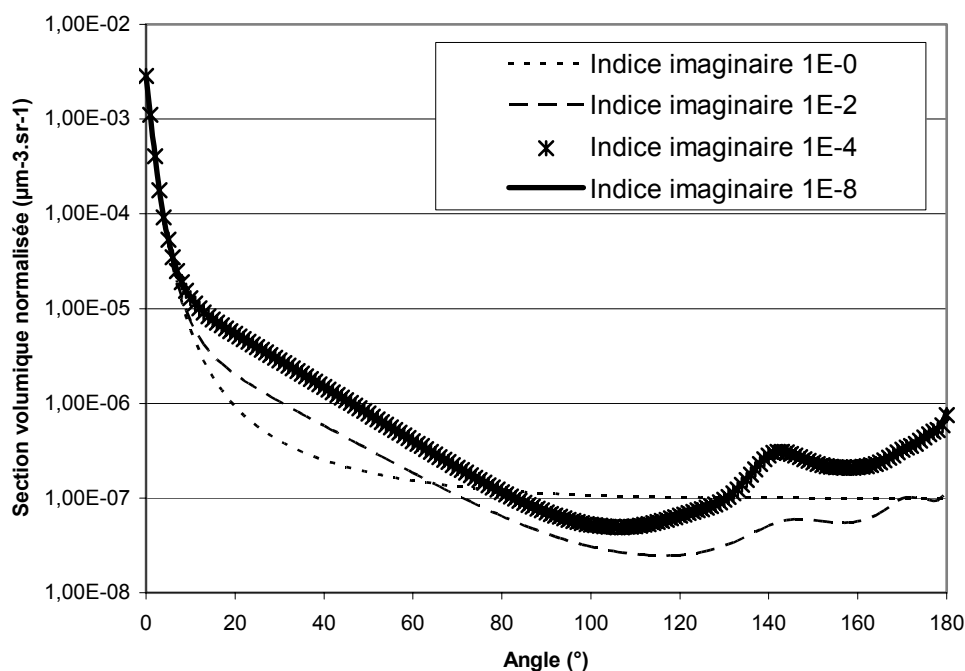


Figure 2-11 : section volumique totale normalisée $k^2\phi(\theta)$ en fonction de l'angle θ de diffusion et pour différents indices imaginaires (indice de réfraction réel de 1,33, longueur d'onde de 800 nm, $C_N=10^6 \text{ cm}^{-3}$, rayon médian = 5 μm , écart-type=1)

On peut remarquer sur ce graphique, que plus la valeur de l'indice imaginaire est importante, plus la courbe s'aplatit dans la région de rétrodiffusion. Ceci est valable quels que soient l'indice réel et la polarisation de la lumière diffusée. Il y a également un changement de concavité pour les angles inférieurs à 90° . Pour des indices imaginaires faibles (inférieur à 10^{-4}), il y a très peu de différences entre les indicatrices de diffusion (courbes obtenues avec $\chi = 10^{-4}$ et $\chi = 10^{-8}$ sont quasiment confondues).

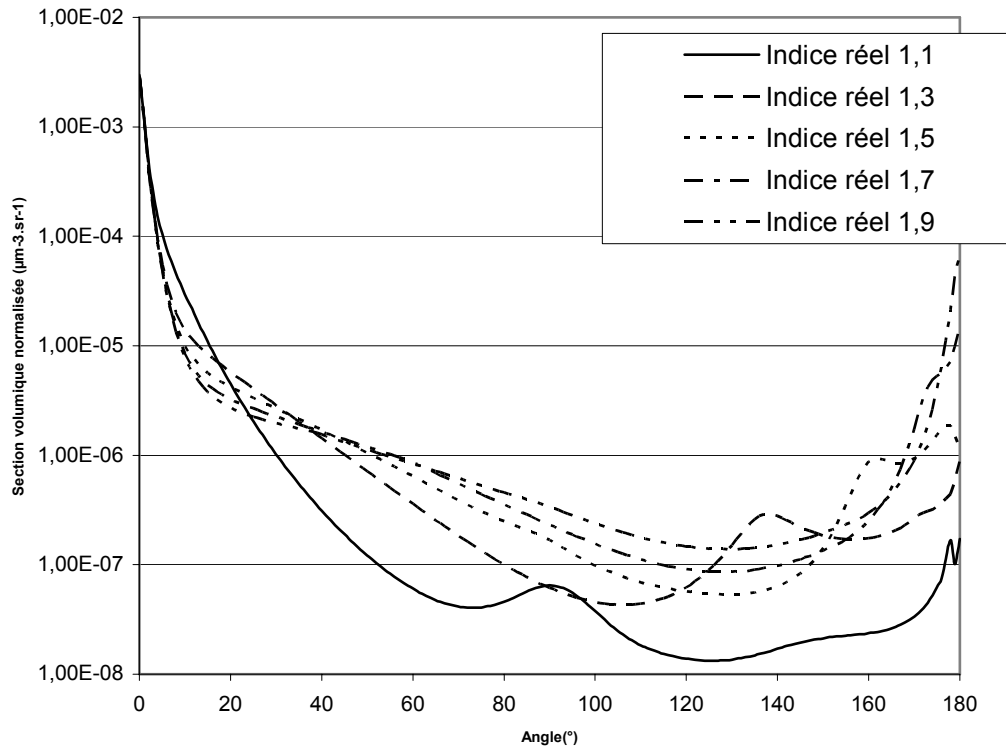


Figure 2-12 : section volumique totale normalisée $k^2\phi(\theta)$ en fonction de l'angle θ de diffusion et pour différents indices réels pour des gouttes faiblement absorbantes (indice de réfraction imaginaire de 10^{-8} , longueur d'onde de 800 nm, $C_N=10^6 \text{ cm}^{-3}$, rayon moyen = 5 μm, écart-type=1)

Pour la figure 2-12, l'indice imaginaire reste constant à 10^{-8} (particules faiblement absorbantes), mais l'indice réel varie de 1,1 à 1,9.

L'eau a un indice réel de 1,33, la glace de 1,31, les poussières minérales de 1,52, la suie de 1,75.

On peut remarquer que les particules diffusent de manière différente suivant leur indice de réfraction réel, en particulier dans la zone de rétrodiffusion. Pour la diffusion avant, il y a assez peu de fluctuations, mais des changements de concavité sont observés.

La figure 2-13 représente la même chose que la figure 2-12 mais l'indice imaginaire vaut 1 (particules fortement absorbantes) au lieu de 10^{-8} .

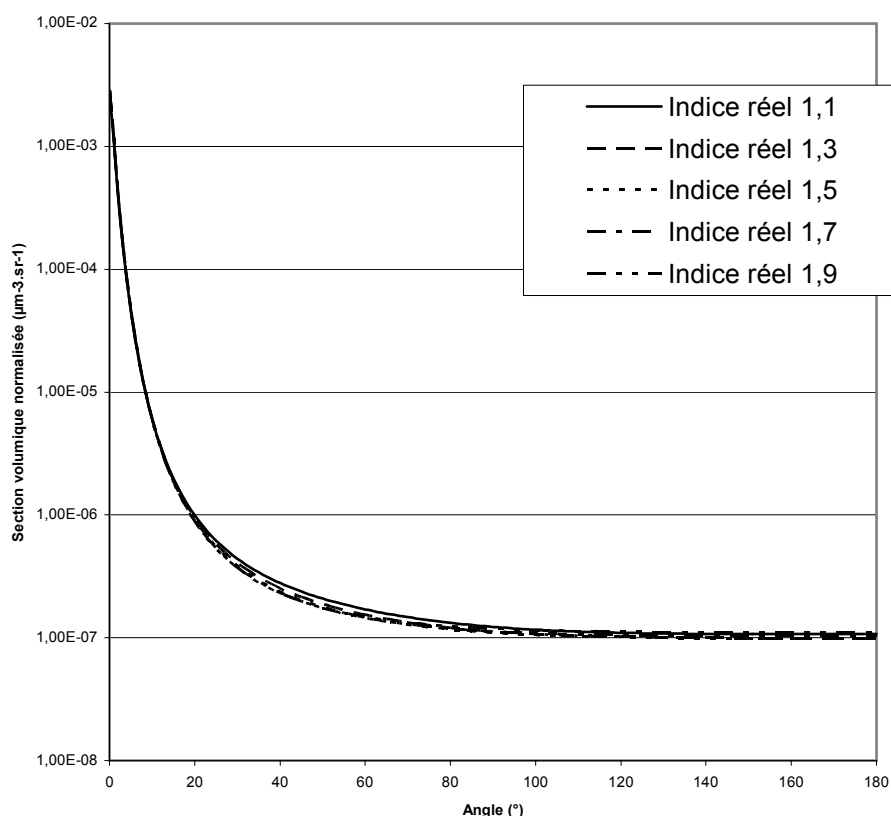


Figure 2-13 : section volumique totale normalisée $k^2\phi(\theta)$ en fonction de l'angle θ de diffusion et pour différents indices réels dans le cas de particules fortement absorbantes (indice de réfraction imaginaire de 1, longueur d'onde de 800 nm, $C_N=10^6 \text{ cm}^{-3}$, rayon moyen = 5 μm , écart-type=1).

Dans le cas d'un indice imaginaire fort ($\chi = 1$), il n'y a plus de différences notables entre les différents indices réels. Ceci est dû au fait que les particules absorbent la lumière et n'en diffusent que très peu.

Ce sont ces différences notées sur ce type de courbes en fonction des caractéristiques du spectre et des indices de réfraction qui vont être exploitées à l'aide de la mesure directe de cette courbe.

Le chapitre suivant va décrire l'appareil permettant de mesurer l'intensité de la lumière diffusée en fonction de l'angle. Puis l'exploitation de ces données sera présentée dans le chapitre 4.

3 Les néphélomètres

Les néphélomètres sont des appareils qui mesurent la lumière diffusée par une population de particules. A partir de ces mesures, des paramètres concernant les particules peuvent être retrouvés grâce à des méthodes d'inversion. Ces méthodes seront détaillées dans le chapitre 4.

Les différents paramètres que l'on souhaite connaître sur les aérosols sont leur spectre ou granulométrie (nombre en fonction de leur taille, concentration) ainsi que leur nature et leur forme.

Nous allons dans ce chapitre, décrire plusieurs appareils qui existent pour mesurer ces particules suivant différentes méthodes. Ensuite différents néphélomètres seront présentés. La description du néphélomètre polaire à double polarisation, ainsi que ses capacités seront détaillés dans la dernière partie.

3.1 Les différents appareils de mesures des aérosols

Les grandes familles d'instruments qui permettent la mesure des propriétés des aérosols seront décrites. Les néphélomètres développés par le LaMP feront partie de cette description.

La figure 3-1 (McMurry, 2000) présente différents instruments selon leur capacité de résolution en taille et en temps. L'instrument idéal est celui qui fournirait une distribution en taille continue ainsi que la composition à n'importe quel moment, c'est la première ligne du tableau. Pour les instruments réels, les limitations dépendent des principes de mesure et de la technologie employée.

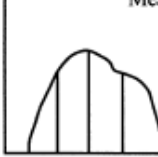
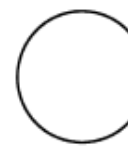
Instrument	Measured Quantity and Resolution		
Perfect Single Particle Measurements of Size-Resolved Composition			
	Distribution Function  Size (Continuous)	Measured Quantity = $N_{\infty} \cdot g dv dn_i$  Time (Continuous)	 Composition (Complete)
Measurements of Integral or Size-Resolved Physical Properties			
“Continuous” measurements of integral properties: CNC CCN mass concentration Epiphaniometer integrating nephelometer photoacoustic spectrometer	Distribution Function  Size	Measured Quantity = $N_{\infty} \cdot \int_0^{\infty} W(v)g(t)dv dn_i$  Time: ~Seconds	 Composition
Time-integrated measurements of size-resolved mass: Cascade Impactor	Distribution Function  Size	Measured Quantity = $N_{\infty} \cdot \int_{v_1}^{v_2} \rho_p \cdot v \cdot g dv dn_i$  Time: Hours	 Composition
Physical size distributions: optical particle counter electrical mobility analyzer aerodynamic particle sizer diffusion battery	Distribution Function  Size	Measured Quantity = $N_{\infty} \cdot \int_{v_1}^{v_2} g dv dn_i$  Time: ~Minutes	 Composition

Figure 3-1 : Quantité et résolution de différents appareils de mesures d’aérosols (d’après McMurry, 2000)

3.1.1 Mesures en masse

Il existe plusieurs techniques pour mesurer la masse des aérosols présents dans un lieu :

- collection sur filtre
- méthode de la jauge β
- microbalance oscillante (Tapered Element Oscillating Microbalance, TEOM)
- et bien d’autres encore

3.1.1.1 Collection sur filtre

La collection sur filtre a été développée pour la mesure de la concentration massique et de la composition chimique. Elle consiste à recueillir sur un filtre une quantité d'aérosols représentative du milieu par aspiration d'un volume. Ce système est en général constitué d'une tête d'échantillonnage, d'un porte-filtre avec filtre, d'un système de mesure et régulation du débit et d'une pompe. Cette méthode est très simple. L'inconvénient de cette méthode est l'analyse a posteriori de l'échantillon. Cette méthode n'est pas adaptée pour une mesure en temps réel.

Les deux méthodes suivantes ont l'avantage de fournir des mesures en temps réel.

3.1.1.2 Méthode de la jauge β

La méthode de la jauge β repose sur le principe que l'absorption des rayons β est quasi-proportionnelle à la masse des particules déposées sur un support. La réduction de l'intensité du faisceau de rayons β permet donc de déduire la masse. Les rayons β sont des électrons émis lors de la désintégration radioactive de certains éléments.

3.1.1.3 Microbalance oscillante (TEOM)

Le TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) est une balance qui utilise un élément conique oscillant à sa fréquence naturelle et d'un microprocesseur. Les particules transitant dans la balance se déposent sur un filtre en haut du cône. Comme la masse du système augmente, la fréquence naturelle de vibration diminue. Grâce à un microprocesseur, la variation de masse est déduite de la variation de la fréquence.

L'inconvénient de ces méthodes de mesure cumulative de la masse, c'est la méconnaissance du spectre de l'aérosol. Ceci est gênant compte tenu de la grande étendue en taille des aérosols. (cf. paragraphe 1.1.1)

3.1.2 Méthodes aérodynamiques

Les méthodes fondées sur les propriétés aérodynamiques sont utilisées pour collecter les particules en fonction de leur taille pour les analyser ensuite. Ces méthodes permettent d'obtenir un spectre plus ou moins résolu.

Les principaux dispositifs utilisant les propriétés de l'inertie sont les impacteurs. Plus l'inertie des particules est grande, plus les trajectoires de ces particules s'écartent des lignes de courant de l'écoulement. Les particules possédant une inertie supérieure à une limite se déposent sur un plateau, car les aérosols ne suivent plus les lignes de courant. En réalité, quelle que soit la forme des particules, la classification s'effectue suivant le « diamètre » de Stokes plutôt qu'en fonction de la taille physique. Le « diamètre » de Stokes se définit comme le diamètre qu'aurait une sphère ayant la trajectoire que la même particule considérée (cf. paragraphe 1.1.2).

3.1.3 Méthodes électriques

Les méthodes électriques reposent sur le fait qu'une particule peut être chargée électriquement de façon naturelle ou artificielle.

Cette propriété peut être utilisée de deux façons différentes ; soit en l'utilisant pour « marquer la présence d'une particule », soit en regardant le déplacement de la particule chargée dans un champ électrique.

Des appareils conjuguent l'effet aérodynamique et le marquage électrique, comme par exemple l'ELPI (Electrical Low Pressure Impactor). Les aérosols sont chargés à l'entrée de l'appareil et un électromètre enregistre les charges à différents étages d'impactions. Ce système permet de retrouver via une inversion le spectre dimensionnel des aérosols de taille comprise entre 15 nm et 10 μm .

Les analyseurs différentiels de mobilité électrique (ADME) utilisent le fait que le mouvement des particules est déterminé par la vitesse du fluide porteur et par l'inflexion de la trajectoire due au champ électrique. Les particules qui ont la mobilité adéquate passent à travers un orifice de sortie. Ces particules peuvent être comptées ensuite par un compteur de particules. Ce système permet d'obtenir la quantité d'aérosols dans un domaine de taille très faible (0,01 à 1 μm).

3.1.4 Méthodes optiques autres que les néphélomètres

Les méthodes optiques reposent sur la diffusion et/ou l'absorption de la lumière. Seuls les appareils les plus utilisés seront décrits dans ce paragraphe.

3.1.4.1 Le compteur optique

Le compteur de particules est fondé sur la mesure de l'intensité diffusée à un angle précis par une particule. Un laser est focalisé sur un volume d'échantillonnage traversé par les particules. Ce volume doit être le plus faible possible afin de n'avoir qu'une seule particule à la fois. La quantité de lumière diffusée est mesurée par un capteur pour un certain angle. Des algorithmes sont utilisés pour retrouver la taille de la particule. L'inconvénient de cet appareil est qu'il est calibré pour des sphères d'indice de réfraction donné et que la concentration est sous évaluée dans le cas où plusieurs particules sont présentes dans le faisceau laser, en même temps que la taille est surestimée.

Les systèmes FSSP et PCASP utilisent ce principe, sauf que la mesure intègre la lumière diffusée entre deux valeurs d'angle.

3.1.4.2 Le lidar

Le lidar (Light Detector And Ranging) est un appareil qui mesure la diffusion arrière (180°) de la lumière par les aérosols présents dans l'atmosphère. Cette lumière rétrodiffusée provient d'un faisceau laser incident de longueur d'onde généralement proche du visible. Ce système permet d'obtenir, via une inversion, la concentration ainsi que son évolution dans le temps et l'espace (souvent la dimension verticale). On peut également obtenir la distribution en taille et la natures de particules atmosphériques, voir une information de non-sphéricité pour les lidars mesurant la polarisation.

3.1.4.3 Mesure par l'extinction

Le principe consiste à mesurer la quantité de lumière que les particules ont absorbée et diffusée. Pour cela, on éclaire un volume contenant des particules avec une source (souvent laser) étalonnée. On mesure dans l'axe de la source, la quantité de lumière. Le rapport des intensités entre la mesure et la source fournit

l'extinction par la population de particules présentes sur le chemin optique du laser.

Schnaiter et al. (2005) a développé un tel instrument qui mesure l'extinction de particules pour des longueurs d'onde allant de 0,2 μm à 1,015 μm .

3.1.4.4 Mesure par photométrie solaire

Le principe repose sur la mesure de l'intensité lumineuse ou la radiance du ciel grâce à des photomètres. La mesure de la radiance est effectuée pour différents angles par rapport à la position du Soleil. Grâce à des inversions, différents paramètres peuvent être restitués tel que l'épaisseur optique, la taille des particules, l'indice de réfraction, ...

Le réseau AERONET (**AE**rosol **RO**botic **NET**work), qui est un réseau mondial de mesure des aérosols, repose sur ce principe.

3.2 Les différents types de néphélomètres

Les néphélomètres reposent sur la mesure de la lumière diffusée par une population de particules contenues dans un volume dit d'échantillonnage. La lumière qui éclaire les particules, provient d'une source connue et incluse dans l'appareil. En général, cette source est un laser.

3.2.1 Néphélomètre intégré

Les néphélomètres intégrés mesurent toute la lumière diffusée entre deux angles. Pour des raisons de sensibilité, l'écart entre ces deux angles est plus ou moins grand. Pour ce genre de néphélomètre (Bodhaine, 1991), le TSI 3568 sera pris comme exemple. Ce néphélomètre, grâce à ces trois filtres, permet d'estimer la dépendance spectrale de certains paramètres optiques tels que l'absorption, la diffusion, l'albédo de diffusion, le paramètre d'asymétrie, ... D'autres paramètres peuvent être retrouvés en faisant des hypothèses.

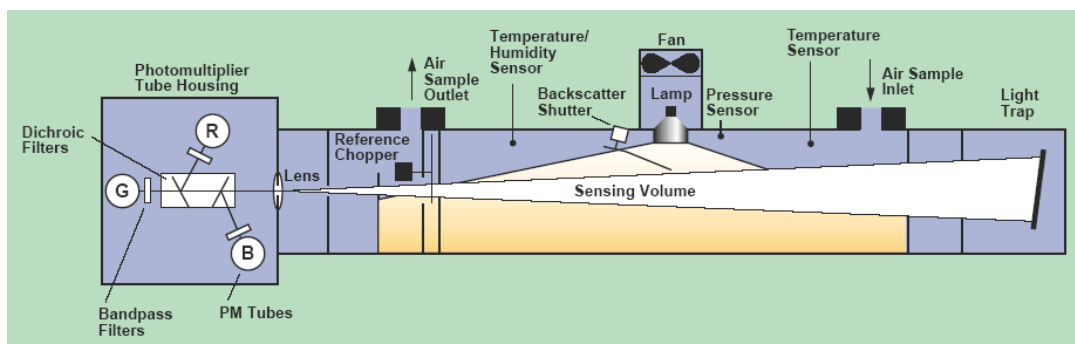


Figure 3-2 : schéma de principe du néphélomètre intégré TSI 3568

Une lampe halogène éclaire le volume d'échantillonnage (figure 3-2). Les particules dans ce volume diffusent la lumière incidente. Trois photomultiplicateurs pourvus chacun de filtres mesurent cette lumière diffusée suivant 3 longueurs d'onde (450 nm, 550 nm, 700 nm). Cet appareil intègre la lumière diffusée entre les angles de 7° à 170° . Un système permet de bloquer la lumière diffusée de 7° à 90° afin de déterminer la proportion de diffusion avant et arrière et par conséquent le coefficient d'asymétrie.

3.2.2 Néphélomètre polaire

Les néphélomètres sont dits polaires parce qu'ils mesurent la lumière diffusée suivant différentes directions dans un plan de diffusion. A partir de ce genre de mesure, tous les paramètres optiques intégraux peuvent être estimés. Ces néphélomètres peuvent avoir plusieurs capteurs : un pour chaque angle de mesure ou un seul capteur mobile.

Gayet et al. (1998) et Barkey et al. (2002) ont développé chacun un néphélomètre qui mesure la diffusion totale de lumière. Ces deux appareils sont conçus pour être montés sur des aéronefs.

Le néphélomètre aéroporté de Gayet conçu et réalisé par le LaMP est rapidement décrit.

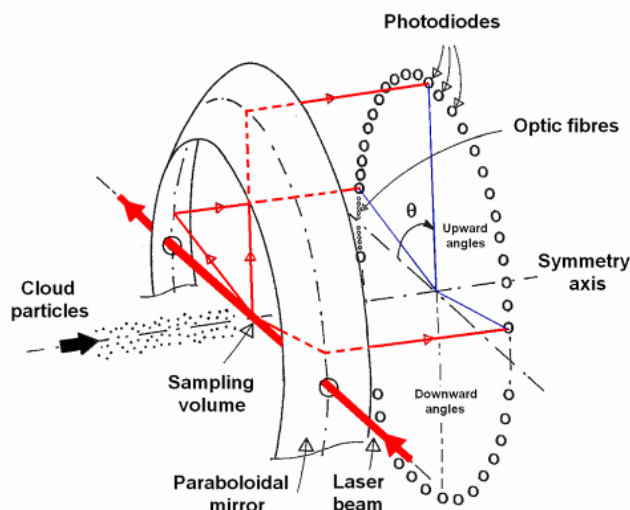


Figure 3-3 : Principe de mesure du néphélomètre aéroporté.

La figure 3-3 rappelle le schéma de principe de cette sonde. Un faisceau laser issu d'une diode laser de forte puissance (≈ 1 W pour 800 nm) est préalablement collimaté sur un diamètre de l'ordre de 5 mm. Le flux de particules nuageuses traverse perpendiculairement le faisceau laser sur une largeur utile de 10 mm, ce qui détermine un volume sensible de mesure d'environ $0,2 \text{ cm}^3$. L'énergie diffusée est mesurée via un miroir parabolique d'une part, sur un ensemble de 31 modules de détection disposés en arc de cercle, et d'autre part par l'intermédiaire de 4 fibres optiques dans la partie proche de la direction incidente, lesquelles sont connectées à des photodiodes. Les angles de mesures vont de $3,5^\circ$ à 169° . La surface active de la photodiode est de $0,25 \text{ mm}^2$. L'électronique de conditionnement procède à l'intégration linéaire du signal issu des photodiodes sur une période déterminée et programmable (entre 1 ms et 10 s). A la fin de la période d'intégration, le système procède à l'acquisition simultanée des mesures, laquelle dure $5 \mu\text{s}$, puis à la remise à zéro des intégrateurs, opération réalisée en $60 \mu\text{s}$. Ainsi la période durant laquelle la sonde est 'aveugle' ne dure que $65 \mu\text{s}$, ce qui représente seulement 6,5% du temps lorsque la période d'acquisition sélectionnée est la plus rapide soit 1 ms.

3.2.3 Néphélomètre polaire mesurant la polarisation de la lumière diffusée

Dans la même lignée que les néphélomètres polaires, certains mesurent également la polarisation de la lumière diffusée. Barkey et al (2007) a développé un autre instrument qui mesure la polarisation de la lumière. L'inconvénient des systèmes précédents est que le capteur est différent suivant les angles. De ce fait, la différence de sensibilité et/ou d'offset entre deux capteurs peut modifier la forme de la fonction de phase. Pour éviter ce problème, il est nécessaire qu'un capteur unique tourne autour du volume d'échantillonnage. Par conséquence la mesure relative entre deux angles est quasiment parfaite.

Hovenier et al (2000, 2003) ont construit un instrument de ce type. Cet appareil mesure 6 éléments de la matrice de Stokes pour des angles de 5° à 175° pour les aérosols et de 20° à 160° pour des hydrosols, espacés de 5° pour deux longueurs d'onde (632,8 nm et 441,6 nm).

Notre néphélomètre polaire à double polarisation mesure deux éléments de la matrice de Stokes (S_{11} et S_{12} de l'équation 2.36) pour 152 angles espacés de 1° pour une longueur d'onde de 800 nm.

La connaissance de la matrice de Stokes est très importante pour quantifier les effets des particules non sphériques sur la propagation de la lumière. Ceci est important pour améliorer notre connaissance au sujet des aérosols et pour le développement des théories de diffusion pour des particules non-sphériques.

3.3 *Le néphélomètre polaire à double polarisation de laboratoire*

Le néphélomètre polaire à double polarisation (D2PN : Dual Polarization Polar Nephelometer) est un appareil de laboratoire. Cet instrument a été développé par le Laboratoire de Météorologie Physique (LaMP). La description détaillée de ce néphélomètre a été écrite par André (2000) puis par Daugeron (2001, 2006).

3.3.1 Principe de l'appareil

Des particules sont éclairées par un faisceau laser. L'intersection du faisceau de particules avec le faisceau laser crée un volume d'échantillonnage (figure 3-4).

Les particules éclairées diffusent une partie de cette lumière et deux capteurs mesurent cette diffusion suivant deux polarisations : une polarisation parallèle et une autre perpendiculaire à la table qui est le plan d'observation ou plan de diffusion. La puissance de la lumière diffusée est mesurée en fonction de l'angle de diffusion θ .

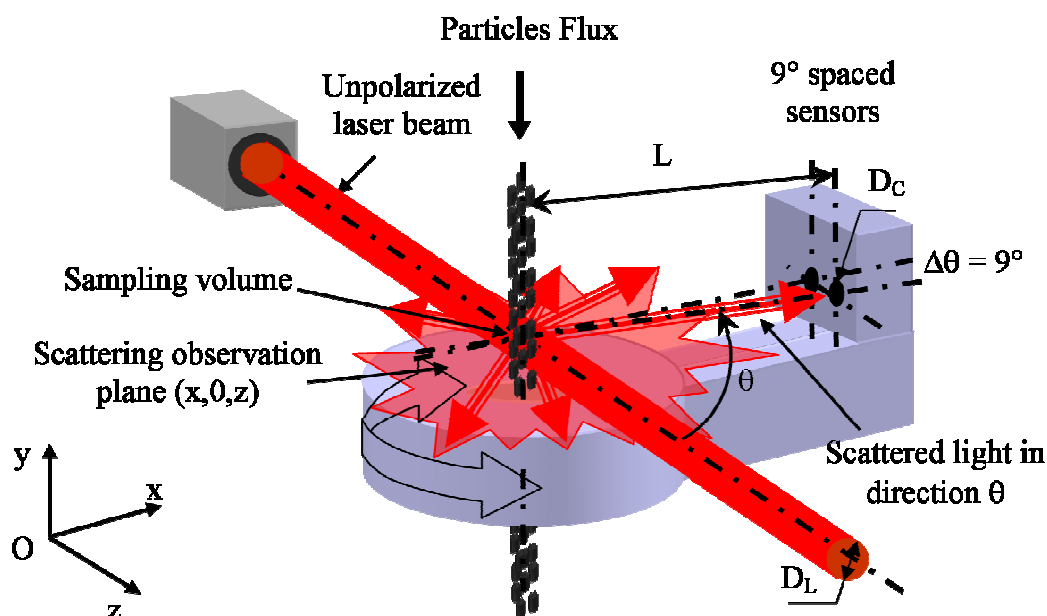


Figure 3-4 : Schéma de principe du néphélomètre de laboratoire D2PN.

Le néphélomètre polaire à double polarisation de laboratoire est un appareil qui permet donc de caractériser les propriétés optiques d'une population d'aérosols par la mesure directe (sans miroir) de l'indicatrice de diffusion suivant deux directions de polarisation perpendiculaires.

3.3.1.1 Caractéristiques physiques

Le faisceau laser est généré par une diode laser. Celle-ci fournit une puissance optique de quelques milliWatt à environ 1,1 W. La lumière fournie est non polarisée et a une longueur d'onde de $0,8 \mu\text{m}$. Un focaliseur permet d'obtenir un faisceau de 10 mm de diamètre. Un piège à lumière est placé à l'autre bout du faisceau.

Le faisceau de particules qui intercepte le laser fait également 10 mm de diamètre. Le volume d'échantillonnage qui est l'intersection des deux cylindres a un volume de $0,67 \text{ cm}^3$.

Le D2PN est équipé de deux capteurs qui ont un écart angulaire de 9° . Ces deux capteurs sont posés sur un bras qui est mu par un moteur pas-à-pas (figure 3-5). Ce moteur permet de déplacer le premier capteur de 10° à 160° et le deuxième de 19° à 169° avec une résolution angulaire de 1° . Le temps nécessaire pour parcourir la totalité des angles est de 7,6 s, ce qui correspond à une mesure toutes les 0,05 s. La durée entre le passage des deux capteurs pour un même angle est de 0,45 s. Les mesures sont quasi-simultanées suivant les deux directions de polarisation, ce qui permet d'obtenir le degré de polarisation linéaire.

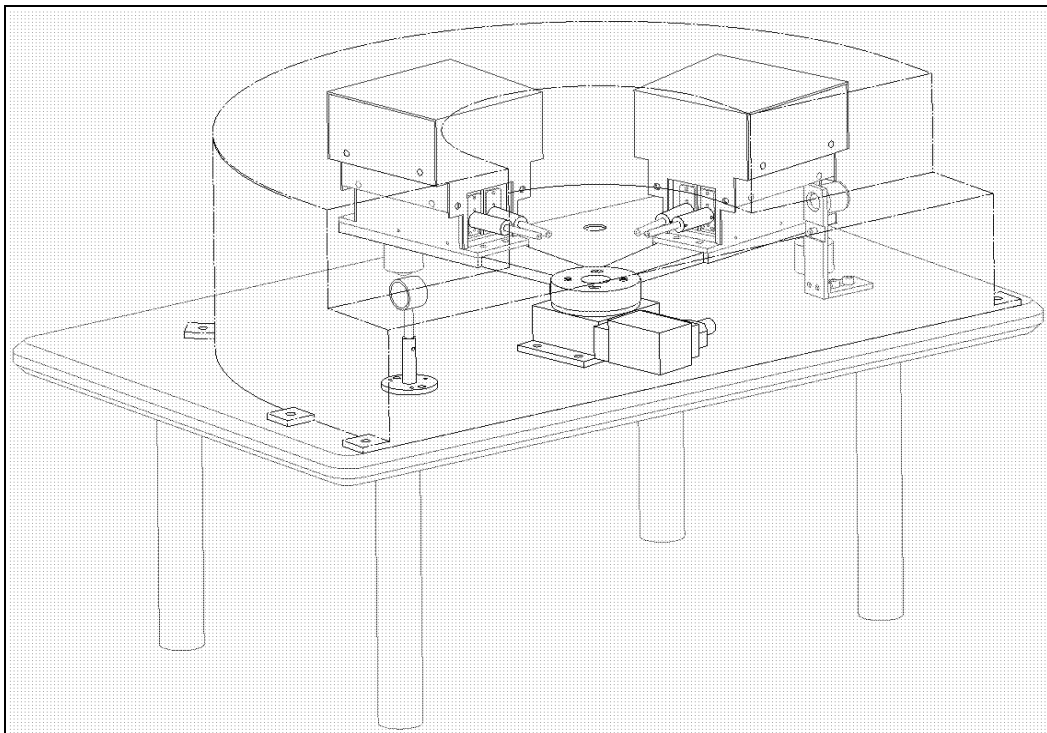


Figure 3-5 : Vue éclatée du néphélomètre. Le bras tournant a été représenté dans deux positions.

Les capteurs sont des photodiodes à avalanche contrôlées en température. Elles sont placées à 15 cm du centre du volume d'échantillonnage. Les puissances mesurées par ces capteurs peuvent aller de 10 pW à 2 μ W. La sensibilité du capteur est 10^6 V/W. Un filtre polariseur est placé devant chaque capteur (figure 3-6). En général, la polarisation parallèle est mesurée par le capteur 1 et la perpendiculaire par le capteur 2. Un canon est placé devant l'ensemble pour réduire l'angle de vue à ce qui est nécessaire, afin d'éviter la lumière parasite. L'élément sensible des capteurs a un diamètre de 0,5 mm, ce qui correspond à un angle solide de 11 μ sr.

Afin d'augmenter la sensibilité de l'appareil, une lentille peut être placée avant le polariseur (figure 3-6). Dans ce cas, l'angle solide du capteur + lentille est $287 \mu\text{sr}$.

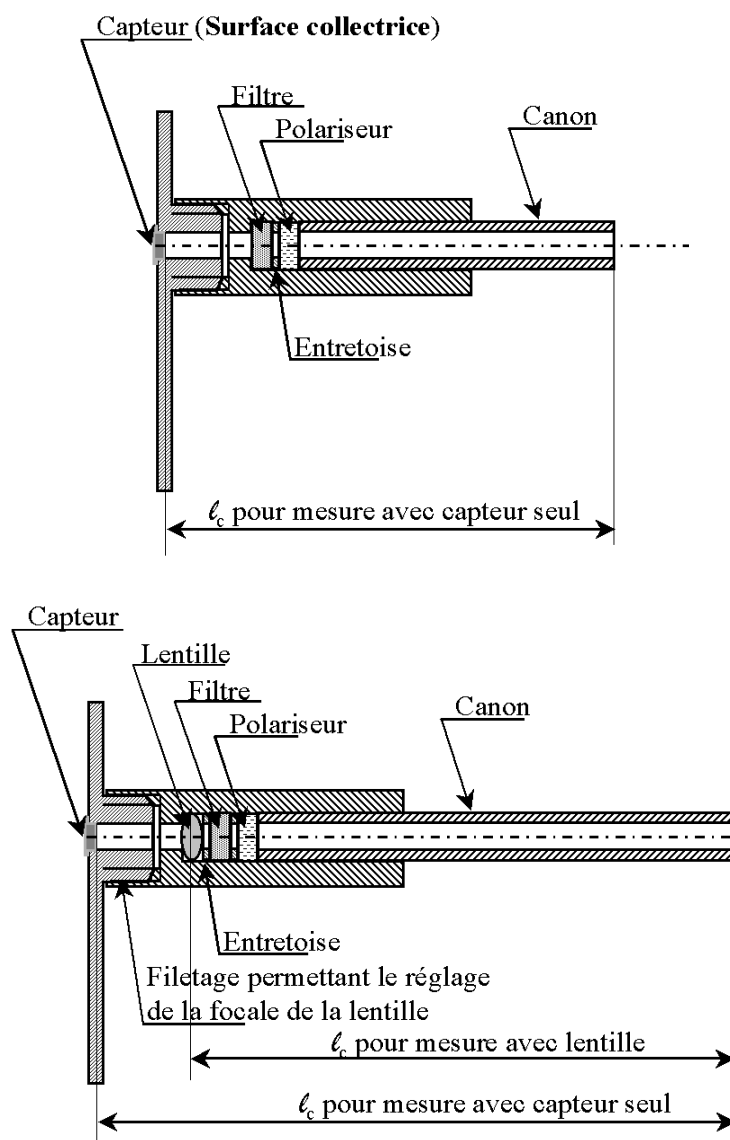


Figure 3-6 : Schéma de principe du canon et de ses différents éléments. La première figure représente le cas où le capteur seul est utilisé, alors que la deuxième représente le cas où une lentille est insérée entre le volume de mesure et le capteur.

Le signal à la sortie du capteur est amplifié grâce à un amplificateur dont le gain peut avoir comme valeurs 1, 10, 100 et 1000. Ce signal amplifié est envoyé à une carte d'acquisition intégrée dans un ordinateur transportable.

3.3.1.2 Mode de fonctionnement

Le fonctionnement du D2PN sera explicité succinctement.

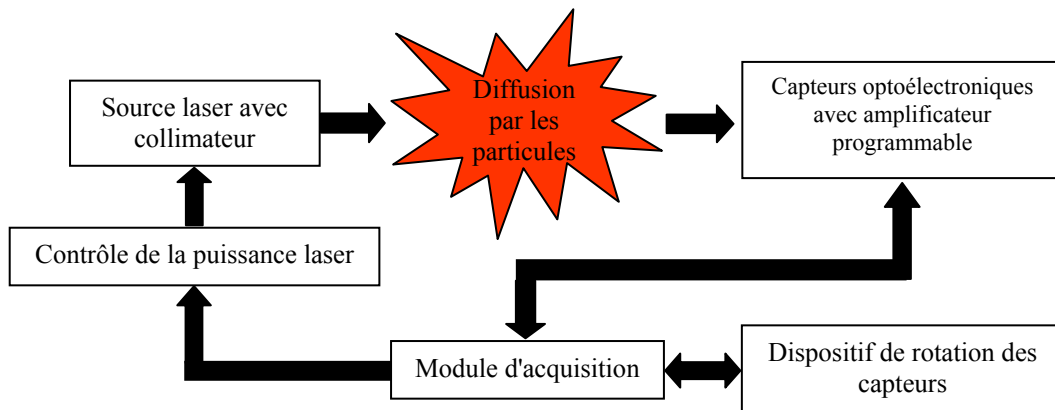


Figure 3-7 – Schéma de principe du fonctionnement du D2PN

Le module d'acquisition (carte d'acquisition + PC) est la partie qui synchronise le néphélomètre (figure 3-7). Au démarrage, elle envoie l'ordre d'initialisation au dispositif de rotation (moteur), règle le gain des capteurs à 1, donne l'ordre au laser pour qu'il émette sa puissance nominale.

Lors du fonctionnement, le module d'acquisition reçoit les impulsions de synchronisme du contrôle moteur (à chaque degré) et déclenche l'acquisition des tensions à la sortie des capteurs. Si la tension est trop faible, il augmente les gains des capteurs et inversement, si la tension est trop élevée. Si la tension est toujours trop élevée et que les gains sont à 1, le module d'acquisition fait baisser la puissance de laser de moitié.

Pour l'arrêt (ordre donné par l'opérateur), le module d'acquisition envoie au moteur la commande de finir son aller-retour avant de s'arrêter. Une fois l'aller-retour fini, le module d'acquisition éteint le laser.

3.3.2 Incertitudes de mesure

Comme tout appareil de mesure, le néphélomètre possède des erreurs de mesures. Un point de mesure (angle, intensité) de l'indicatrice de diffusion possède deux types d'incertitudes :

- sur la position angulaire du bras.
- sur l'intensité diffusée à cet angle.

3.3.2.1 Incertitude angulaire

L'incertitude angulaire, qui est l'incertitude de l'angle de diffusion θ (voir figure 3-8), peut être décomposée suivant une incertitude aléatoire et systématique. L'incertitude aléatoire correspond à l'incertitude de l'écart entre les différents angles de mesure. Cette incertitude est celle du moteur entraînant le bras. Le fabricant du moteur assure une incertitude de $0,001^\circ$.

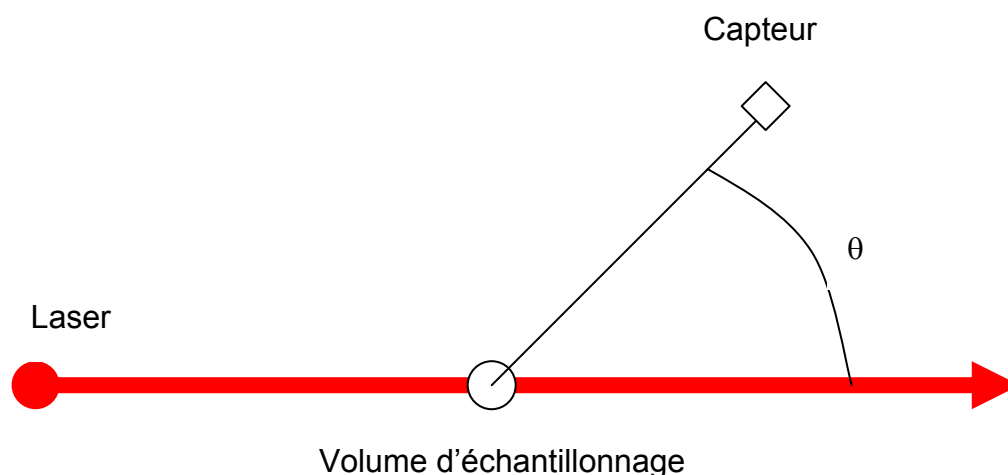


Figure 3-8 : Définition de l'angle de diffusion θ

L'incertitude systématique est celle de la valeur du premier angle de mesure. Cette incertitude est liée au montage et au réglage du bras. Le montage et la calibration ont été effectués par nos soins. Nous pouvons assurer un positionnement absolu à $0,1^\circ$ près, voir mieux pour l'angle entre les deux capteurs, grâce à la précision du moteur.

3.3.2.2 Incertitude sur l'intensité diffusée

L'incertitude de mesure de l'intensité se décompose en trois :

- incertitude du facteur de conversion tension - section efficace volumique
- incertitudes dues au bruit électronique
- incertitudes dues aux fluctuations de la concentration des particules dans le volume d'échantillonnage

3.3.2.2.1 Incertitude du facteur de conversion tension – section efficace

Le facteur de la conversion fournie en annexe B, est défini ainsi :

$$\varphi(\theta) = \frac{3L_{bras}^2}{2GD_L d_{capt}^2 P_L} T(\theta) = F.T(\theta) \quad (3.1)$$

$$F = \frac{3L_{bras}^2}{2GD_L d_{capt}^2 P_L} \quad (3.2)$$

Avec T = tension du capteur

$L_{bras} = 0,15$ m (longueur du bras), $\Delta L_{bras} = 0,002$ m

$d_{capt} = 0,0005$ m (diamètre du capteur), $\Delta d_{capt} = 10^{-5}$ m

$G = 10^6$ V/W (sensibilité ou réponse en tension du capteur),
 $\Delta G/G = 10^{-3}$ V/W

$D_L = 0,01$ m (diamètre du faisceau laser), $\Delta D_L = 5.10^{-4}$ m

$\lambda = 0,8$ μm (longueur d'onde du laser), $\Delta \lambda = 0,003$ μm

$P_L = 1$ W (puissance du laser), $\Delta P_L = 0,01$ W

L'incertitude relative de l'intensité est :

$$\left(\frac{\Delta \varphi}{\varphi} \right)^2 = \left(\frac{\Delta F}{F} \right)^2 + \left(\frac{\Delta T}{T} \right)^2 \quad (3.3)$$

$$\left(\frac{\Delta F}{F} \right)^2 = 2 \left(\frac{\Delta L_{bras}}{L_{bras}} \right)^2 + \left(\frac{\Delta G}{G} \right)^2 + \left(\frac{\Delta D_L}{D_L} \right)^2 + 2 \left(\frac{\Delta d_{capt}}{d_{capt}} \right)^2 + \left(\frac{\Delta P_L}{P_L} \right)^2 \quad (3.4)$$

Tout calcul fait :

$$F = 13,50(83) \text{ m}^2/\text{m}^3.\text{sr.V}$$

L'incertitude sur la tension du capteur est expliquée ci-après.

3.3.2.2.2 Incertitudes dues au bruit électronique

L'électronique de la chaîne d'acquisition (capteur, amplificateur, alimentation, ...) génère un bruit. Nous n'entrerons pas dans les détails, ceux-ci sont expliqués dans Daugeron, 2001 et 2006. Nous nous contenterons du bruit à la

sortie après l'amplificateur et avant la carte d'acquisition. Le bruit correspond au signal lorsque le capteur est plongé dans l'obscurité la plus totale possible.

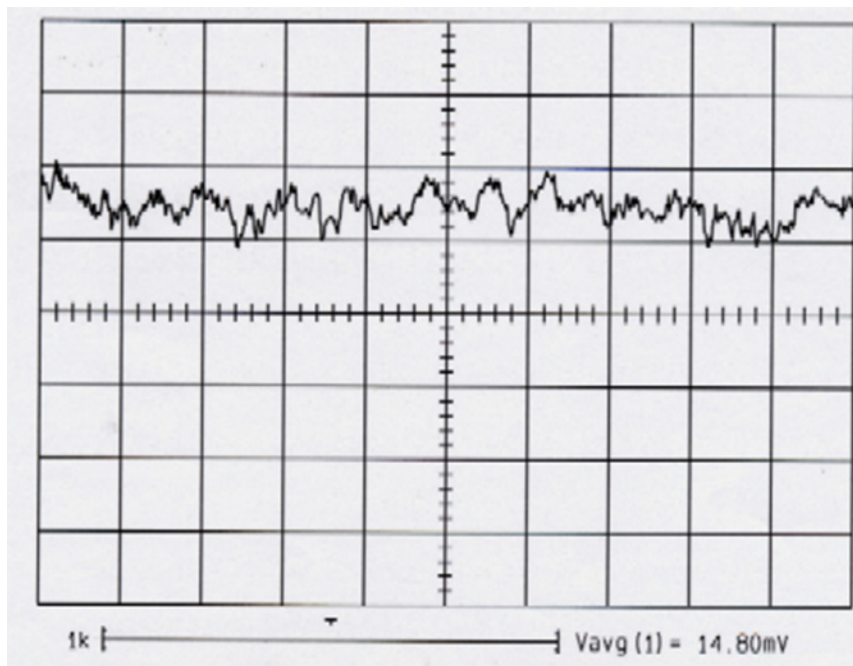


Figure 3-9 - Tension de sortie avec composante continue de l'ensemble capteur-amplificateur dans l'obscurité (gain 1000 - calibres 10mV/div et 1ms/div)

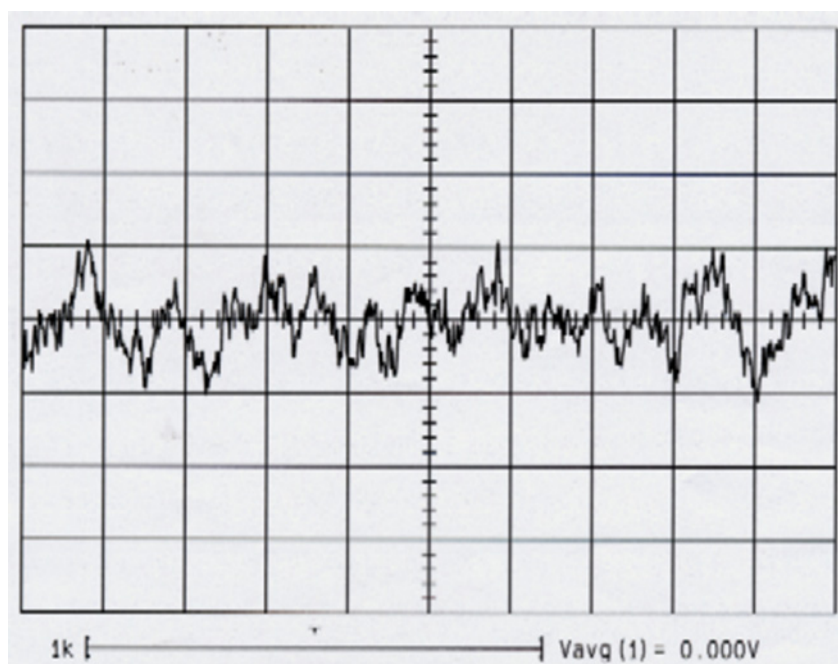


Figure 3-10 - Tension de sortie sans composante continue de l'ensemble capteur-amplificateur dans l'obscurité (gain 1000 - calibres 5mV/div et 1ms/div)

Les figures 3-9 et 3-10 représentent le bruit avant la carte d'acquisition, avec et sans l'offset électronique.

Le bruit électronique se décompose en un bruit gaussien qui est de 12 μV de bruit crête à crête et une composante continue de 15 μV .

La composante continue est soustraite du signal. Cette opération est réalisée lors du traitement.

3.3.2.2.3 Incertitudes dues aux fluctuations de concentration dans le volume d'échantillonnage

Ceci a été présenté à l'Atelier Expérimentation et Instrumentation (AEI) INSU/Météo-France/IFREMER en 2007.

L'une des difficultés que l'on rencontre lors des mesures de la lumière diffusée est la fluctuation de la concentration dans le volume d'échantillonnage lors de la mesure. Le néphélomètre met 7,6 s pour explorer les 151 angles (un aller ou un retour) et durant ce temps la concentration ne devrait pas varier, or ce n'est pas le cas. Ce problème ne vient pas directement du D2PN, mais du générateur de particules, qui ne maintient pas la concentration constante. De ce fait, sur une mesure, l'indicatrice de diffusion présente des oscillations (figure 3-11).

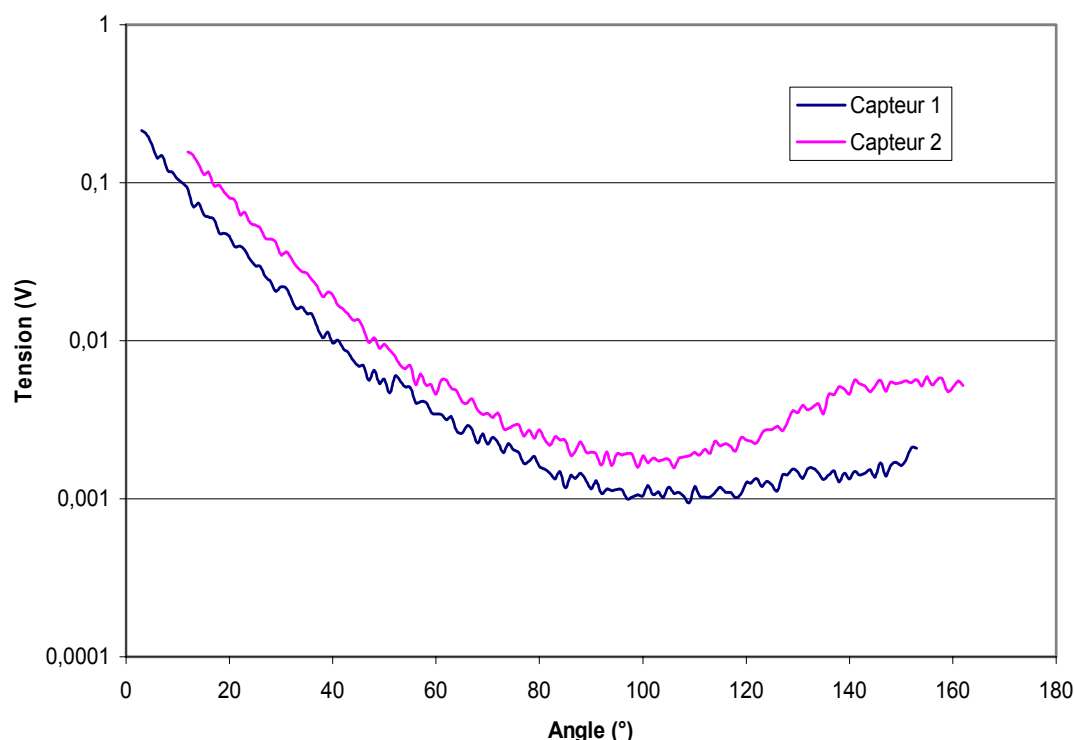


Figure 3-11 – Indicatrice de diffusion dont chaque point est une seule mesure. Les deux courbes ont été volontairement décalées.

Afin de limiter ces fluctuations, il est nécessaire d'effectuer plusieurs allers-retours et de les moyenner ensuite, comme dans le cas de la figure 3-12, où l'indicatrice présentée est le résultat de la moyenne, pour chaque angle, de 30 mesures (soit 15 allers-retours).

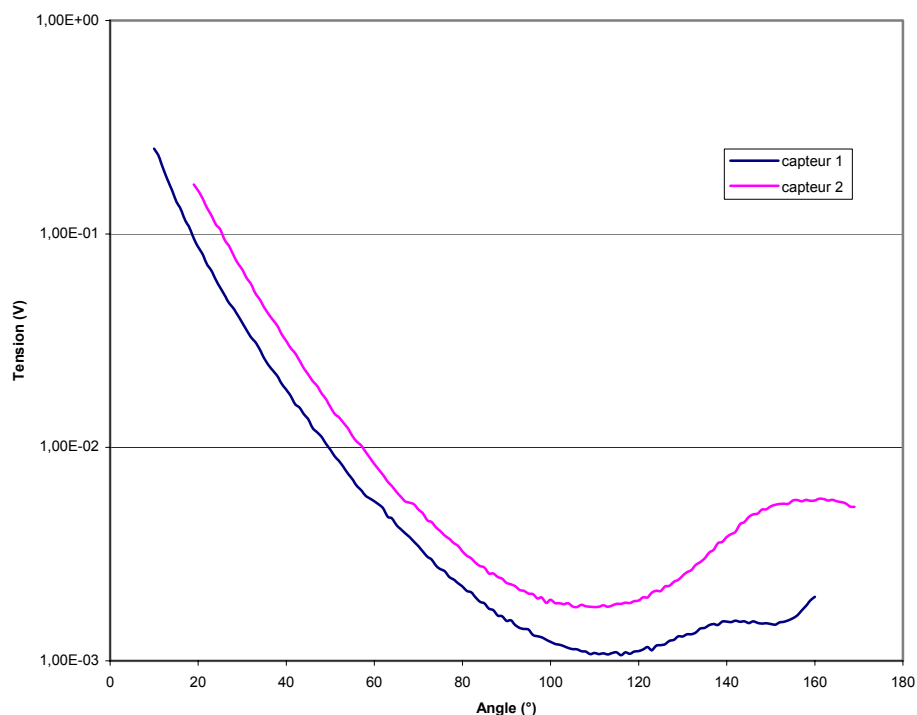


Figure 3-12 – Indicatrice de diffusion : moyenne de 15 allers-retours soit 30 mesures. Les deux courbes ont été volontairement décalées.

De ce fait, une étude a été réalisée afin de connaître le nombre de mesures à effectuer pour un niveau de confiance donnée. Cet indice de confiance est l'écart-type expérimental de la moyenne (incertitude-type de type A) noté u défini de cette façon (AFNOR, 1999) :

$$u^2(T) = \frac{1}{nb} \frac{1}{nb-1} \sum_{k=1}^{nb} (T_k - T)^2 \quad (3.5)$$

Et l'incertitude-type de type A relative v :

$$v(T) = \frac{u(T)}{T} \quad (3.6)$$

Avec nb : le nombre de mesures

T_k : la tension pour la $k^{\text{ème}}$ mesure

T : tension moyennée sur les n mesures.

Cette incertitude-type de type A est tracée en fonction du nombre de mesures sur la figure 3-13.

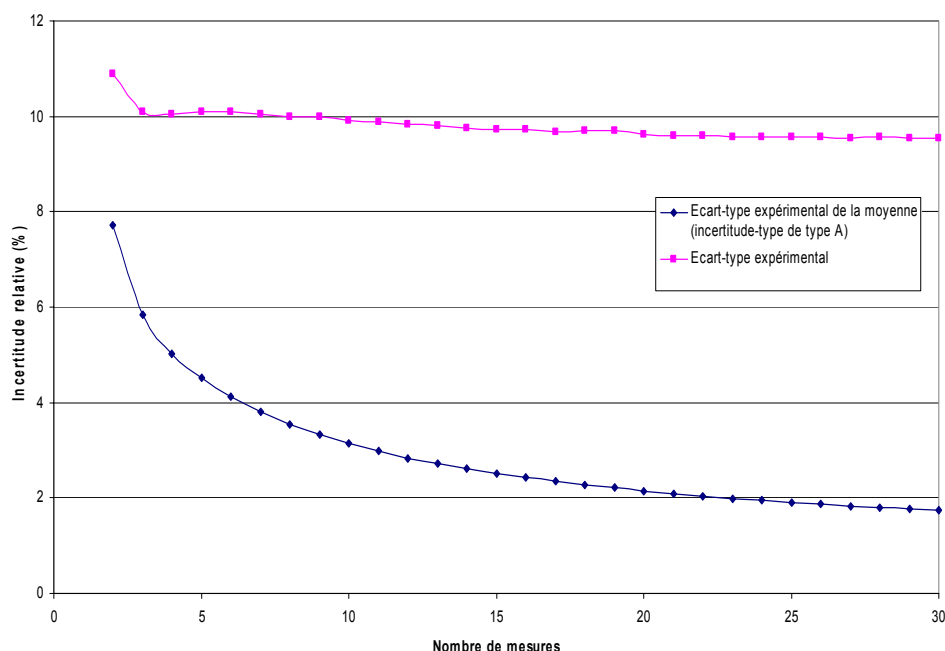


Figure 3-13- Incertitude-type de type A relative de la moyenne des tensions en fonction du nombre de mesures. (Moyenne sur l'ensemble des angles de mesure)

On peut remarquer qu'avec 4 mesures soit 2 allers-retours, l'incertitude-type de type A est de 5 %. De ce fait, nous avons décidé de réaliser au moins 3 allers-retours (6 mesures) au minimum pour avoir une incertitude inférieure à 5 % sur la moyenne des mesures et par conséquent sur l'indicateur de diffusion.

Les fluctuations de concentrations sont les erreurs prédominantes lors des mesures effectuées avec de fortes concentrations de particules. Lorsque la concentration de particules est faible, les fluctuations de concentration et le bruit électronique sont du même ordre de grandeur.

3.3.3 Concentration minimale

Ceci a été présenté également à l'Atelier Expérimentation et Instrumentation (AEI) INSU/Météo-France/IFREMER en 2007.

Grâce à la détermination du bruit électronique, dont la composante aléatoire est de 12 μV crête à crête, la concentration minimale que le D2PN peut observer, a été calculée.

Lorsque la tension à la sortie du capteur est inférieure à 30 μV , soit 5 fois le bruit électronique de demi-crête, le signal est de même niveau que le bruit. Il est alors entaché de trop d'incertitude. Les erreurs de bruit électronique nous imposent la concentration minimale que l'appareil peut observer. Cette tension de 30 μV correspond à une indicatrice de diffusion normalisée $k^2\varphi$ de $2,5 \cdot 10^{-8} \mu\text{m}^{-3} \cdot \text{sr}^{-1}$.

Grâce à un calcul direct, le minimum de l'indicatrice de diffusion pour différents spectres est calculé. La concentration minimale est trouvée avec la formule ci-dessous :

$$C_{\min} = \frac{2,5 \cdot 10^{-8}}{k^2 \varphi_{\min, \text{spectre}}} C_{\text{spectre}} \quad (3.7)$$

Avec $C_{\min}$: concentration minimale

C_{spectre} : concentration du spectre qui a servi pour le calcul direct

$k^2 \varphi_{\min, \text{spectre}}$: minimum de la section efficace volumique pour le spectre (ce minimum se situe généralement pour un angle θ compris entre 90° et 100°)

Cette concentration varie suivant le diamètre volumique médian de la population de particules, comme on peut l'observer sur le tableau suivant.

Diamètre volumique médian (μm)	Concentration minimale en nombre pour avoir $k^2\varphi > 2,5 \cdot 10^{-8} \mu\text{m}^{-3} \cdot \text{sr}^{-1}$	Concentration en volume minimale pour avoir $k^2\varphi > 2,5 \cdot 10^{-8} \mu\text{m}^{-3} \cdot \text{sr}^{-1}$
500	39,9 cm^{-3}	$7,55 \cdot 10^{-4} \mu\text{m}^3/\mu\text{m}^3$
100	346 cm^{-3}	$8,50 \cdot 10^{-5} \mu\text{m}^3/\mu\text{m}^3$
50	736 cm^{-3}	$2,27 \cdot 10^{-5} \mu\text{m}^3/\mu\text{m}^3$
20	1 960 cm^{-3}	$3,87 \cdot 10^{-6} \mu\text{m}^3/\mu\text{m}^3$
10	4 420 cm^{-3}	$1,09 \cdot 10^{-6} \mu\text{m}^3/\mu\text{m}^3$
5	9 930 cm^{-3}	$3,06 \cdot 10^{-7} \mu\text{m}^3/\mu\text{m}^3$
2	45 600 cm^{-3}	$8,99 \cdot 10^{-8} \mu\text{m}^3/\mu\text{m}^3$
1	257 000 cm^{-3}	$6,33 \cdot 10^{-8} \mu\text{m}^3/\mu\text{m}^3$
0,5	2 210 000 cm^{-3}	$6,81 \cdot 10^{-8} \mu\text{m}^3/\mu\text{m}^3$
0,2	72 400 000 cm^{-3}	$1,52 \cdot 10^{-7} \mu\text{m}^3/\mu\text{m}^3$

Tableau 3-1 : concentration minimale en nombre et en volume pour un spectre de largeur 1 et de diamètre volumique médian variable.

Par exemple, pour un diamètre volumique médian de 1 μm , la concentration minimale est $2,57 \cdot 10^5$ particules par cm^3 alors que pour un diamètre de 10 μm , la concentration est de $4,42 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$. Dans le cas où les capteurs sont équipés de lentilles, les concentrations sont à diviser par 20.

3.3.4 Limite de différenciation

Ceci a été également présenté à l'Atelier Expérimentation et Instrumentation (AEI) INSU/Météo-France/IFREMER en 2007.

La limite de différenciation correspond à la taille en dessous de laquelle on ne peut plus différencier deux populations de particules entre elles car leurs signatures sont identiques.

Comme nous avons pu le voir dans le chapitre 2, dans le domaine de la théorie de Mie (paramètre de taille $\alpha > 1$) chaque particule a une signature différente. Par contre dans le domaine de la diffusion de Rayleigh, la forme de la fonction de phase est indépendante du diamètre, contrairement à l'amplitude qui dépend du diamètre à la puissance 6. Les formules de la diffusion de Rayleigh sont rappelées ci-dessous :

$$\sigma(\theta) = \frac{\pi^4 D^6}{8\lambda^4} \left(\frac{n-1}{n+2} \right)^2 (1 + \cos^2(\theta)) \quad (3.8)$$

Dans le cas de la diffusion totale,

$$\varphi(\theta) = \int \sigma(\theta, D) \frac{dN(D)}{dD} dD = \int \frac{\pi^4 D^6}{8\lambda^4} \left(\frac{n-1}{n+2} \right)^2 (1 + \cos^2(\theta)) \frac{dN(D)}{dD} dD \quad (3.9)$$

$$\int D^6 \frac{dN(D)}{dD} dD = \frac{8\lambda^4 \varphi(\theta)}{\pi^4 \left(\frac{n-1}{n+2} \right)^2 (1 + \cos^2(\theta))} = cst(\theta) \quad (3.10)$$

On a donc une relation où la concentration et le diamètre ne peuvent pas être dissociés dans le cas de la diffusion de Rayleigh. Ceci est un problème pour toute inversion.

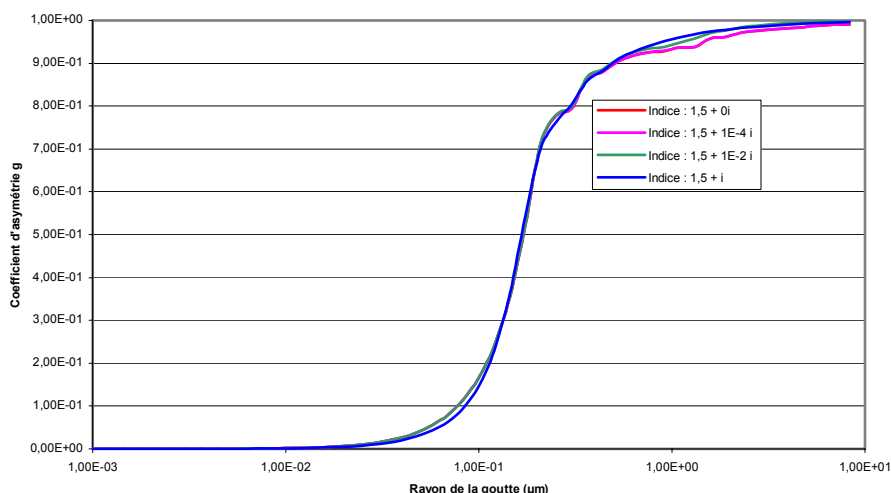


Figure 3-14 : Evolution du coefficient d'asymétrie g d'une goutte en fonction de son rayon et de son indice pour une longueur d'onde de 0,8 µm.

Pour la diffusion de Rayleigh, le coefficient d'asymétrie est nul (cf. chapitre 2). Cette propriété situe donc bien la limite de différenciation entre la diffusion de Rayleigh et de Mie. La figure 3-14 représente le coefficient d'asymétrie d'une goutte en fonction de son rayon et de son indice. A une valeur d'environ 0,1 µm de rayon, on voit le changement de régime de croissance de g , c'est le passage de la diffusion de Rayleigh à celle de Mie. Cette valeur ne change pas suivant l'indice complexe de la particule.

Néanmoins, des particules inférieures à cette taille limite, si elles sont très nombreuses, sont vues par le néphélomètre mais leur taille ne pourra pas être déterminée. La diffusion d'une particule de 0,1 µm sera identique à la diffusion d'un million de gouttes de 0,01 µm.

Cette limite est importante car elle conditionne le rayon minimum que l'inversion peut restituer. Cette limite varie suivant la longueur d'onde du laser. Dans notre cas avec un laser de 0,8 µm, la limite se situe pour un diamètre de 0,2 µm (pour les différents types de particules correspondant à cette taille, cf. paragraphe 1.1.1).

3.3.5 Traitement de données brutes

Les données brutes issues du néphélomètre se décomposent en une table contenant la position, la tension après amplificateur, le gain de l'amplificateur pour chacun des deux capteurs ainsi que la puissance du laser.

La première action à réaliser est la vérification de l'intégrité des données, par une simple vérification que les angles se suivent bien.

Une fois cette vérification effectuée, la tension après l'amplificateur est divisée par le gain afin d'obtenir la tension juste après le capteur. Les n mesures effectuées pour un angle et pour une polarisation sont moyennées. L'écart-type expérimental sur la tension à la sortie du capteur est également calculé par cette formule :

$$u^2(T) = \frac{1}{nb} \frac{1}{nb-1} \sum_{k=1}^{nb} (T_k - T)^2 \quad (3.11)$$

Et l'incertitude relative :

$$\nu(T) = \frac{u(T)}{T} = \frac{\Delta T_{avec\ biais}}{T_{avec\ biais}} \quad (3.12)$$

Ensuite, pour chaque polarisation et chaque angle, le biais de mesure b (bruit laser, ...) est soustrait de la tension $T_{avec\ biais}$. L'incertitude du biais (si elle est connue) est ajoutée via l'équation ci-dessous.

$$T = T_{avec\ biais} - b$$

$$\frac{\Delta T}{T} = \sqrt{\frac{\Delta T_{avec\ biais}^2 + \Delta b^2}{(T_{avec\ biais} - b)^2}} \quad (3.13)$$

Avec b : le biais

Δx : incertitude du paramètre x

La lumière totale diffusée est calculé en effectuant la somme des deux polarisations, ainsi que son incertitude relative :

$$\frac{\Delta T_{totale}}{T_{totale}} = \sqrt{\frac{\Delta T_{\perp}^2 + \Delta T_{\parallel}^2}{(T_{\perp} + T_{\parallel})^2}} \quad (3.14)$$

Le degré de polarisation linéaire ainsi que son incertitude relative sont déterminés de cette façon :

$$^{\circ}P = \frac{T_{\perp} - T_{\parallel}}{T_{\perp} + T_{\parallel}} \quad (3.15)$$

$$\frac{\Delta^\circ P}{^\circ P} = \sqrt{\frac{\Delta T_\perp^2 + \Delta T_\parallel^2}{(T_\perp + T_\parallel)^2} + \frac{\Delta T_\perp^2 + \Delta T_\parallel^2}{(T_\perp - T_\parallel)^2}} \quad (3.16)$$

Le programme transforme la tension des capteurs en section efficace volumique normalisée $k^2\phi(\theta)$ (cf. annexe B) pour obtenir un fichier compatible pour la méthode d'inversion.

Le programme de traitement pourrait fournir des informations complémentaires tel que le coefficient d'asymétrie, mais il serait nécessaire de faire des hypothèses ou de faire une extension de l'indicatrice de diffusion (Kahnert et Nousiainen, 2007) pour les angles inférieurs à 19° et supérieurs à 160° .

3.3.6 Exemples de mesures

Ce néphélomètre a été testé avec des populations de particules sphériques de tailles différentes et de différents indices.

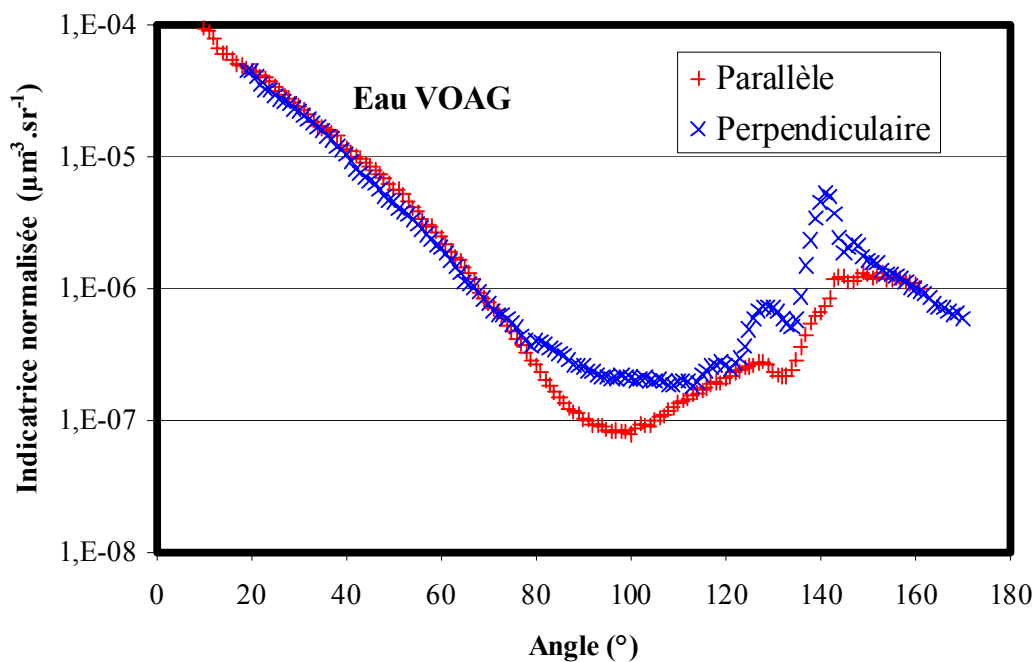


Figure 3-15 : Indicatrice de diffusion normalisée pour des gouttes d'eau produite par un VOAG (Vibrating Orifice Aerosols Generator) (diamètre volumique médian d'environ $30 \mu\text{m}$).

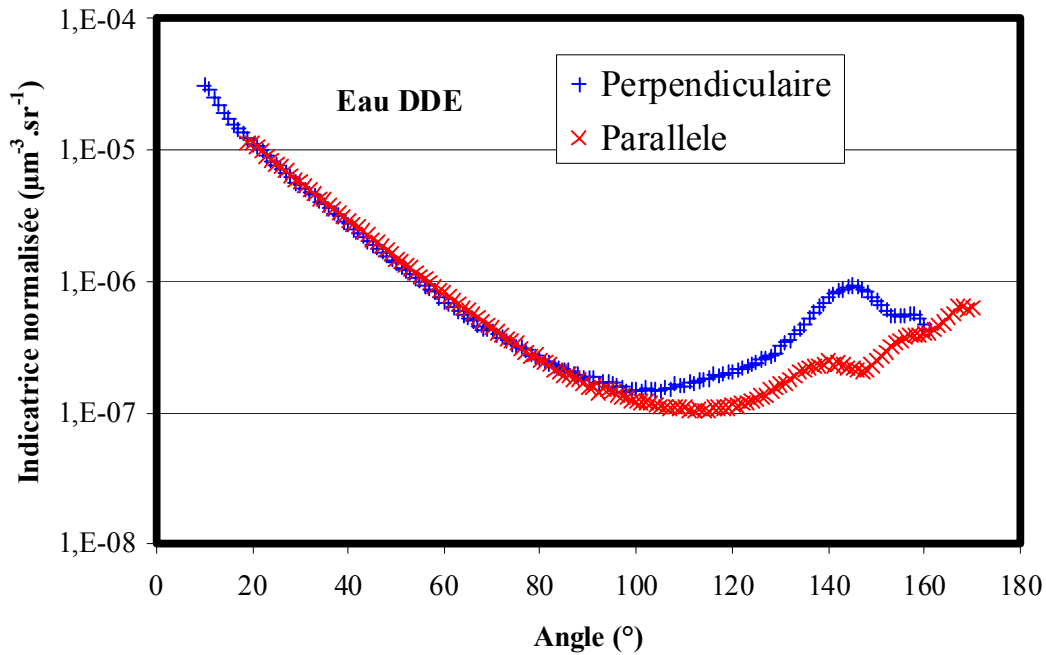


Figure 3-16 : Indicatrice de diffusion normalisée pour des gouttes d'eau produites par la chambre à brouillard de la Direction Départementale de l'Équipement (DDE) (diamètre volumique médian d'environ $10 \mu\text{m}$).

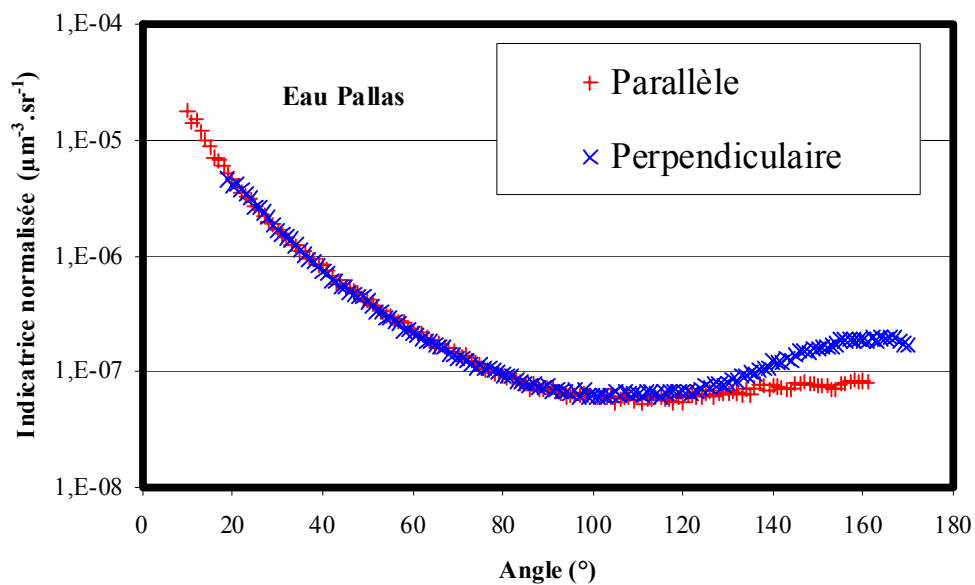


Figure 3-17 : Indicatrice de diffusion normalisée pour des gouttes d'eau produite par un générateur bubbling de Pallas (diamètre volumique médian d'environ $2 \mu\text{m}$).

On peut remarquer, à partir des figures 3-15, 3-16, 3-17 que la diffusion est différente suivant la taille des gouttes pour un même fluide (eau). La diffusion avant (de 20° à 90°) présente une concavité différente suivant la taille des gouttes. Lorsque les gouttes sont grosses, la diffusion arrière présente un (figure 3-16) ou deux (figure 3-17) maxima accentués correspondant au phénomène des

arcs en ciel. Pour les petites gouttes, il n'y en a pas alors que pour les grosses, il y en a deux situés à 130° et à 142° .

Ces remarques sont les mêmes que celles effectuées au chapitre 2.4.3 et les figures sont semblables. Les mesures du D2PN permettent de bien distinguer la taille des particules.

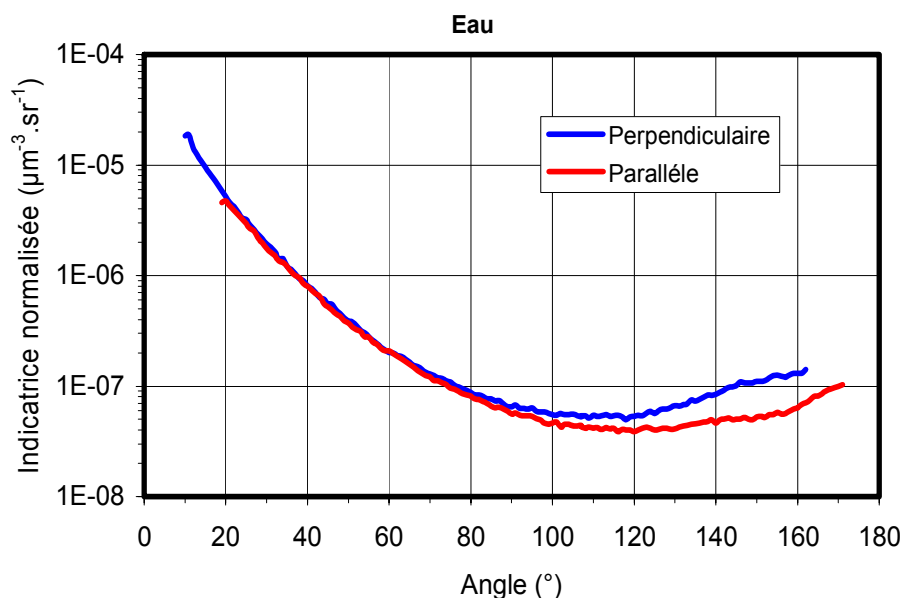


Figure 3-18 : Intensité diffusée pour des gouttes d'eau (indice réel de 1,33) générées par un bubbling Pallas.

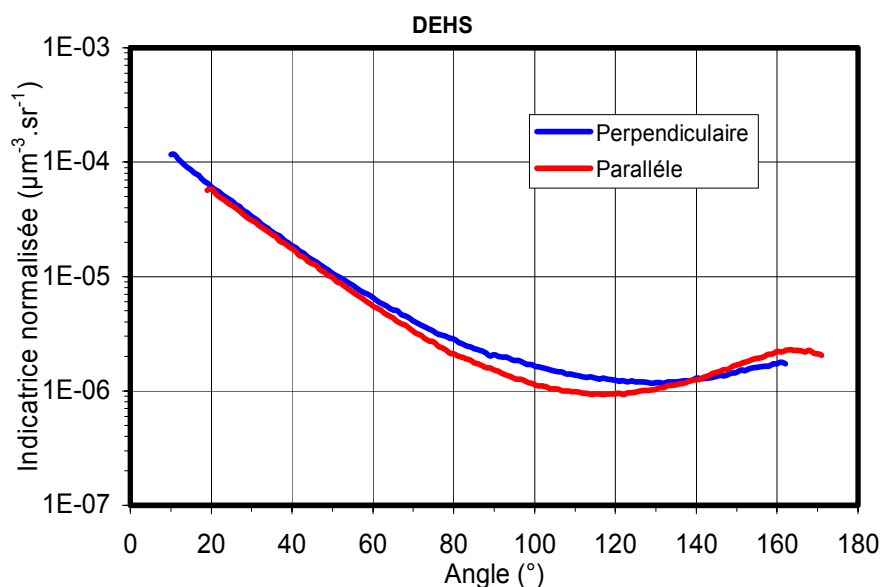


Figure 3-19 : Intensité diffusée pour des gouttes de DEHS (Di-Ethyl Hexyl Sebaçate, indice réel de 1,45, huile permettant la calibration des instruments) générées par un bubbling Pallas.

On peut voir sur les figures 3-18 et 3-19 que les indicatrices sont différentes pour les deux produits ayant deux indices de réfraction différents, alors que la

taille des gouttes est similaire. La concavité de la courbe en diffusion avant diffère suivant le fluide. Si les gouttes avaient été plus grosses, les différences auraient été plus importantes en particulier pour la diffusion arrière. Cette constatation est la même qu'au chapitre 2.4.4. Par conséquent, les mesures du D2PN permettent bien de discerner des différences quand la nature des gouttes change. Le D2PN est un appareil qui mesure correctement la diffusion de la lumière pour des gouttes sphériques. Ceci est tout-à-fait encourageant pour la mesure de particules non-sphériques.

En conclusion, des différences notables peuvent être observées entre les différentes indicatrices de diffusion en particulier sur la polarisation dans le plan perpendiculaire. Ceci permet de dire qu'il doit être possible de retrouver l'indice et la distribution de la population de particules grâce à une méthode d'inversion avec ce type de données.

3.3.7 Améliorations possibles

Même si l'appareil fournit de bonnes mesures, un certain nombre d'améliorations peuvent être pratiquées afin d'optimiser le néphélomètre et améliorer la qualité des mesures.

Le néphélomètre D2PN ne peut mesurer correctement que de fortes concentrations (cf. tableau 3-1). Certaines mesures sont parfois à effectuer près du bruit électronique, ce qui augmente l'incertitude de la mesure. Plusieurs améliorations sont possibles :

- installer un laser plus puissant
- rajouter un ou plusieurs étages de gain, ou changer le système d'amplification
- changer de capteurs en optant pour un capteur plus sensible

Les différentes possibilités peuvent être associées ensemble. Il faut toutefois faire attention qu'avec certains choix, les capteurs du D2PN peuvent être « éblouis » en présence de fortes concentrations.

Un autre point est la pose d'un troisième capteur à une position fixe afin de suivre les fluctuations de concentration au cours du temps (Hovenier et al., 2000,

2003). Avec cette information complémentaire, il serait possible de corriger les données et d'obtenir une indicatrice de diffusion moins bruitée pour une concentration de référence.

Une autre amélioration serait de pouvoir mesurer des angles de diffusion plus petits ($< 10^\circ$) et plus grands ($> 169^\circ$). Afin de procéder à ce perfectionnement, il peut être envisagé de réduire l'écart entre les deux capteurs ou n'avoir plus qu'un seul capteur muni d'un polariseur variable. Ce procédé permettrait de diminuer l'incertitude sur le degré de polarisation, due à la différence de temps de mesure entre les deux polarisations. Également, il serait nécessaire de miniaturiser l'électronique autour du capteur, voir de redessiner la position des éléments de la table de mesure.

Le dernier progrès envisageable est de miniaturiser l'électronique de contrôle, actuellement installée dans une baie à côté du néphélomètre. Ceci n'améliora pas les performances du néphélomètre mais le rendra plus facilement transportable.

4 Inversion

4.1 Problématique

Les théories permettent de résoudre les problèmes dans le sens direct. A partir des paramètres d'entrée d'une théorie, on obtient un résultat unique et sans incertitude. C'est le sens usuel. Le problème inverse est de partir d'une partie du résultat (bruité ou non) de la théorie pour remonter aux paramètres d'entrée recherchés.

Dans notre cas, le problème direct est la théorie de Mie (2.3.4 Théorie de Lorenz - Mie) qui permet de calculer la diffusion de la lumière par des particules sphériques.

4.1.1 Paramètres recherchés

Dans le chapitre 1, la diversité des aérosols a été exposée. Le but des mesures d'aérosols est de connaître le maximum de paramètres de ces particules tels que leur nature, leur taille, leur forme, leur nombre, leur effet radiatif, ...

Afin de caractériser complètement une population d'aérosols en prenant l'hypothèse que ces particules soient sphériques et homogènes, il est seulement nécessaire de connaître leur distribution en taille ainsi que leur nature. Dans le cas de la diffusion de la lumière, la nature de la particule correspond à son indice de réfraction complexe (la partie réelle n correspond à la diffusion et la partie imaginaire χ à l'absorption).

A partir de la distribution en taille, il est possible d'obtenir différents éléments tels que la concentration en nombre, le diamètre moyen, le diamètre volumique médian, ...

4.1.2 Mise en place des équations

L'équation de diffusion de la lumière pour une population de particules sera la base de notre modèle qui servira pour notre inversion. Elle est exprimée ci-dessous pour une distribution volumique en volume. Pour la distribution en nombre, diamètre, surface, il faut se référer à l'équation 2.47.

$$\varphi(\theta) = \int_0^{\infty} \sigma(\theta, D, m) \frac{6}{\pi D^3} \left(\frac{d\mathcal{V}(D, m)}{dD} \right) dD \quad (4.1)$$

Cette formulation n'est pas très adaptée pour une inversion. La forme matricielle est mieux adaptée, ainsi cette formule devient :

$$\boldsymbol{\varphi} = \mathbf{K} \cdot \mathbf{a} \quad (4.2)$$

$\boldsymbol{\varphi}$ est le vecteur de la mesure de la diffusion de lumière suivant les angles de diffusion θ ; $\varphi(\theta)$ est valeur de la section volumique de diffusion pour l'angle θ .

$\mathbf{a}$ est le vecteur de la distribution dimensionnelle en volume décomposée en τ classes de différents diamètres D .

$\frac{d\mathcal{V}(D, m)}{dD}$ est la distribution volumique en volume en $\mu\text{m}^3/(\mu\text{m}^3 \cdot \mu\text{m})$.

$\mathbf{K}$ est la matrice qui est déterminée en fonction du modèle de la lumière diffusée et est variable suivant l'indice de réfraction complexe (m). Dans notre cas, c'est le modèle de Mie qui est utilisé (Bohren et al., 1983).

σ est la section différentielle de diffusion de la particule, calculée avec la théorie de Mie pour un indice m , un angle de diffusion θ et un diamètre D .

Les éléments K_{ij} sont calculés avec la formule ci-dessous, pour le cas où la distribution volumique est en volume (équation 4.1) :

$$K_{ij} = \frac{6}{\pi} \int_{D_{i-1}}^{D_i} \frac{D - D_{i-1}}{D_i - D_{i-1}} \frac{\sigma(\theta, D, m)}{D^3} dD + \frac{6}{\pi} \int_{D_i}^{D_{i+1}} \frac{D_{i+1} - D}{D_{i+1} - D_i} \frac{\sigma(\theta, D, m)}{D^3} dD \quad (4.3)$$

Il est nécessaire pour le calcul des intégrales de porter attention à la méthode d'intégration car la section différentielle de diffusion n'est pas linéaire en fonction du diamètre à cause des fonctions de Bessel utilisées pour son calcul.

4.2 Tests de sensibilité

Ce travail a été présenté à l'ICNAA en 2007 à Galway et a fait l'objet d'une publication au Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer (JQSRT) (Verhaege et al., 2008). La publication est en annexe D.

4.2.1 Méthodologie

Il existe plusieurs méthodes pour estimer le contenu en information des données dans un problème inverse et pour estimer l'incertitude de la restitution (Twomey, 1977 et Rodgers, 2000). En premier lieu, il faut rappeler que la restitution de l'indice de réfraction complexe m en même temps que la distribution en taille des aérosols n'est pas un problème linéaire. Ceci est dû au fait que les caractéristiques de la diffusion ne sont pas linéaires en fonction des parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction. De ce fait, le formalisme et les méthodes utilisés pour les problèmes inverses linéaires ne peuvent s'appliquer que sur de petits intervalles autour d'une valeur m . Par conséquent, l'analyse sera effectuée sur une grille ou table d'indice de réfraction. Cette grille devra couvrir largement le domaine des indices possibles pour les aérosols et il faut que le pas de la grille soit suffisamment petit pour assurer la validité de l'approximation linéaire.

Le terme « contenu en information » est largement utilisé dans les mesures indirectes (Twomey, 1977). Lorsqu'une équation intégrale du premier type de Fredholm est résolue, comme pour notre problème, ce terme correspond au « nombre d'informations indépendantes ». C'est à dire le nombre de valeurs propres de la matrice noyau qui sont plus grandes que le bruit. Une telle approche permet d'optimiser le jeu de paramètres mesurés suivant leur dépendance linéaire (Veselovskii et al., 2006). Il est raisonnable de dire que suivant ce paramètre, les données du D2PN sont hautement redondantes pour la restitution de la distribution de sphères homogènes. Cependant, le jeu de paramètres mesurés ne sera pas réduit car il n'y a pas de méthode pour estimer la redondance pour la restitution de l'indice complexe. Ceci est également vrai pour les aérosols non sphériques.

Une autre méthode pour connaître le degré de contenu en information, consiste en l'étude approfondie de la précision de restitution. Si le jeu de données ne contient pas assez d'informations, la précision des inversions ne sera pas bonne même si les données sont peu entachées de bruit. Cette méthode peut être appliquée à des problèmes inverses non-linéaires. D'autre part, cette approche est consommatrice en temps de calcul, car cette analyse doit prendre en compte toutes les sources possibles d'erreurs (Dubovik et al., 2000). De plus, les résultats de cette analyse dépendent de l'algorithme et des contraintes *a priori* employés

pour la restitution des paramètres. En d'autres termes, un haut niveau de bruit sur un paramètre restitué ne signifie pas nécessairement que la donnée mesurée n'est pas sensible à ce paramètre. Les principales conclusions issues de cette méthode d'analyse de la précision de restitution doivent être confirmées par d'autres méthodes.

Néanmoins, grâce au rapide progrès de l'informatique (grande augmentation de la vitesse de calcul et de la capacité de stockage), les méthodes basées sur Monte-Carlo (Ligon et al., 1996 ; Tarantola, 2005 ; Zsetsky et Sloan, 2005) et sur des tables de look-up (quelques fois appelées grille de recherche) (Grey et al, 2006) sont de plus en plus utilisées pour résoudre les problèmes inverses. De plus, la modélisation directe, nécessaire pour les inversions, peut être utilisée pour réaliser des analyses de sensibilité. C'est-à dire la faisabilité de restituer certains paramètres par inversion car les caractéristiques mesurées doivent être suffisamment sensibles à la variation des paramètres qui nous intéressent, sinon les paramètres restitués ne seront que la conséquence directe des contraintes *a priori*.

Les tests de sensibilité sont indispensables lorsqu'un code d'inversion est adapté à un nouveau dispositif expérimental. Par la suite, l'approche par table de look-up sera utilisée. Le code direct employé, basé sur la théorie de Lorenz-Mie, est stable et calcule avec précision la diffusion pour des sphères homogènes, jusqu'à un paramètre de taille de 200 et pour un large domaine d'indice de réfraction complexe. Les caractéristiques de diffusion peuvent ainsi être calculées pour n'importe quelle distribution en taille.

Pour les tests de sensibilité, la distribution en volume des particules est modélisée par une distribution log normale :

$$\frac{d\mathcal{V}(r)}{d \ln r} = \frac{C_V}{\sqrt{2\pi}e} \exp\left[-\frac{(\ln r - \ln r_V)^2}{2e^2}\right] \quad (4.4)$$

avec r_V le rayon volumique médian, e l'écart-type et C_V la concentration. Dans ce cas, ces trois paramètres suffisent à décrire la granulométrie de particules sphériques. La distribution log normale a été choisie car elle est souvent utilisée pour ajuster les données expérimentales sur les trois modes qui sont la nucléation, l'accumulation et le mode grossier (Chazette et al., 2005). Nous notons que le choix d'une distribution gamma (Dubovik et al., 2000) ne changerait rien aux

conclusions de cette étude. L'étude de sensibilité portera sur les cinq paramètres d'entrée a_j ($j=1, \dots, 5$) de la table de look-up : la partie réelle n (a_1) et imaginaire χ (a_2) de l'indice de réfraction, r_v le rayon volumique médian (a_3), e l'écart-type (a_4) et C_v la concentration (a_5).

La grille des paramètres d'entrée est définie pour dépasser l'étendue possible des valeurs des paramètres pour les aérosols et les nuages chauds. Le rayon médian r_v variera de 0,25 à 25 μm , l'écart-type e de 0,3 à 1,0. L'indice réel couvrira l'étendue de 1,1 à 1,9 et la partie imaginaire de 10^{-10} à 10^{-1} . Les étendues de n et χ sont appropriées pour la plupart des aérosols comme cela peut être vu dans le tableau 4-1 issu d'Almeida (D'Almeida et al., 1991). Les pas de la grille sont suffisamment petits pour assurer un bon niveau de précision des dérivées premières $\partial\varphi_i/\partial a_j$, où φ_i ($i=1, \dots, N$) sont les paramètres de diffusion mesurés. L'indice i correspond aux angles θ et plus généralement au nombre de mesures.

	Poussière	Suie	Océanique	Sulfate	Minéral	Eau
n	1,520	1,750	1,374	1,426	1,530	1,329
χ	$8,0 \cdot 10^{-3}$	0,430	$6,01 \cdot 10^{-5}$	$1,70 \cdot 10^{-7}$	$1,20 \cdot 10^{-3}$	$1,25 \cdot 10^{-7}$

Tableau 4-1 : Compilation d'indices de réfraction complexe $m = n + i\chi$ de divers aérosols pour la longueur d'onde de 0.8 μm . Extrait de d'Almeida et al., 1991

Dans la suite, la sensibilité des données du D2PN principalement à l'indice de réfraction sera analysée en terme de l'écart quadratique moyen (RMS, Root Mean Square) défini tel que :

$$RMS = \frac{1}{N} \sqrt{\sum_{i=1}^N \frac{[\varphi_i(n, \chi, r_v, e, C_v) - \varphi_{i,meas}]^2}{\varphi_{i,meas}^2}} \quad (4.5)$$

où $\varphi_{i,meas}$ est le modèle de mesure du D2PN, appelé dans les paragraphes 4.2 et 4.3 mesures synthétiques, $\varphi_i(n, \chi, r_v, e, C_v)$ correspond aux données issues de la table de look-up. L'erreur relative est utilisée car les intensités $I_{//}(\theta)$ et $I_{\perp}(\theta)$ varient de plusieurs ordres de grandeurs en fonction de l'angle de diffusion θ , afin de ne pas privilégier les mesures à fortes intensités.

Pour évaluer les effets des incertitudes de mesures, deux types de mesures synthétiques sont considérés. La première correspond au cas parfait « sans

erreur » : $\varphi_{i,meas} = \varphi_{i,comp}$ où $\varphi_{i,comp}$ correspond au calcul direct avec le code de Mie et avec les paramètres d'entrée a_j . Le second type de données synthétiques correspond à ce calcul en ajoutant un bruit modélisant les erreurs de mesures. Cette modélisation est faite de la façon suivante :

$$\varphi_{i,meas} = (1 + e_i)\varphi_{i,comp} \quad (4.6)$$

où e_i est une variable aléatoire de type Gaussien (Press et al., 1992), avec une moyenne de 0 et un écart-type ε de 0,1 ou 10 % (deux fois les incertitudes du D2PN). L'horloge système est utilisée comme graine initiale, afin d'avoir une initialisation différente à chaque utilisation. L'erreur de 10 % est prise pour s'assurer de la capacité de la restitution même dans le cas où la précision des données du D2PN serait dégradée.

4.2.2 Résultats

Les tests de sensibilité ont été réalisés pour quatre cas de mesures : intensité suivant la polarisation perpendiculaire ou parallèle prise individuellement, la section efficace volumique totale (somme des deux polarisations) ou les intensités perpendiculaire et parallèle ensemble. Comme mentionné précédemment, les données du D2PN sont hautement redondantes pour une distribution de sphères homogènes. Les calculs ont été effectués pour ces quatre possibilités. Les résultats dans les quatre cas sont très proches, c'est pourquoi seules les figures pour la section efficace volumique totale seront présentées. De plus, en cas de succès de notre méthode, elle pourra être utilisée avec les données issues d'autres appareils (néphélomètre aéroporté par exemple, cf. chapitre 3).

Pour chaque courbe $\varphi_{i,meas}$, le calcul direct permet de déterminer φ_i avec les mêmes paramètres microphysiques (r_V , e , C_V) mais en faisant varier n et χ en chaque point de la grille. Le RMS peut alors être estimé pour tous les points de la grille. Dans cette analyse de sensibilité, aucune inversion n'est effectuée. $\varphi_{i,meas}$ et φ_i sont obtenues par le calcul direct.

Les résultats de l'analyse de sensibilité sont montrés sous forme de graphiques 3D. L'avantage de cette approche avec un problème inverse non linéaire, réalisée en termes d'écart quadratique moyen à l'aide d'une

représentation 3D, est que tous les minima peuvent être vus en même temps. Ceci est particulièrement pratique grâce aux logiciels qui réalisent les rotations de ces graphiques.

Pour les figures de 4-1 à 4-6, l'axe X représente l'indice imaginaire χ , l'axe Y la partie réelle n et l'axe Z la valeur calculée du RMS. Les axes X et Z sont représentés en échelle log. Sur chaque figure, la partie de gauche correspond au cas sans erreur ($\varepsilon = 0$) et celle de droite pour $\varepsilon = 0,1$.

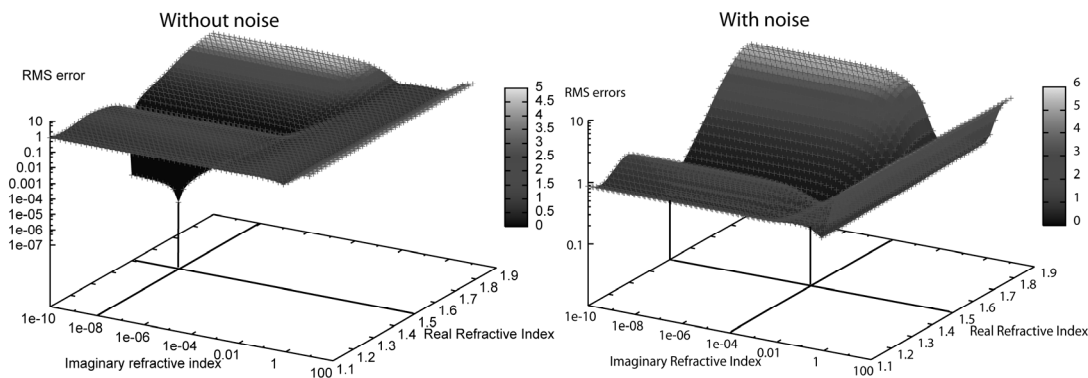


Figure 4-1 : Graphiques 3D du RMS en fonction des parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction. La partie de gauche correspond au test sans bruit de mesure et celle de droite avec un bruit de 10 %. Cas pour des particules faiblement absorbantes $m = 1.5 + 10^{-8}i$

La figure 4-1 fournit le résultat pour des particules faiblement absorbantes. Les mesures synthétiques ont été calculées pour un indice de réfraction $m_{meas} = 1,5 + 10^{-8}i$ et une distribution en taille avec les paramètres $r_v = 0,5 \mu m$, $e = 0,5$ et $C_v = 10^{-6}$, ce qui correspond dans le cas de particules d'eau à un contenu en eau LWC de $1 g/m^3$. Les valeurs RMS, surface des graphiques 3D, sont représentées en fonction des parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction variable m . Pour le cas sans erreur, un minimum pointu est exactement positionné à $m = 1,5 + 10^{-8}i$. (Le point $RMS = 0$ n'est pas visible sur ces figures car le RMS est en échelle log). Ce minimum se situe donc à la même valeur d'indice de réfraction servant au calcul de la donnée synthétique. Dans le cas sans bruit, les données du D2PN sont très sensibles à l'indice de réfraction. Les erreurs de mesures réduisent sensiblement la sensibilité à l'indice imaginaire. Comme cela peut être vu sur la figure 4-1, il n'y a pas de minimum pointu, c'est une vallée plate. Seulement une valeur maximale de l'indice imaginaire peut être estimée : $\chi \leq 10^{-4}$. Par contre, pour chaque valeur de $\chi \leq 10^{-4}$, le minimum de RMS est à $n = 1,5$, valeur correspondante à la valeur d'entrée. Les données du D2PN restent donc sensibles à

la partie réelle de l'indice de réfraction. Quand la partie imaginaire est faible et que le bruit de mesure est de 10 %, les données du D2PN permettent de déduire la partie réelle n et fournit l'information que l'indice imaginaire est inférieur à 10^{-4} . La conclusion est la même lorsque l'on choisit d'autres valeurs pour r_V et e et pour un bruit de 5 %.

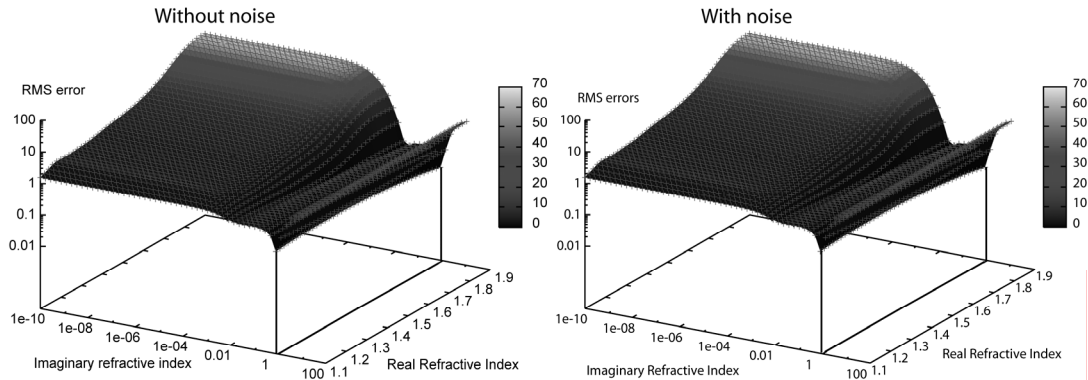


Figure 4-2 : Graphiques 3D du RMS en fonction des parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction. La partie de gauche correspond au test sans bruit de mesure et celle de droite avec un bruit de 10 %. Cas pour des particules fortement absorbantes $m = 1.5 + 1i$

La figure 4-2 correspond au cas de particules très absorbantes. La valeur de χ vaut 1 pour le calcul de la donnée synthétique, les autres paramètres d'entrée restent les mêmes. Pour les deux cas, données avec et sans bruit, le minimum du RMS pour l'indice imaginaire est bien situé à $\chi = 1$. Les parties les plus basses du RMS pour la partie réelle se situent aux bords du domaine d'étude. Par conséquent, les données du D2PN ne sont pas sensibles à la partie réelle de l'indice quand l'absorption est élevée. La valeur de la partie réelle ne peut donc pas être déterminée. Dans le cas, où les données synthétiques sont bruitées, la capacité de restituer l'indice imaginaire est inchangée. Ce paramètre peut donc être déduit avec une bonne précision.

Une rapide réflexion peut expliquer les deux résultats précédents. Dans la plage des angles de mesures du D2PN, la fonction de phase des particules non absorbantes dépend principalement de l'indice réel (Bohren et Huffman, 1983). L'augmentation jusqu'à 10^{-4} de l'indice imaginaire affecte peu la fonction de phase. Dans le cas de données bruitées, le bruit cache les variations de la fonction de phase dues à l'augmentation de χ . Par contre, les modifications apportées à la mesure par les variations de l'indice réel dépassent l'effet du bruit. Pour les particules fortement absorbantes avec χ de l'ordre de 1, la fonction de phase ne

dépend pratiquement pas de l'indice réel. La fonction de phase est très plate à cause de la grande valeur de l'indice imaginaire. En même temps, la fonction de phase reste sensible à la variation de χ .

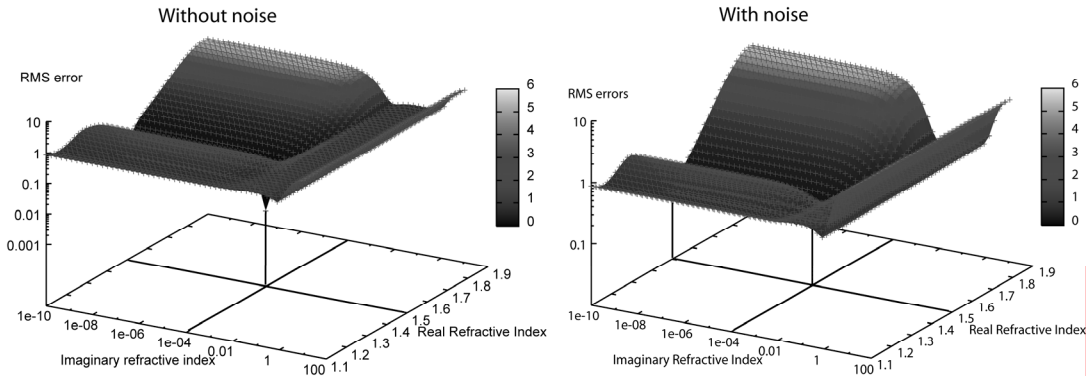


Figure 4-3 : Graphiques 3D du RMS en fonction des parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction. La partie de gauche correspond au test sans bruit de mesure et celle de droite avec un bruit de 10 %. Cas pour des particules d'indice $m = 1.5 + 10^{-4}i$

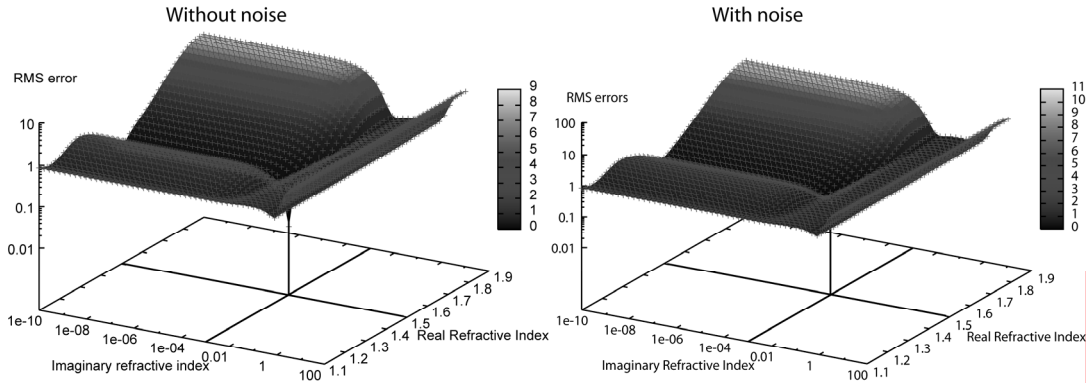


Figure 4-4 : Graphiques 3D du RMS en fonction des parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction. La partie de gauche correspond au test sans bruit de mesure et celle de droite avec un bruit de 10 %. Cas pour des particules d'indice $m = 1.5 + 10^{-3}i$

Le cas où l'absorption est modérée ($10^{-4} \leq \chi \leq 0,5$) a été également étudié. Les figures 4-3, 4-4, 4-5 représentent respectivement les cas avec un indice de réfraction $m_{\text{meas}} = 1,5 + 10^{-4}i$, $m_{\text{meas}} = 1,5 + 10^{-3}i$, $m_{\text{meas}} = 1,5 + 10^{-2}i$. La présentation des figures est exactement la même que pour les figures 4-1 et 4-2. Dans les 2 cas, avec ou sans bruit, les minima du RMS correspondent à la valeur de l'indice de réfraction qui a servi au calcul de la mesure synthétique. Les parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction peuvent être déduites des mesures du D2PN quand l'absorption est intermédiaire. Ceci est dû au fait que les variations de la fonction de phase de ce type de particules ($10^{-4} \leq \chi \leq 0,5$) sont importantes quand n et/ou χ varient (Bohren et Huffman, 1983). Par conséquent, dans les cas où $10^{-4} \leq \chi \leq 0,5$, les parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction peuvent être estimées avec une bonne précision. On peut signaler que c'est exactement dans

cette étendue que Dubovik et ses collègues ont développé leur code d'inversion pour les sphères et/ou ellipsoïdes aléatoirement orientées. (Dubovik, 2004 ; Dubovik et al., 2006).

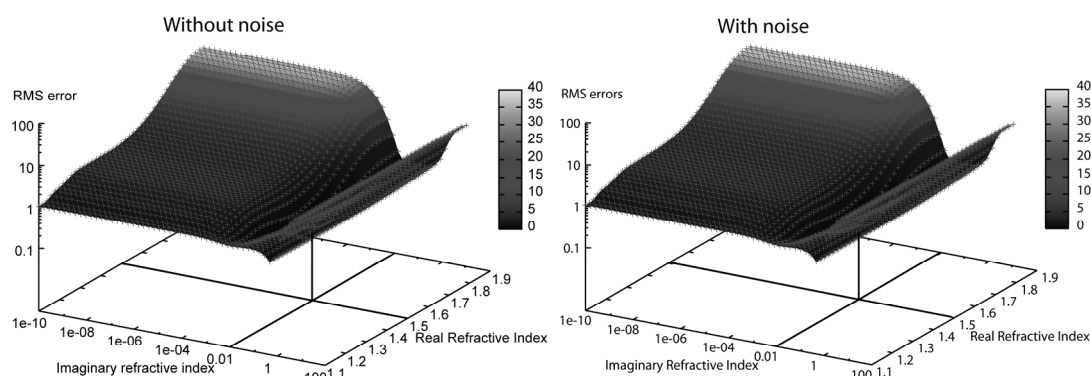


Figure 4-5 : Graphiques 3D du RMS en fonction des parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction. La partie de gauche correspond au test sans bruit de mesure et celle de droite avec un bruit de 10 %. Cas pour des particules d'indice $m = 1.5 + 10^{-2}i$

La figure 4-6 peut être vue comme un exemple représentatif de la non linéarité de notre problème inverse. Sur la partie gauche, il y a deux minima pointus à $m = 1.5 + 10^{-1}i$ et à $m = 1.4 + 0.5i$. Deux minima assez doux peuvent être également vus sur la partie droite aux mêmes valeurs d'indice. Une analyse rigoureuse des graphiques 4-1 à 4-5 montre une vallée secondaire à χ d'environ 1. Par conséquent, quand un algorithme itératif (par exemple, méthode du gradient) est utilisé pour restituer l'indice de réfraction, les valeurs de démarrage doivent être prises avec soin pour éviter ce minimum secondaire.

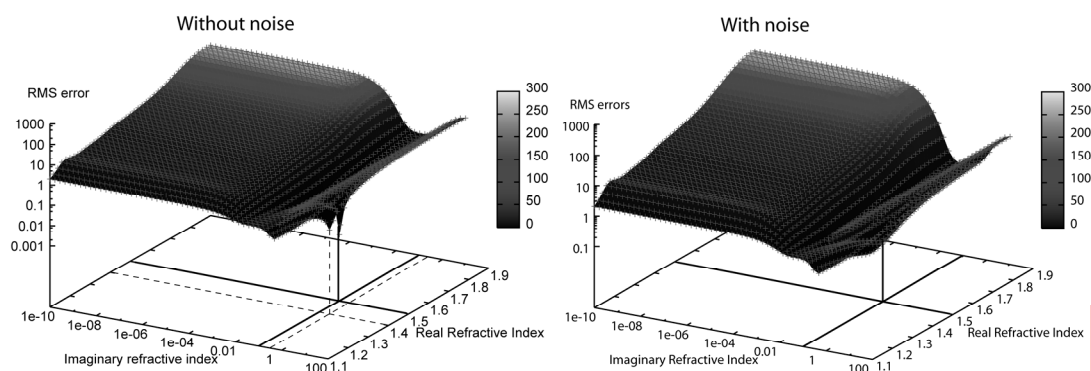


Figure 4-6 : Graphiques 3D du RMS en fonction des parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction. La partie de gauche correspond au test sans bruit de mesure et celle de droite avec un bruit de 10 %. Cas pour des particules d'indice $m = 1.5 + 10^{-1}i$

Des tests de sensibilité du même type ont été réalisés pour un indice réel variant de 1,1 à 1,9 et pour un indice imaginaire de 10^{-8} à 1. Les propriétés décrites précédemment restent inchangées pour la plage d'indice réel de 1,1 à 1,9. Les

erreurs de mesures affectent significativement la précision de la restitution et cette précision dépend principalement des valeurs de χ .

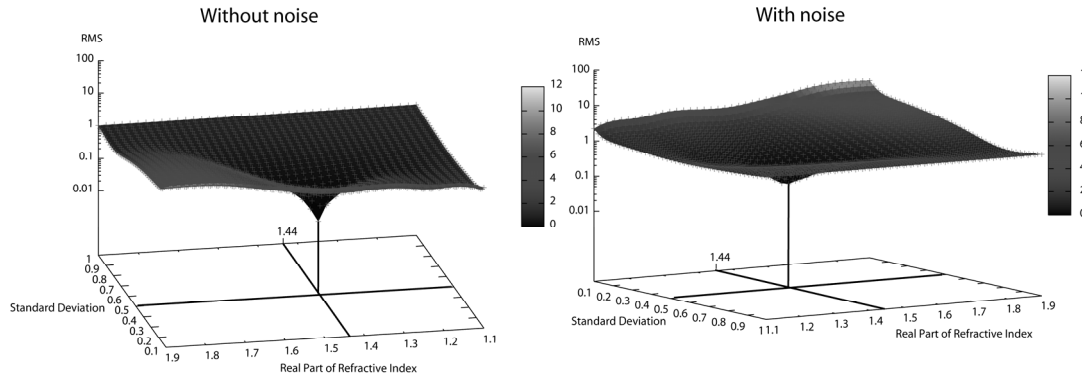


Figure 4-7 : Graphiques 3D du RMS en fonction de l'écart-type de la distribution et la partie réelle de l'indice de réfraction. La partie de gauche correspond au test sans bruit de mesure et celle de droite avec un bruit de 10 %. Cas pour des particules d'indice $m = 1.44 + 5.10^{-3}i$

Dans la suite, les tests de sensibilité sur la restitution de l'écart-type e et sur le rayon médian r_v de la distribution en même temps que l'indice de réfraction complexe ont été faits. Un exemple de ces tests est montré sur la figure 4-7. L'axe X est l'écart-type e , Y est la partie réelle n , et l'axe Z est la valeur du RMS. La figure 4-7 représente le cas pour des particules moyennement absorbantes $m_{\text{meas}} = 1.44 + 5.10^{-3}i$ et un bruit de mesure de 10 %. La vraie valeur de e , qui vaut 0,5, est restituée. La restitution avec la partie imaginaire a été également effectuée. Ceci est en accord avec les résultats de la figure 4-4 obtenue avec des valeurs n et χ similaires.

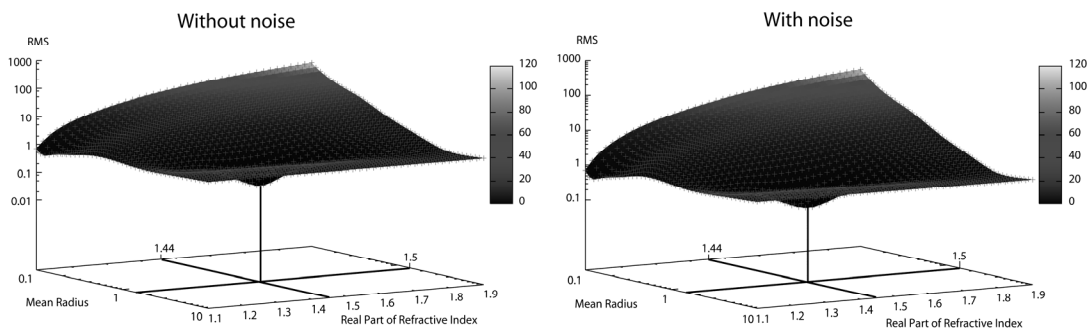


Figure 4-8 : Graphiques 3D du RMS en fonction du rayon médian de la distribution et la partie réelle de l'indice de réfraction. La partie de gauche correspond au test sans bruit de mesure et celle de droite avec un bruit de 10 %. Cas pour des particules d'indice $m = 1.44 + 5.10^{-3}i$

Nos simulations révèlent que les données du D2PN fournissent la possibilité de restituer le rayon médian en volume r_v et la partie réelle de l'indice de réfraction n . La figure 4-8 représente le RMS (axe Z, échelle log) en fonction du rayon r_v (axe X et échelle log) et de l'indice réel n (axe Y). Un minimum est visible

à $r_v = 1,5 \mu\text{m}$ et $n = 1,44$. Ces valeurs correspondent à celles utilisées pour le calcul de la mesure synthétique.

Les figures 4-1 à 4-8 montrent des exemples de graphiques RMS en fonction de deux paramètres. Suivant nos simulations, les résultats cités avant restent inchangés quand quatre paramètres (les paramètres microphysiques e et r_v et les deux composantes de l'indice de réfraction) varient simultanément. Les grandeurs e et r_v peuvent être restituées en même temps que l'indice de réfraction. Pour l'indice, il faut quand même rappeler qu'il y a des différences entre les cas où l'absorption est faible, moyenne ou forte.

La même conclusion est valable pour la restitution de la concentration C_v , mis à part l'exception des particules fortement absorbantes (indice imaginaire de l'ordre de 1). Dans ce cas-ci, il n'y a pas de minimum prononcé du RMS en fonction de C_v et de l'indice imaginaire. Cette propriété peut être expliquée en utilisant le formalisme de problème inverse linéaire. La matrice de covariance des erreurs de restitution causée par un bruit aléatoire peut être estimée par l'expression suivante (section 3.2 de Tarantola, 2005 et Eadie et al., 1971) :

$$\mathbf{C} = (\mathbf{B}^T \mathbf{W}^{-1} \mathbf{B})^{-1} \quad (4.12)$$

où $\mathbf{B}$ est la matrice de Jacobi des dérivées premières aux alentours de la solution, c'est à dire, $\mathbf{B}_{ij} = \partial \varphi_i / \partial a_j$, $\mathbf{W}$ est la matrice de covariance des erreurs de mesures. Les racines carrées des éléments de la diagonale (variances) de $\mathbf{C}$ peuvent être interprétées comme des « barres d'erreur » (Tarantola, 2005). Si $Det = \det(\mathbf{B}^T \mathbf{W}^{-1} \mathbf{B})$ est proche de zéro, $\mathbf{C}_{ii} = [(\mathbf{B}^T \mathbf{W}^{-1} \mathbf{B})^{-1}]_{ii} \rightarrow \infty$. Cela signifie que les paramètres a_j ne peuvent pas être estimés ensemble.

Avec les angles de mesures du D2PN et pour χ proche de 1, la valeur du déterminant de Det est très faible, 10^6 fois plus faible que la valeur lorsque les particules sont moyennement absorbantes. D'un autre côté, si le jeu des paramètres est χ , e et r_v , les valeurs de Det sont du même ordre de grandeur quelle que soit la valeur de χ . La concentration C_v et l'indice imaginaire affectent les données du D2PN dans des directions opposées pour des particules fortement absorbantes.

Ces résultats concernent seulement les mesures prises dans un nombre d'angles limités ou plus précisément, en l'absence d'angle dans la diffusion avant. L'analyse des vecteurs propres (Twomey, 1977) du logarithme de la section efficace volumique, mesurée de 0° à 180° , révèle que les principales informations sur les particules fortement absorbantes sont contenues dans l'intervalle $0^\circ \leq \theta \leq 20^\circ$. Si cet intervalle de mesure est disponible, le déterminant *Det* est suffisamment élevé et les paramètres microphysiques peuvent être restitués en même temps que l'indice de réfraction. C'est pourquoi les mesures d'auréoles CIMEL (Dubovik et al., 2000, Li et al., 2007) sont particulièrement intéressantes pour l'étude des aérosols issus de la combustion de carburant fossile et de biomasse. Dans le cas de particules moyennement absorbantes ($10^{-4} \leq \chi \leq 0,5$), les angles de diffusion compris entre 90° et 160° sont cette fois-ci informatifs.

Nos tests, réalisés avec les intensités suivant la polarisation parallèle et perpendiculaire prise indépendamment ou en combinaison, montrent que la sensibilité du D2PN augmente par rapport à la section efficace volumique, mais pas considérablement. Cependant on peut penser que les fluctuations des intensités suivant la polarisation seront importantes pour la caractérisation des particules non sphériques (Dubovik et al., 2006).

4.3 Mise en place d'une méthode d'inversion

Après avoir étudié la faisabilité, la mise en place d'une méthode de restitution de l'indice de réfraction complexe en même temps que la distribution en taille, va être expliquée de façon détaillée dans cette partie. Dans un premier temps, l'inversion pour retrouver le spectre sera définie, ensuite, la méthode de restitution de l'indice sera fournie.

4.3.1 Inversion pour retrouver le spectre à indice de réfraction fixé

Cette méthode a été développée par Dubovik et al. en 1995.

Le problème tel qu'il est posé est linéaire. Il aurait été possible d'utiliser une inversion type de moindre carré, mais dans ce cas, une distribution volumique avec des valeurs négatives pourrait être trouvée. Or une valeur négative dans une distribution en taille n'a pas de sens physique.

Egalement comme la puissance diffusée a une dynamique qui couvre plusieurs décades, suivant les angles de diffusion et suivant les rayons, la matrice noyau K est mal conditionnée et le problème est mal posé.

Afin d'éviter tous ces inconvénients, l'équation est passée de l'espace linéaire a un espace logarithmique. De ce fait, le problème devient non-linéaire. Ceci n'est pas problématique car les vecteurs ϕ (caractéristiques optiques) et $\mathbf{a}$ (paramètres microphysiques) sont définis avec des valeurs positives.

La restitution d'une solution statistiquement optimale non négative (Dubovik et al., 1995) distingue cette méthode de la méthode linéaire (Philips, 1962 ; Twomey, 1963) et de la méthode non linéaire (Chahine, 1968 ; Twomey, 1975).

$$\ln \mathbf{a}^{q+1} = \ln \mathbf{a}^q - \mathbf{H}^q \left\{ \mathbf{U}^{qT} (\ln \phi^q - \ln \phi^*) + \gamma_1 \mathbf{\Omega} \ln \mathbf{a}^q + \gamma_2 (\ln \mathbf{a}^q - \ln \mathbf{a}^0) \right\} \quad (4.8)$$

$\mathbf{H}^q$ est une matrice diagonale définie comme suivant :

$$\mathbf{H}_{ij}^q = \left(\sum_{i=1}^r \left| \mathbf{U}^{qT} \mathbf{U}^q + \gamma_1 \mathbf{\Omega} + \gamma_2 \mathbf{I} \right| \right)^{-1} \delta_{ij} \quad (4.9)$$

avec $\mathbf{U}^q$ la matrice avec les éléments :

$$\mathbf{U}_{ij}^q = \frac{\partial \ln \phi_j^*}{\partial \mathbf{a}_i} = \frac{\mathbf{K}_{ij} \mathbf{a}_i^q}{\phi_j^*} \quad (4.10)$$

q : numéro de l'itération

ϕ^* : fonction de phase mesurée

ϕ : fonction de phase inversée

$\mathbf{a}$: distribution

$\mathbf{a}^0$: distribution initiale

$\mathbf{\Omega}$: matrice de lissage

γ_1, γ_2 : paramètres de régularisation

$\mathbf{I}$: matrice identité

δ est le symbole de Kronecker

$\mathbf{X}^T$: transposé de matrice $\mathbf{X}$

La matrice de lissage est définie de cette façon :

$$\Omega = \begin{bmatrix} 1 & -2 & 1 & & & & & & & \\ -2 & 5 & -4 & 1 & & & & & & \\ 1 & -4 & 6 & -4 & 1 & & & & & \mathbf{0} \\ & 1 & -4 & 6 & -4 & 1 & & & & \\ & & 1 & -4 & 6 & -4 & 1 & & & \\ & & & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & & \\ & & & & 1 & -4 & 6 & -4 & 1 & \\ & & \mathbf{0} & & & 1 & -4 & 6 & -4 & 1 \\ & & & & & & 1 & -4 & 5 & -2 \\ & & & & & & & 1 & -2 & 1 \end{bmatrix}$$

Cette méthode complète est utilisée pour calculer le spectre dimensionnel des particules pour un indice de réfraction complexe (m) fixé.

4.3.2 Méthode de la table de « Look-up » pour la restitution simultanée de la distribution et de l'indice de réfraction

Une méthode de restitution simultanée de la distribution en taille et de l'indice de réfraction complexe a été développée à partir de la méthode d'inversion précédente.

La méthode complète d'inversion utilisée repose sur l'utilisation de deux techniques :

- la méthode d'inversion pour la restitution du spectre dimensionnel pour un indice de réfraction complexe (m) fixé (Dubovik et al., 1995).
- une table de « look-up » pour la restitution de l'indice de réfraction complexe

La présentation de la méthode d'inversion au moyen de la table de look-up a déjà été rapidement présentée dans le paragraphe 4.2.1. L'écart quadratique moyen (RMS, Root Mean Square) qui représente l'écart quadratique entre la fonction de phase mesurée φ^* et la fonction de phase recalculée $\varphi_{inv}(m)$ après l'inversion du spectre et pour l'indice complexe (m) est rappelé :

$$RMS(m) = \frac{1}{nb} \sqrt{\sum_{i=1}^{nb} \frac{(\varphi_{i,inv}(m) - \varphi_i^*)^2}{\varphi_i^{*2}}} \quad (4.11)$$

Avec nb : le nombre d'angles de mesure de la lumière diffusée.

Le principe de la méthode de table de « look-up » est de calculer l'écart quadratique moyen sur la totalité de la courbe pour chaque indice de réfraction complexe contenu dans la table, après avoir effectué l'inversion pour obtenir la distribution. Une fois la table calculée, il suffit d'en extraire le minimum avec son indice complexe et sa distribution en taille pour avoir tous les paramètres recherchés.

Comme cet indice m se décompose en deux parties : une partie réelle (n) et une partie imaginaire (χ), la table est bidimensionnelle. Le calcul de RMS est effectué pour un indice réel toujours compris entre 1,1 et 1,9 et un indice imaginaire toujours variant de 10^{-10} à 10^{-1} . Pour l'indice réel, il y a 40 pas d'un incrément linéaire de 0,02. Pour l'indice imaginaire, il y a 50 pas et l'incrément est logarithmique, ce qui revient à multiplier la valeur précédente de l'indice imaginaire par un facteur de 1,66. La distribution est calculée pour 25 classes comprises entre 0,1 μm et 100 μm . Les paramètres de recherche sont larges, ce qui permet de travailler sur la majorité des mesures. Ceci représente 2 000 inversions avec 2 000 matrices K de 181 angles par 25 classes.

Autour de la valeur minimale du RMS, on reconstruit une nouvelle table dont la largeur correspond à deux pas de la recherche précédente. On prend un nouveau pas de recherche, qui est une division par 4 du pas précédent dans notre cas. On effectue le calcul des RMS pour cette nouvelle table pour l'obtention d'un nouveau minimum. En général, on s'arrête à la troisième table. Dans ce travail de thèse, nous nous sommes intéressés essentiellement à la restitution de l'indice de réfraction. C'est pour cette raison que les paramètres de la granulométrie (nombre de classes et leur taille) ne sont pas modifiés entre les différentes tables.

Le minimum est donc la plus petite différence entre la mesure et le modèle sur le domaine d'étude. Plus le domaine à étudier est petit, plus le temps de calcul est court car il y a moins de cas à étudier.

Pour que cette méthode donne de bons résultats, il est nécessaire que la solution soit contenue dans la table. Si la table est de petite taille, il faut donc s'assurer au préalable ou a posteriori que la solution se situe bien dans le domaine d'étude.

4.3.3 Vérification du bon fonctionnement de la méthode d'inversion complète

Dans le même esprit que pour les tests de sensibilité du paragraphe 4.2, des tests de bon fonctionnement ont été effectués afin de vérifier la validité de la méthode de la table « look-up ». Par conséquent, la méthode de restitution est d'abord testée à l'aide de mesures synthétiques. Les mesures synthétiques sont calculées à partir du modèle direct en prenant une distribution dimensionnelle définie avec trois paramètres (cf. équation 4.4) et un indice de réfraction fixé. Ces mesures synthétiques (en termes d'indicatrices de diffusion) sont ensuite toujours bruitées avec un bruit de 10 % qui simule les erreurs de mesure de l'instrument, comme explicité dans le paragraphe 4.2. La méthode de présentation est également la même. Dans la suite de ce paragraphe, nous allons détailler les résultats obtenus pour un nombre limité d'exemples.

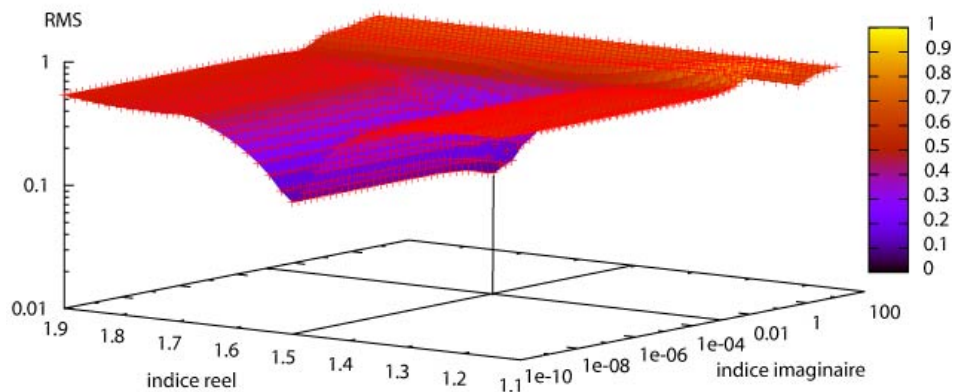


Figure 4-9 : Variations du RMS. La mesure synthétique a été calculée avec un indice de réfraction complexe $m = 1,5 + i 10^{-3}$

La figure 4-9 représente les valeurs du RMS en fonction de l'indice de réfraction réel et imaginaire avec des valeurs itérées dans le domaine de variation de la première table de look-up. Dans le cas de cette figure, les mesures synthétiques ont été calculées avec un indice de réfraction complexe : $m = 1,5 + i 10^{-3}$ (particules diffusantes) et $r_V = 5 \mu\text{m}$, $e = 1$ et $C_V = 10^{-6}$. Les résultats montrent que la restitution de l'indice complexe est univoque (minimum unique) avec une excellente précision sur les deux composantes de l'indice réel et imaginaire (par rapport aux valeurs fixées initialement).

La figure 4-10 représente les variations du RMS pour une population de particules qui aurait un indice de réfraction $m = 1,5 + i 10^{-8}$, les paramètres

microphysiques restant inchangés. On peut remarquer que la restitution n'est pas univoque car même si la valeur de l'indice réel est bien restituée ($n = 1,5$), on ne peut fournir qu'une indication sur la valeur de l'indice imaginaire comme $\chi \leq 10^{-4}$.

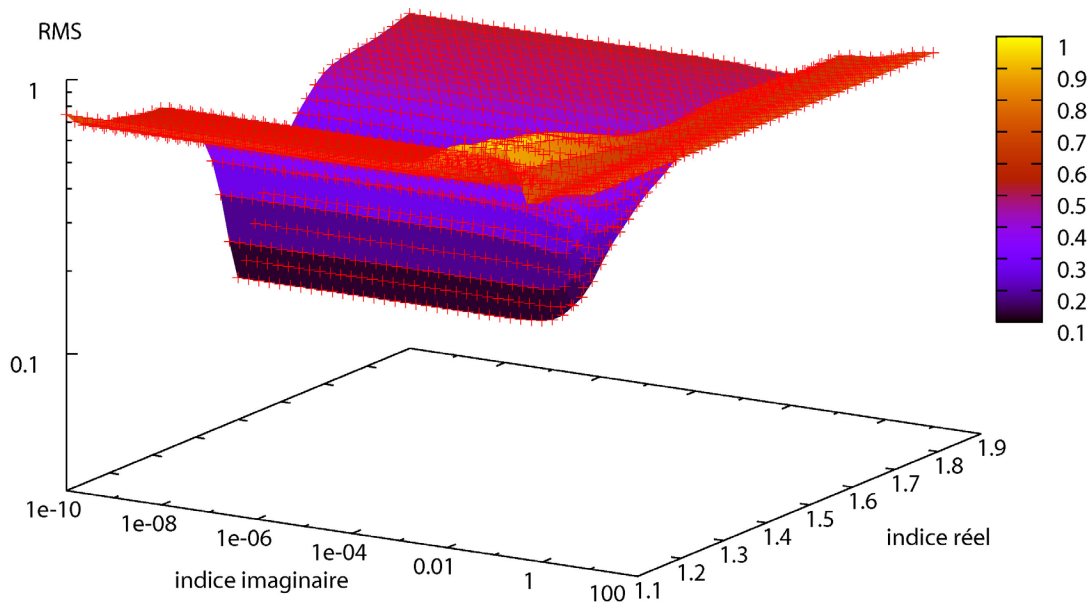


Figure 4-10 : Variations du RMS. La mesure synthétique a été calculée avec un indice de réfraction complexe $m = 1,5 + i 10^{-8}$

La figure 4-11 correspond à une population de particules avec un indice $m = 1,5 + i 10^{-4}$. On peut effectuer exactement les mêmes constatations que pour la figure 4-10. Ceci correspond bien à ce qui a été discuté au sujet de la sensibilité des données dans le paragraphe 4.2.

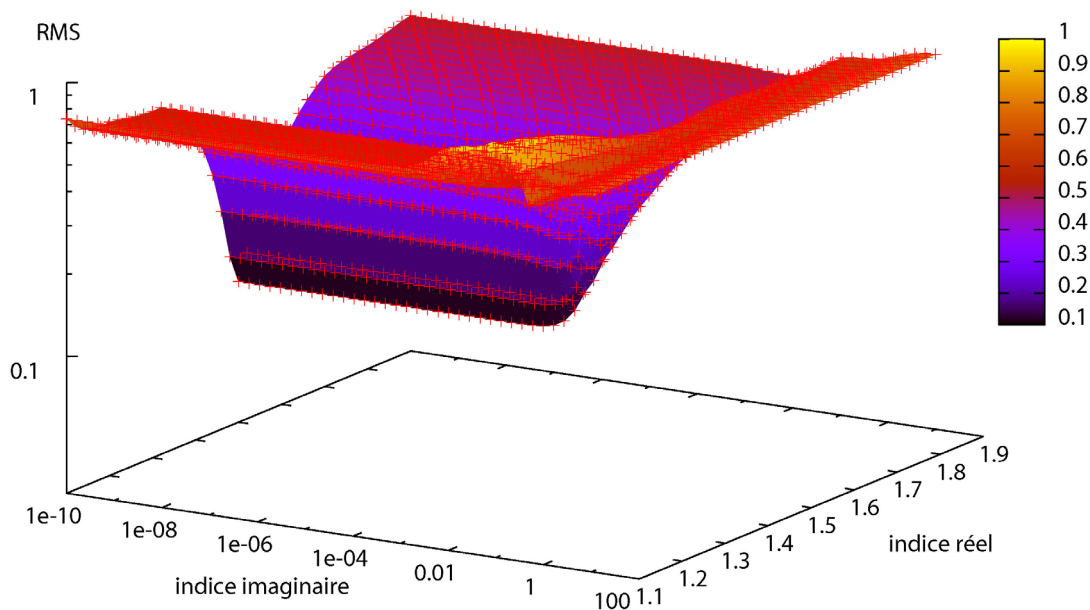


Figure 4-11 : Variations du RMS. La mesure synthétique a été calculée avec un indice de réfraction complexe $m = 1,5 + i 10^{-4}$

Après avoir discuté les cas où les gouttes sont faiblement absorbantes, les possibilités de restitution pour des particules absorbantes vont être détaillées. La figure 4-12 représente les variations du RMS pour une population de particules qui aurait un indice de réfraction $m = 1,5 + i 10^{-2}$. Ce cas-ci ressemble au cas de la figure 4-9 ($m = 1,5 + i 10^{-3}$). L'indice de réfraction complexe peut être correctement déterminé.

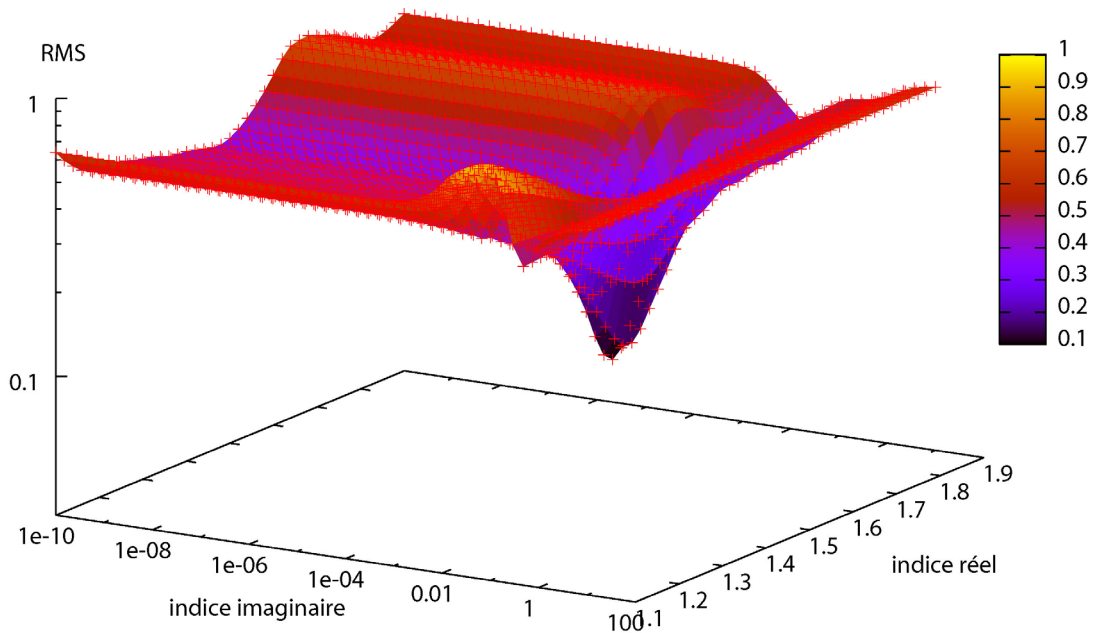


Figure 4-12 : Variations du RMS. La mesure synthétique a été calculée avec un indice de réfraction complexe $m = 1,5 + i 10^{-2}$

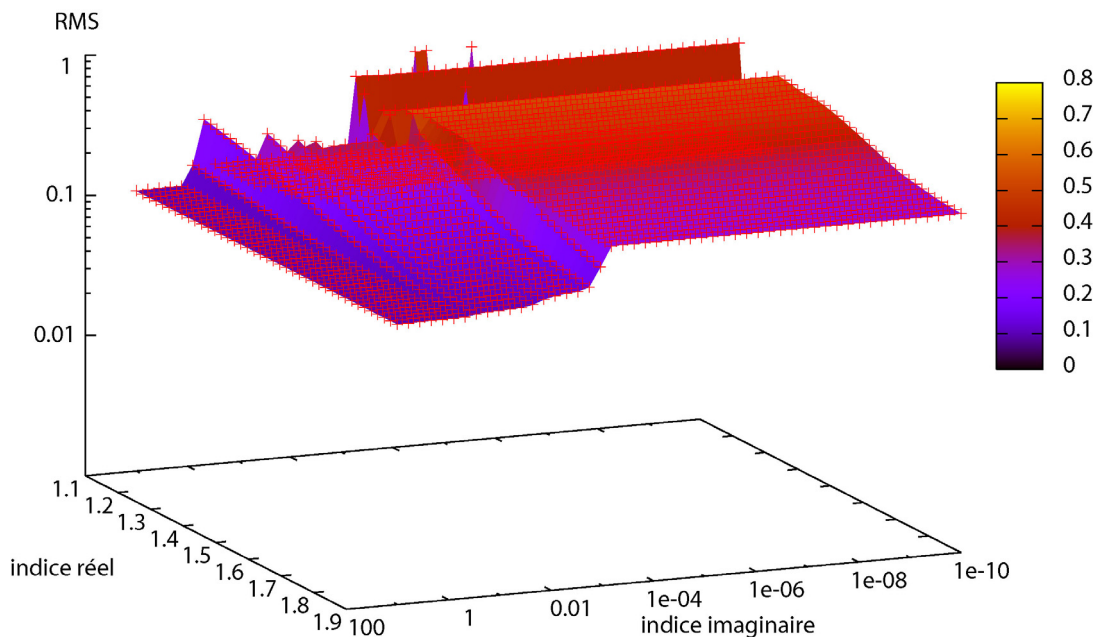


Figure 4-13 : Variations du RMS. La mesure synthétique a été calculée avec un indice de réfraction complexe $m = 1,5 + i 10^{-0}$

La figure 4-13 correspond à une mesure synthétique avec une population des gouttes très absorbantes ($m = 1,5 + i 1,0$). On peut remarquer que l'on ne peut pas restituer l'indice réel. Il n'y a pas de minima, c'est plutôt une large étendue de valeurs identiques pour un indice complexe χ supérieur à 1. Dans ce cas, l'indication utilisée est que l'indice imaginaire χ est supérieur à 1. L'explication de ce phénomène est fournie au paragraphe 4.2 : les effets de l'augmentation de l'indice imaginaire sont exactement compensés par une augmentation de la concentration.

Toutes les figures précédentes de ce paragraphe ont été obtenues en utilisant une mesure synthétique (ϕ^*) similaire à notre appareil D2PN, c'est-à-dire l'angle de diffusion variant de 19° à 160° .

Les résultats de la figure 4-14 concernent encore des particules très absorbantes $m = 1,5 + i 1,0$ mais avec un néphélomètre parfait qui mesurerait la lumière diffusée pour des angles de 0° à 180° . Dans ce cas, la restitution n'est toujours pas univoque car même si la valeur de l'indice imaginaire est bien restituée ($\chi = 1,0$), ainsi que la concentration, en revanche l'indice réel est toujours indéterminé (pas de minimum bien marqué). Ceci est en adéquation avec la remarque du paragraphe 4.2.

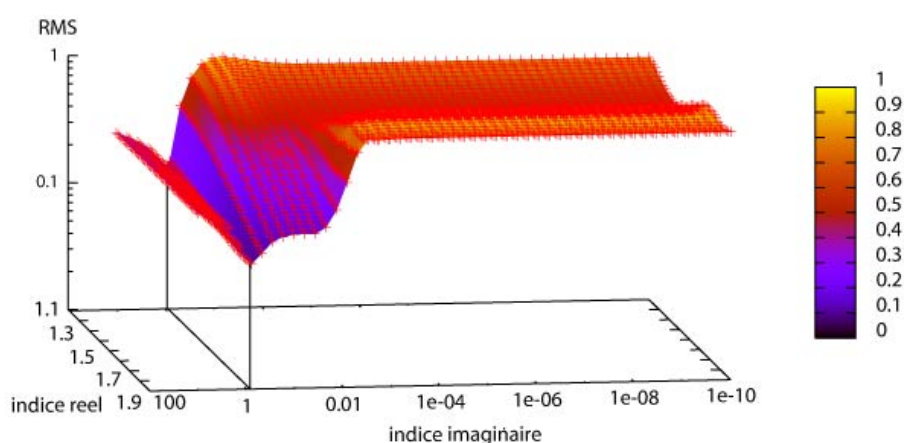


Figure 4-14 : Variations du RMS. La mesure synthétique a été calculée avec un indice de réfraction complexe $m = 1,5 + i$, pour un néphélomètre polaire parfait (angles de mesures de 0 à 180°)

Les résultats présentés ci-dessus sont ceux qui ont été bruités avec un bruit de 10 %. Des tests ont été aussi effectués dans le cas où la fonction de phase n'est

pas bruitée. Les résultats sont les mêmes ; il n'y a pas de possibilités supplémentaires de restitution d'un indice dans le cas où les particules sont faiblement ou très fortement absorbantes.

A partir des ces exemples ci-dessus la méthode complète d'inversion a été testée sur une large gamme d'indices : (n) de 1,1 à 1,9 et (χ) de 10^{-8} à 1. Il n'y a pas de changements entre les différents indices réels. Les minima sont situés de la même façon que pour l'indice réel de 1,5. La même étude a été réalisée pour les polarisations parallèle et perpendiculaire et les conclusions sont similaires. On peut toutefois dire que les minima sont plus accentués dans le cas de la polarisation perpendiculaire que pour la parallèle.

On note que la limitation porte sur la restitution de l'indice réel uniquement pour des particules très absorbantes avec un indice imaginaire supérieur à 0,5. Pour des particules non absorbantes ($\chi \leq 10^{-4}$), la valeur fournie par la méthode n'est qu'indicative. On obtient un ensemble de minima pour des valeurs $\chi \leq 10^{-4}$ sans un minimum bien marqué. Ceci est valable quel que soit l'indice réel et la polarisation de la lumière diffusée utilisée.

4.3.4 Etude de l'incertitude des paramètres restitués

Suite à la vérification sur quelques cas que la méthode complète de restitution fournissait bien les résultats attendus, une étude systématique a été réalisée afin de fournir une incertitude sur les paramètres microphysiques et l'indice restitués.

4.3.4.1 Méthodologie

La réalisation de cette étude est composée de plusieurs étapes :

1. synthétiser une mesure bruitée avec un indice de réfraction et une distribution connus, soit 5 paramètres (r_v , e , C_v , n et χ)
2. utilisation de l'inversion pour restituer la distribution et l'indice de réfraction complexe à partir de la mesure synthétique
3. stocker le résultat
4. répéter les étapes 1, 2 et 3 autant de fois que nécessaire pour les cinq paramètres donnés. Dans notre étude, nous avons effectué

seulement 10 réalisations, pour des problèmes de temps. De ce fait, cette étude fournit seulement une indication de la précision de cette méthode.

5. à partir des résultats stockés, faire l'étude statistique des écarts entre les valeurs restituées et la « vraie » valeur pour la totalité des paramètres.

L'utilisation de mesures synthétiques est le moyen le plus juste pour estimer la précision de la méthode car on connaît exactement la valeur des paramètres à restituer.

4.3.4.2 Résultats

Les résultats sont exprimés cette fois-ci avec un écart-type expérimental ξ définie de la façon suivante :

$$\xi = \sqrt{\frac{1}{nb} \sum_{i=1}^{nb} (x_i - x_{Vrai})^2} \quad (4.12)$$

avec nb le nombre d'inversions, x_i valeur du paramètre x après inversion, x_{Vrai} valeur du paramètre x pour calculer la donnée synthétique.

Trois cas ont été étudiés, avec des mesures synthétiques semblables à de véritables mesures du D2PN. Le bruit ajouté aux mesures est toujours de 10 %, comme pour les exemples précédents. La grille de recherche est toujours conçue pour un indice réel compris entre 1,1 et 1,9 et un indice imaginaire variant de 10^{-10} à 10^{-1} . La distribution est calculée pour 25 classes comprises entre 0,1 μm et 100 μm . Les paramètres de recherche sont larges, ce qui permet de travailler sur la majorité des mesures. Les 3 cas d'étude sont les suivants :

- la section volumique efficace pour des angles de 19° à 160° (tableau 4-2)
- l'intensité suivant la polarisation perpendiculaire pour des angles de 19° à 169° (tableau 4-4)
- l'intensité suivant la polarisation parallèle pour des angles de 10° à 160° (tableau 4-3)

Les paramètres microphysiques initiaux sont : $C_v = 10^{-6} \mu\text{m}^3/\mu\text{m}^3$, $D_m = 4,61 \mu\text{m}$ et $D_{03} = 13,6 \mu\text{m}$. Les incertitudes de restitution de l'ensemble des

paramètres restent du même ordre de grandeur quelle que soit la valeur de l'indice réel. Par conséquent, la valeur pour chaque indice imaginaire est la moyenne des valeurs trouvées avec l'indice réel. Ceci justifie la représentation des tableaux en fonction de χ .

Les tableaux complets avec la variation suivant l'indice réel est en annexe C.

χ	Δn	$\Delta\chi/\chi$	$\Delta C_V/C_V$	$\Delta D_m/D_m$	$\Delta D03/D03$
10^{+0}	0,4474	925%	91%	82%	86%
10^{-2}	0,0300	85%	66%	72%	139%
10^{-3}	0,0416	61%	58%	53%	290%
10^{-4}	0,0102	154%	38%	43%	143%
10^{-8}	0,0311	8311985%	59%	31%	192%

Tableau 4-2 : Estimation de l'incertitude de restitution de la méthode d'inversion sur les mesures de diffusion totale du D2PN avec un bruit de mesure de 10% (angle de mesure de 19° à 160°). Les paramètres restitués sont : n l'indice réel, χ l'indice imaginaire, C_V concentration en volume, D_m diamètre moyen, D03 diamètre volumique médian.

χ	Δn	$\Delta\chi/\chi$	$\Delta C_V/C_V$	$\Delta D_m/D_m$	$\Delta D03/D03$
10^{+0}	0,4192	62%	266%	81%	224%
10^{-2}	0,0325	39%	57%	58%	165%
10^{-3}	0,0086	54%	46%	40%	179%
10^{-4}	0,0047	341%	199%	39%	192%
10^{-8}	0,0118	2562259%	64%	34%	154%

Tableau 4-3 : Estimation de l'incertitude de restitution de la méthode d'inversion sur les mesures de diffusion suivant la polarisation parallèle du D2PN avec un bruit de mesure de 10% (angle de mesure de 10° à 160°). Les paramètres restitués sont : n l'indice réel, χ l'indice imaginaire, C_V concentration en volume, D_m diamètre moyen, D03 diamètre volumique médian.

χ	Δn	$\Delta\chi/\chi$	$\Delta C_V/C_V$	$\Delta D_m/D_m$	$\Delta D03/D03$
10^{+0}	0,3348	100%	101%	95%	570%
10^{-2}	0,0303	64%	66%	75%	380%
10^{-3}	0,0107	54%	41%	54%	150%
10^{-4}	0,0047	133%	39%	32%	256%
10^{-8}	0,0063	856082%	30%	33%	106%

Tableau 4-4 : Estimation de l'incertitude de restitution de la méthode d'inversion sur les mesures de diffusion suivant la polarisation perpendiculaire du D2PN avec un bruit de mesure de 10% (angle de mesure de 19° à 169°). Les paramètres restitués sont : n l'indice réel, χ l'indice imaginaire, C_V concentration en volume, D_m diamètre moyen, D03 diamètre volumique médian.

Les incertitudes fournies peuvent sembler grandes, mais il faut rappeler que le domaine de recherche est grand et que l'incertitude est exprimée linéairement. Par exemple, si la valeur restituée de l'indice imaginaire est 2 au lieu de 1, l'erreur est de 100 % et pourtant l'ordre de grandeur est correct sur le domaine de 10^{-10} à 10. La solution est trouvée sur la bonne décade parmi les 11.

Pour des particules faiblement absorbantes, l'incertitude $\Delta\chi/\chi$ est très grande, mais la méthode ne fournit que l'indication $\chi \leq 10^{-4}$. Dans ce cas-ci, l'incertitude n'a pas de sens.

Il est bon de rappeler également qu'il n'y a pas de resserrement de l'étendue de recherche pour les paramètres microphysiques entre les différentes tables au cours de l'inversion.

4.4 Conclusion

Une méthode de restitution « look-up table » associée avec une méthode d'inversion pour calculer le spectre dimensionnel, est parfaitement capable de retrouver l'indice de réfraction complexe et la distribution en taille d'une population de particules sphériques. Cette méthode est capable de travailler sur une large gamme de valeurs d'indice de réfraction et de diamètre de particules.

Une étude théorique a permis de déterminer les limites et la précision de la méthode de restitution de l'indice de réfraction. La limitation porte sur la restitution de l'indice réel lorsque les particules sont très absorbantes avec un indice imaginaire supérieur à 0,5. Dans le domaine exploré, l'erreur de restitution est inférieure à 10% sur les deux composantes de l'indice de réfraction.

Des tests peuvent donc être effectués avec des données réelles.

5 Inversion de données expérimentales

Suite aux bons résultats fournis par les tests sur des mesures synthétiques, la méthode d'inversion complète a été testée avec des données issues du D2PN et du néphélomètre aéroporté.

5.1 Inversion des données du D2PN

Nous présentons ci-dessous un seul exemple détaillé de mesures effectuées par le D2PN pour des gouttes d'eau (indice réel de 1,329 et indice imaginaire de $1,25 \cdot 10^{-7}$ pour la longueur d'onde de 800 nm du laser du D2PN, d'Almeida et al., 1991). La mesure effectuée par le D2PN de la section efficace volumique est représentée sur la figure 5-1. Elle a été obtenue avec un générateur VOAG (Vibrating Orifice Aerosols Generator).

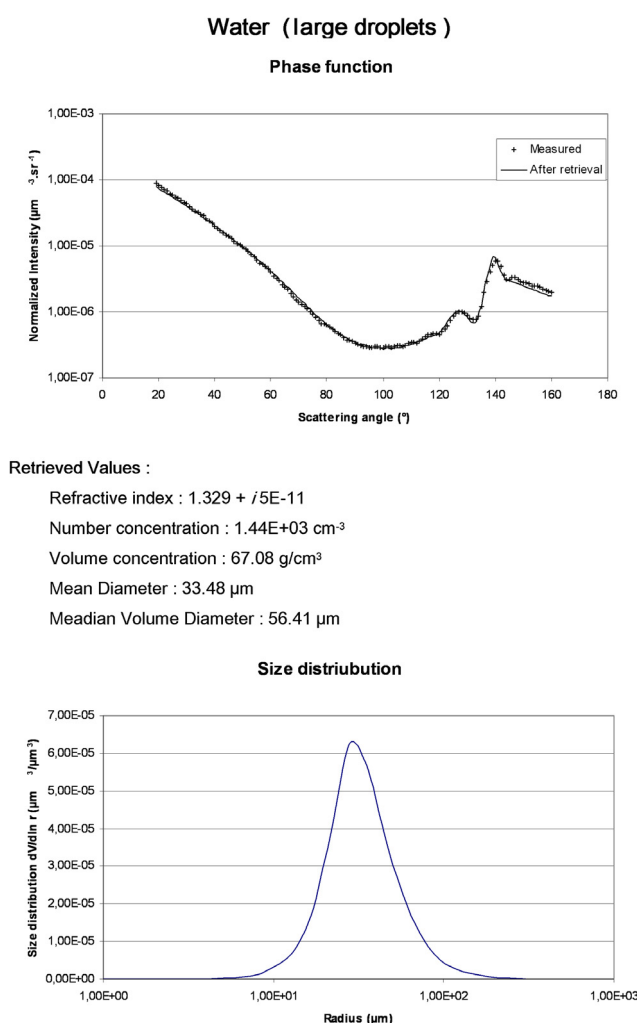


Figure 5-1 : Partie haute : section efficace volumique de diffusion pour de grosses gouttes d'eau, mesurée par le D2PN et après inversion. Le générateur de gouttes est un VOAG. Partie basse : Distribution dimensionnelle volumique en volume (25 classes)

Les résultats de la méthode de restitution de l'indice de réfraction complexe sont représentés sur les figures 5-1 et 5-2 (même représentation que les autres figures RMS telle que la figure 4-1). L'examen de la figure 5-2 montre que la valeur de l'indice réel (1,329) est bien restituée. En revanche, la restitution de la valeur de l'indice imaginaire, bien que présentant un minimum à 5.10^{-11} , n'est qu'indicative car elle est inférieure à 10^{-4} .

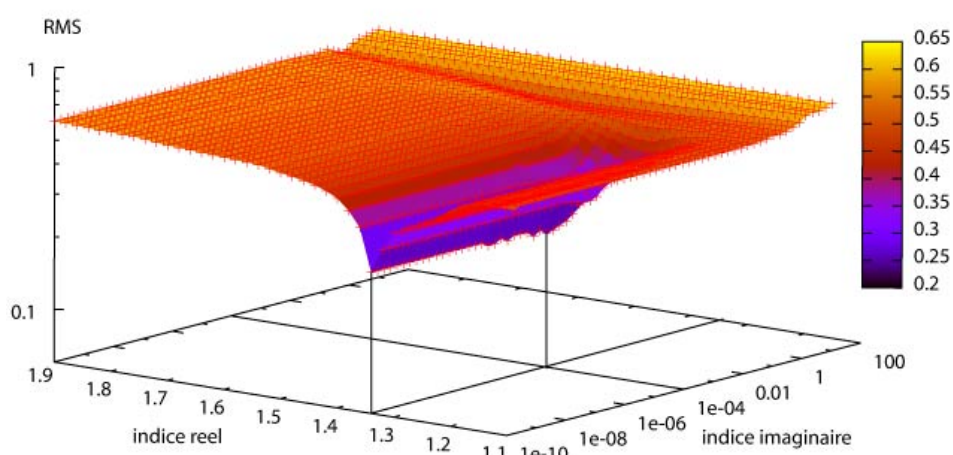


Figure 5-2 : Variations du RMS dans le cas de la restitution pour des gouttes d'eau.

Le calcul de la section efficace volumique avec l'indice de réfraction et la distribution trouvés est aussi reporté sur la figure 5-1. On constate malgré l'incertitude sur l'indice imaginaire, l'excellente restitution de l'effet radiatif de cette population de particules. La seule et unique hypothèse sur cette population a été que les particules étaient sphériques. La distribution retrouvée est monomodale et assez étroite, ce qui correspond à une distribution typique d'un générateur VOAG (Vibrating Orifice Aerosols Generator).

La méthode de restitution a été testée 'en aveugle' sur un jeu de mesures réalisées avec le D2PN pour plusieurs populations de particules de différents indices (différents liquides) et de différentes tailles de gouttes (différents générateurs).

Tous les résultats de cette série d'inversion se trouvent dans le tableau ci-dessous :

		indice			Diamètre moyen (Dm)	Diamètre volumique médian (D03)	Taille Générateur
		réel restitué	réel vrai	imaginaire			
Parallèle	50 % + 50 %	1,429	1,410	$3,13 \cdot 10^{-10}$	1,44	106,07	gros
	Eau	1,324	1,329	$5,31 \cdot 10^{-11}$	2,57	14,43	moyen
	Ethanol	1,454	1,360	$5,74 \cdot 10^{-02}$	0,29	120,55	petit
	DEHS	1,925	1,452	$5,62 \cdot 10^{-08}$	0,24	0,21	petit
	Eau	1,329	1,329	$6,84 \cdot 10^{-11}$	2,50	85,55	gros
	5 % + 95 %	1,364	1,370	$6,84 \cdot 10^{-11}$	1,90	133,18	gros
	Eau	1,861	1,329	$4,79 \cdot 10^{-01}$	0,39	4,17	petit
	50 % + 50 %	1,445	1,410	$1,82 \cdot 10^{-10}$	0,36	0,94	petit
Perpendiculaire	Eau	1,320	1,329	$8,27 \cdot 10^{-11}$	1,65	2,14	petit
	DEHS	1,460	1,450	$3,89 \cdot 10^{-03}$	0,48	1,46	petit
	Eau	1,331	1,329	$7,92 \cdot 10^{-05}$	12,60	72,40	gros
	5 % + 95 %	1,375	1,370	$2,78 \cdot 10^{-05}$	1,58	50,83	gros
	50 % + 50 %	1,438	1,410	$1,64 \cdot 10^{-04}$	15,60	52,85	gros
	Eau	1,316	1,329	$9,09 \cdot 10^{-11}$	2,74	5,75	moyen
	50 % + 50 %	1,395	1,410	$9,86 \cdot 10^{-09}$	0,34	0,86	petit
	Ethanol	1,354	1,360	$8,81 \cdot 10^{-11}$	1,18	2,44	petit
Totale	DEHS	1,455	1,450	$2,16 \cdot 10^{-05}$	0,41	1,68	petit
	50 % + 50 %	1,436	1,410	$1,98 \cdot 10^{-04}$	2,53	77,11	gros
	5 % + 95 %	1,375	1,370	$8,81 \cdot 10^{-11}$	1,83	54,39	gros
	Eau	1,311	1,329	$8,81 \cdot 10^{-11}$	1,57	2,00	petit
	Eau	1,324	1,329	$5,48 \cdot 10^{-11}$	2,88	10,89	moyen
	Ethanol	1,350	1,360	$1,90 \cdot 10^{-09}$	1,51	2,62	petit
	50 % + 50 %	1,460	1,410	$1,76 \cdot 10^{-03}$	0,55	1,45	petit
	Eau	1,329	1,329	$5,31 \cdot 10^{-11}$	33,48	56,41	gros

Tableau 5-1 : Tableau récapitulatif des tests en aveugle de la méthode de restitution. DEHS : Di-Ethyl-Hexyl-Sebaçate est une huile transparente. 50% + 50% correspond à un mélange de 50% DEHS, 50% d'éthanol, 5% + 95%, mélange de 5 % DEHS et 95% d'éthanol.

On peut remarquer que l'inversion des mesures suivant la polarisation parallèle est moins bonne que pour les autres. Dans le cas de la polarisation perpendiculaire, les résultats sont meilleurs. Cette même constatation avait été soulignée à la fin du paragraphe 4.3.3 sur l'étude théorique de la validité de fonctionnement de l'inversion complète. Dans ce cas, à une exception près, la précision sur l'indice réel est de 0,01 soit inférieur à 1 % pour des indices compris entre 1,33 et 1,45. Compte tenu du faible domaine de variation de l'indice réel et de l'incertitude sur ces données réelles inférieure à 5 %, il n'est pas surprenant de trouver avec nos données expérimentales une précision de restitution meilleure que dans le paragraphe 4.3.

Nous connaissons mal le spectre des aérosols mesurés. Nous avons seulement l'information sur le générateur qui a produit cette population de particules. Dans

le tableau 5-1, les termes gros, moyen et petit correspondent respectivement au générateur VOAG TSI 3050, aux expériences réalisées dans la chambre à brouillard de la DDE et au générateur Pallas PLG 2000 (générateur type bubbling ou pétilllement). De plus, il n'y a pas de resserrement de la largeur de recherche des rayons des particules entre les différentes tables durant une inversion.

Le temps de calcul moyen de l'inversion est d'environ 9 GHz.h, soit 4,5 heures sur un microprocesseur de 2 GHz. Ce temps de calcul est seulement le temps servant à l'inversion complète et ne tient pas compte du temps pour calculer les matrices noyaux. Les matrices noyaux sont calculées une seule fois puis stockées sur le disque dur pour être réutilisées après.

5.2 Inversion des données du néphélomètre aéroporté

Suite aux bons résultats de la méthode d'inversion complète obtenus avec des données de laboratoire, des tests ont été effectués avec les données collectées en nuages à l'aide du néphélomètre polaire aéroporté (Gayet et al., 1997). La polarisation n'est pas mesurée. Pour ce néphélomètre, le nombre de classes a été réduit à 12 plutôt que 25, car il a moins de points de mesure.

Trois cas ont été étudiés toujours en aveugle, deux étaient des mesures d'indicatrices de diffusion en nuages d'eau liquide et le troisième était une mesure effectuée dans un contrail. Le FSSP était également monté sur l'avion de recherche, en même temps. Ceci permettra d'effectuer une inter-comparaison entre les résultats de ces deux appareils.

	Néphélomètre aéroporté					FSSP		
	n	χ	C_V	D_m	D_{03}	C_V	D_m	D_{03}
Eau 1	1,329	7.10^{-11}	$5,1.10^{-8}$	8,06	9,99	$4,9.10^{-8}$	11,21	16,71
Eau 2	1,325	6.10^{-11}	$2,2.10^{-8}$	4,87	5,88	$1,8.10^{-8}$	6,61	7,25
Contrail	1,338	6.10^{-11}	$0,05.10^{-8}$	1,80	2,13	$0,1.10^{-8}$	0,63	0,88

Tableau 5-2 : Indice de réfraction et paramètres microphysiques (12 classes de rayon) issus de l'inversion des données du néphélomètre aéroporté et paramètres microphysiques du FSSP.

Le tableau 5-2 présente les résultats de l'inversion des données du néphélomètre aéroporté et les paramètres intégraux du FSSP. On peut remarquer que dans les deux cas correspondant à de l'eau, les paramètres microphysiques

issus de l'inversion correspondent bien avec les données issues du FSSP. Ce bon accord est observé bien que la granulométrie de ces deux cas soit très différente. Dans le cas Eau 1, la comparaison entre les deux distributions volumiques des deux appareils (figure 5-3) montre peu de différences. Les différences peuvent s'expliquer par des classes de diamètres différents entre les deux appareils.

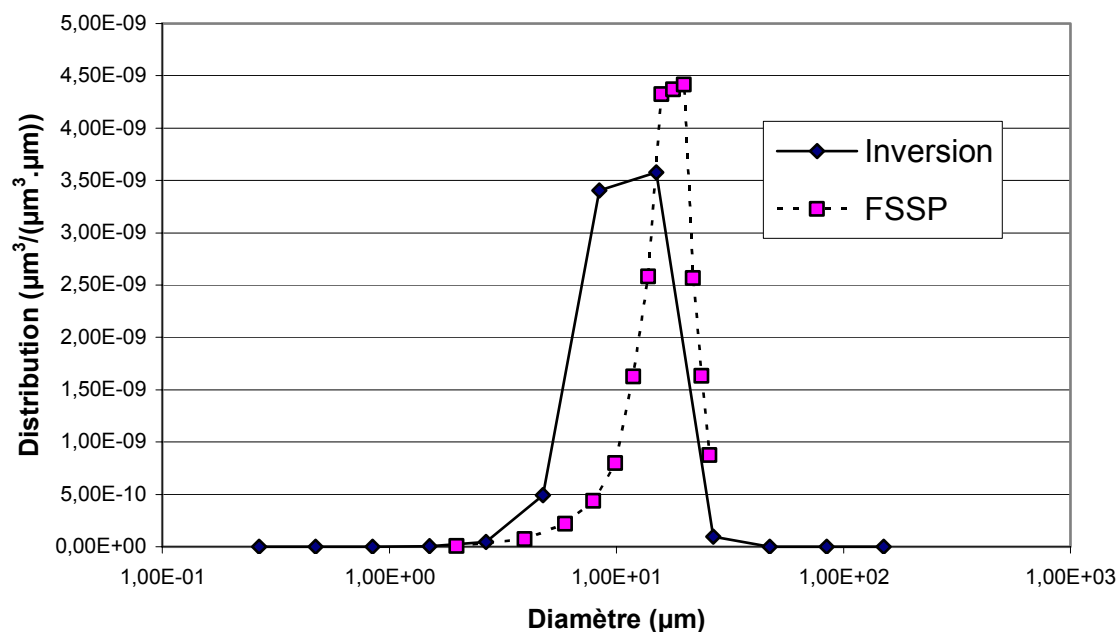


Figure 5-3 : Distributions volumiques en volume issues du FSSP et de l'inversion des données du néphélomètre aéroporté (cas Eau 1)

Pour les indices des deux cas de gouttelettes d'eau liquide, on retrouve bien le bon indice réel. Le minimum pour l'indice réel est bien marqué et unique contrairement à l'indice imaginaire où le minimum n'est pas univoque (figure 5-4). On peut constater aussi que les particules ne sont pas absorbantes, ce qui correspond bien à de l'eau.

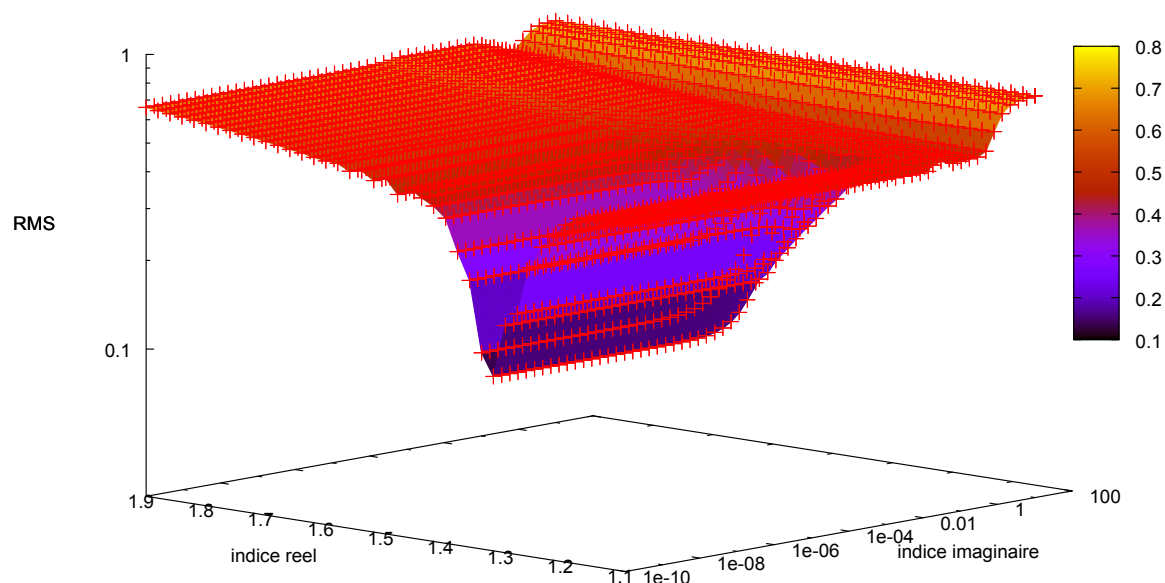


Figure 5-4 : Variations du RMS dans le cas de la restitution pour des gouttes d'eau avec les données du néphélomètre aéroporté (Eau 1).

De ce fait, la section efficace volumique calculée avec les paramètres après inversion est en accord avec les mesures (figure 5-5). La méthode est donc adaptable au néphélomètre aéroporté et permet d'affirmer que dans ces deux cas, les particules nuageuses échantillonnées étaient des gouttes d'eau sphériques.

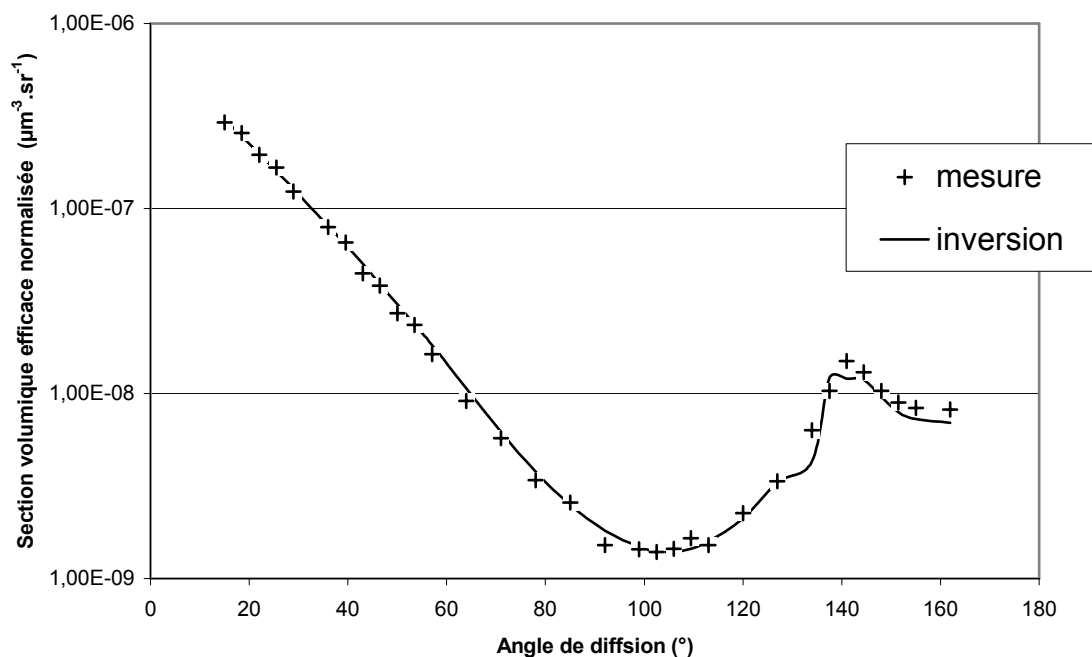


Figure 5-5 : Sections volumiques efficaces normalisées mesurée et calculée avec les paramètres issus de l'inversion de données du néphélomètre aéroporté (cas Eau 1)

Dans le cas « Contrail », on peut remarquer (tableau 5-2) une discordance entre les données microphysiques issues de l'inversion et celles du FSSP. De plus, l'indice de réfraction, en particulier la partie réelle, ne correspond pas à de l'eau. Pourtant, la section volumique efficace calculée avec les paramètres de l'inversion peut paraître semblable à celle qui a été mesurée (figure 5-7). Par conséquent, les paramètres trouvés sont une solution. Néanmoins, cette solution a plus d'incertitude car le minimum est moins marqué (figure 5-6). D'autre part un examen attentif de la figure 5-7 montre que nos points de mesure ne se répartissent pas aléatoirement par rapport à la solution trouvée. Pour les angles inférieurs à 30° , tous les points de mesure sont supérieurs à la solution. Entre 30° et 70° , c'est le contraire. Au-delà de 150° , de grandes différences subsistent.

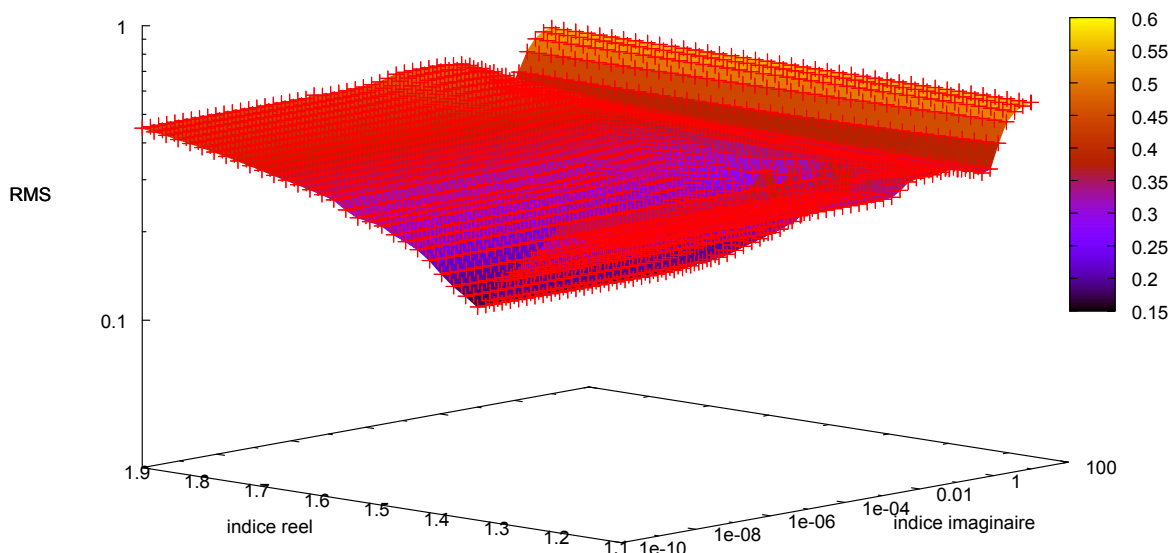


Figure 5-6 : Variations du RMS dans le cas de la restitution pour le cas des mesures de contrail avec le néphélomètre aéroporté.

On peut dire néanmoins que les particules sont de petites tailles et que ce n'est pas de l'eau liquide. Les contrails sont issues des moteurs d'avion. Ceux-ci rejettent principalement de l'eau, du CO_2 et un peu de suie (carbone imbrûlé).

L'eau pourrait être sous forme solide (glace). L'indice de réfraction de la glace est $1,304 + i 1,47 \cdot 10^{-7}$, ce qui ne correspond pas à la valeur trouvée.

La suie a un indice de réfraction de $1,750 + i\,0,43$, ce qui ne correspond pas avec la valeur de l'indice trouvée. Par contre, la taille des particules est petite ce qui serait plus compatible avec la suie.

Une des possibilités serait le mélange eau liquide + suie. En prenant l'hypothèse que le mélange est homogène, un pourcentage de 2,2 % de suie dans l'eau permet d'obtenir un indice de 1,338 ($2,2\% \times 1,75 + 97,8\% \times 1,329$). Par contre, le calcul pour l'indice imaginaire fournirait une valeur de $9,5 \cdot 10^{-3}$. Compte tenu de cette valeur, la méthode d'inversion aurait dû la trouver précisément.

Le mélange homogène suie + eau liquide est une explication possible, mais n'est pas complètement acceptable. Une des possibilités est d'avoir un noyau de suie entouré d'eau mais d'autres solutions pourraient convenir comme la présence de particules non-sphériques ou la présence d'un autre produit.

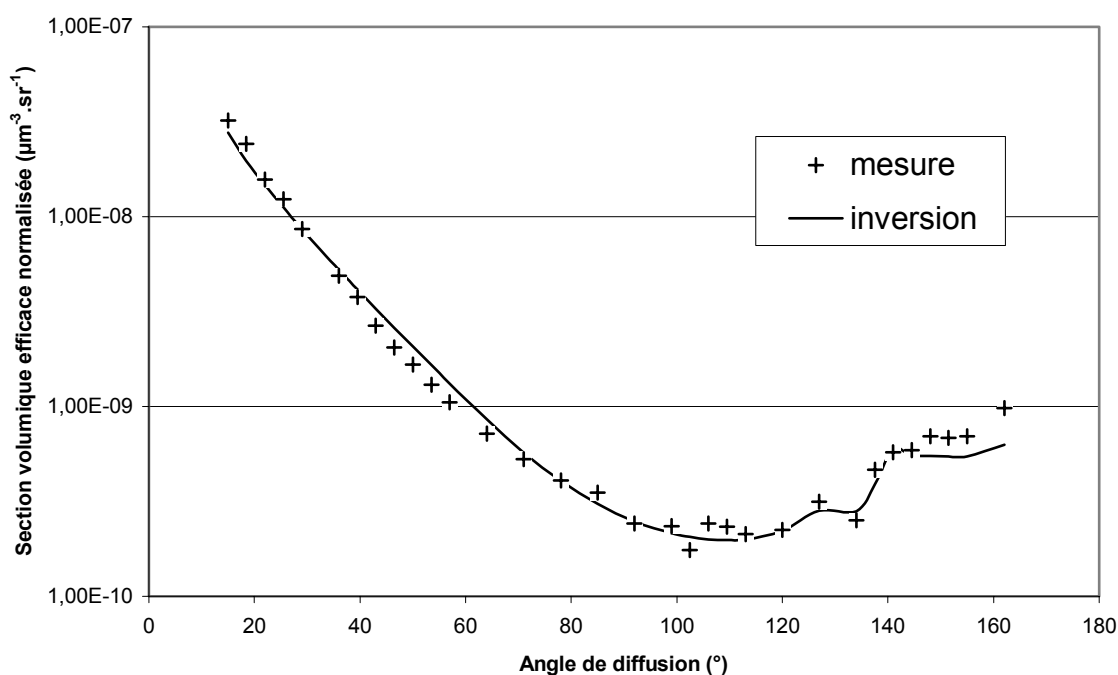


Figure 5-7 : Sections volumiques efficaces normalisées mesurée et calculée avec les paramètres issus de l'inversion de données du néphélomètre aéroporté (cas Contrails)

D'autres travaux utilisant ces différentes hypothèses seraient nécessaires pour apporter des éléments de réponse à l'interprétation de ces mesures.

5.3 Conclusion

Des tests de la méthode d'inversion ont été effectués sur des mesures réelles du D2PN et du néphélomètre aéroporté. Les correspondances et inter-comparaison entre différents appareils de mesures ont permis de s'assurer de l'applicabilité et de la validité de cette méthode avec ces données réelles.

Cette méthode peut par conséquent être utilisée avec d'autres instruments du même type.

Conclusion

La connaissance des propriétés optiques et microphysiques des particules atmosphériques (aérosols, nuages de glace ou de poussières) est nécessaire pour la modélisation du bilan énergétique de la terre, pour l'estimation de la durée de vie des nuages et pour la détection des constituants de l'atmosphère.

Afin de mieux connaître ces propriétés, différents appareils ont été développés. Les néphélomètres polaires sont des instruments adaptés pour la mesure de propriétés optiques, en particulier celle de la diffusion.

Un des ces néphélomètres est le néphélomètre polaire à double polarisation (D2PN). C'est un appareil de laboratoire qui mesure la puissance de la lumière diffusée en fonction de l'angle suivant deux directions de polarisation, l'une parallèle et l'autre perpendiculaire au plan d'observation. Il a été montré que les données expérimentales du D2PN ont une incertitude inférieure à 5%. Grâce à ces mesures, la fonction de phase, le coefficient de diffusion et le degré de polarisation linéaire peuvent être déduits ainsi que des paramètres directement liés tels que le facteur d'asymétrie, le coefficient de diffusion linéique, ...

Pour retrouver d'autres paramètres, il est nécessaire de faire appel à des algorithmes d'inversion. Une étude de sensibilité a été effectuée afin de vérifier la faisabilité de la restitution simultanée de l'indice de réfraction complexe en même temps que la distribution, pour une population de gouttes sphériques. Elle a permis de déterminer le domaine d'application et la précision de la méthode de restitution en fonction de l'indice de réfraction. Elle a également fourni des limitations telle que l'impossibilité de la restitution de l'indice réel lorsque les particules sont très absorbantes avec un indice imaginaire supérieur à 0,5. Une autre limitation est l'incapacité de fournir une valeur précise de l'indice imaginaire pour des particules faiblement absorbantes.

Une méthode de restitution a donc été adaptée aux données du D2PN. C'est une méthode type « look-up table » associée avec une méthode d'inversion pour calculer le spectre dimensionnel. Elle est donc capable de retrouver l'indice de réfraction complexe et la distribution en taille d'une population de particules

sphériques. Cette méthode peut travailler sur une large gamme de valeurs d'indices de réfraction et de diamètres de particules.

Des tests effectués avec des mesures du D2PN ont permis d'assurer la validité de cette méthode avec ce type de données. La meilleure précision est obtenue en utilisant la lumière diffusée qui est polarisée dans le plan perpendiculaire au plan d'observation.

Une telle méthode peut être appliquée sur d'autres instruments du type néphélomètre polaire tel que le néphélomètre polaire aéroporté (Gayet et al., 1997).

Les propriétés de polarisation en diffusion latérale et arrière sont très sensibles aux caractères non sphériques ainsi qu'à la rugosité de surface des particules. C'est ainsi que les diffusions mesurées avec le D2PN pour des populations de suie, de pollen, de sable ou de particules sphériques sont très différentes. Il devient alors intéressant d'étudier la faisabilité de restituer un paramètre de forme des particules. Ce paramètre peut être le facteur de forme (aspect ratio) des ellipsoïdes, la rugosité de surface de particules sphériques ou autres.

Il est prioritaire de s'occuper des particules les plus présentes dans l'atmosphère qui sont les poussières minérales et les sels de mer. Pour cela, une campagne de mesures internationale a déjà été faite en 2008 avec le D2PN à Karlsruhe (Allemagne) afin d'étudier plusieurs types de sable. La présence de nombreux appareils différents devrait permettre de disposer d'un ensemble complet de données nécessaires à l'interprétation de l'effet radiatif des sables.

Bibliographie

Abhyankar K.D., Fymat A.L., 1969, Relation between the elements of the phase matrix for scattering, *J. Mat. Phys.*, **10**, 1935-1938

Ackerman, A.S., et al., 2000 : Effects of aerosols on cloud albedo : evaluation of Twomey's parametrization of cloud susceptibility using measurements of ship tracks. *J. Atmos. Sci.*, **57**, 2684-2695

AFNOR (Association Française de Normalisation), 1999 : Guide pour l'expression de l'incertitude de mesure, *AFNOR, Paris*

Albrecht, B. A., 1989, Aerosols, cloud microphysics and fractional cloudiness, *Science*, **245**, 1227-1230

D'Almedia G. A., Koepke P., Shettle E. P., 1991, Atmospheric aerosols. Global climatology and radiative characteristics, *Hampton Virginia, A. Deepak publishing*

André, J. M., 2000, Etude expérimentale de l'indicatrice de diffusion des particules non-sphériques. *Thèse de l'Université Blaise Pascal*, Clermont-Ferrand, France

Andreae M.O. et P. J. Crutzen, 1997, Atmospheric aerosols :biogeochemical sources and role in atmospheric chemistry, *Science*, **276**, 1052-1058

Barber P. W., S. C. Hill, 1990, Light Scattering by Particles: Computational Methods, *World Scientific Publishing*

Barkey B., M. Bailey, K. N. Liou, J. Hallett, 2002, Light-scattering properties of plate and column ice crystals generated in a laboratory cold chamber, *Applied Optics*, **41**, No. 27, 5792-5796

Barkey B., S.E. Suzanne, A. Chung, 2007, Genetic Algorithm Inversion of Dual Polarization Polar Nephelometer Data to Determine Aerosol Refractive Index, *Aerosol Science and Technology*, **41**, 751-760

Bodhaine BA, NC Ahlquist, and RC Schnell, 1991, Three-Wavelength Nephelometer Suitable for Aircraft Measurement of Background Aerosol Scattering Coefficient, *Atmos. Env.*, **25A**, 2267-2276

Bohren C. F., D. R. Huffman, 1983, Absorption and scattering of light by small particles. 3rd ed., *Wiley-Interscience*

Chahine M. T., 1968, Determination of temperature profile in an atmosphere from its outgoing radiance, *JOSA*, **12**, 1634-1637

Chazette P, Randriamiarisoa H, Sanak J, Couvert P, Flamant C., 2005, Optical properties of urban aerosol from airborne and ground-based in situ measurements performed during the Etude et Simulation de la Qualité de l'air en Ile de France (ESQUIF) program. *J. Geophys. Res.*, **110**:D02206

Covert D. S., R. J. Charlson, N. C. Ahlquist, 1972, A study of relationship of chemical composition and humidity to the light scattering by aerosols, *J. Applied Meteor.*, **11**, 968-976

Daugeron, D., 2001, Réalisation d'un néphélomètre polaire de laboratoire pour l'étude des propriétés radiatives de la lumière diffusée par les aérosols, *Mémoire d'ingénieur CNAM*, Centre régional associé de Saint-Etienne, France

Daugeron, D., 2006, Granulométrie par analyse de la lumière diffusée : application à la caractérisation d'aérosol. *Thèse de l'Université Jean Monnet*, Saint-Etienne, France

Delmas R., G. Mégie, V.-H. Peuch, 2005, Physique et chimie de l'atmosphère, *Belin*

Dubovik O, Sinyuk A, Lapyonok T, Holben BN, Mishchenko M, Yang P, Eck TF, Volten H, Muñoz O, Veihelmann B, van der Zande WJ, Leon J-F, Sorokin M, Slutsker I., 2006, Application of spheroid models to account for aerosol particle nonsphericity in remote sensing of desert dust. *J. Geophys. Res.*, **111**:D11208

Dubovik O, Smirnov A, Holben BN, King MD, Kaufman YJ, Eck TF, Slutsker I., 2000, Accuracy assessments of aerosol optical properties retrieved from AERONET sun and sky radiance measurements. *J. Geophys. Res.*, **105**:D8:9791-9806

Dubovik O. V., Lapyonok T. V., Oshchepkov S. L., 1995, Improved technique for data inversion: optical sizing of multicomponent aerosols, *Applied Optics*, **34**, 8422-8436

Dubovik O., 2004, Optimization of Numerical Inversion in Photopolarimetric Remote Sensing. In: Videen G, Yatskiv Y, Mishchenko M, editors. *Photopolarimetry in Remote Sensing. Dordrecht, Netherlands: Kluwer Academic Publishers*, p. 65-106

Eadie W, Drijard D, James F, Roos M, Sadoulet B., 1971, Statistical methods in experimental physics. *Amsterdam: North-Holland*

Gayet J.-F., Crepel O., Fournol J.-F., Oshchepkov S., 1997, A new airborne polar nephelometer for the measurement of optical and microphysical cloud properties, Part I, *Ann. Geophys.*, **15**, 451-459

Gayet J.-F., F. Auriol, S.L. Oshchepkov, F. Schröder, C. Duroure, G. Febvre, J. F. Fournol, O. Crépel, P. Personne et D. Daugeron, 1998, In situ optical and microphysical measurements with a new airborne « Polar Nephelometer », *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 971-9

Grey WMF, North PRJ, Los SO., 2006, Computationally efficient method for retrieving aerosol optical depth from ATSR-2 and AATSR data. *Appl. Opt.*; **45**:12:2786-2795

Haywood, J.M., and O. Boucher, 2000: Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: A review. *Rev. Geophys.*, **38**, 513-543

Hinds, W. C., 1998, Aerosols technology: properties, behaviour, and measurement of airborne particles, A *Willey-Interscience publication*

Hovenier J.W., H. Volten, O. Muñoz, W.J. van der Zande, L.B.F.M Waters, 2003, Laboratory studies of scattering matrices for randomly oriented particles: potentials, problems, and perspectives, *JQSRT*, **79-80**, pp. 741-755

Hovenier JW., 2000, Measuring scattering matrices of small particles at optical wavelengths. In: Mishchenko MI, Hovenier JW, Travis LD, editors. *Light scattering by nonspherical particles*. San Diego: Academic Press, 2000. p. 355-365

Husar R. B., W. H. White, D. L. Blumenthal, 1976, Direct evidence of heterogeneous aerosol formation in Los Angeles Smog, *Environ. Sci. Technol.*, **10**, 490-491.

IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change) Fourth Assessment Report, 2007, WG I. Climate Change 2007 : The Physical Science Basis *Cambridge University Press*

IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change) Third Assessment Report, 2001, WG I. Climate Change 2001 : The Scientific Basis (J. T. Houghton et al. Eds) *Cambridge University Press*

Karnert M, T. Nousiainen, 2007, Variational data-analysis method for combining laboratory-measured light-scattering phase functions and forward-scattering computations, *JQSRT*, **103**, pp. 27-42.

Lenoble J., 1993, Atmospheric radiative transfer, A. *Deepak Publishing*, Hampton, Virginie, Etats-Unis

Li Z, Goloub P, Blarel L, Damiri B, Podvin T, Jankowiak I., 2007, Dust optical properties retrieved from ground-based polarimetric measurements. *Appl. Opt.*, **46**:1548-1553

Ligon DA, Gillespie JB, Chen TW, 1996, Determination of aerosol parameters from light scattering data using an inverse Monte Carlo technique. *Appl. Opt.* ; **35**:21:4297-4303

Liou, K.N., 2002, An introduction to atmospheric radiation, deuxième édition, coll. "international geophysics series", vol. 84, *Academic Press*.

Mie G., 1908, Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen, *Ann. Phys. (Leipzig)*, Vol. **25**, 377-455

Mishchenko, M. I., J. W. Hovenier and L. D. Travis, 2000, Light Scattering by Nonspherical Particles : Theory, Measurements, and Applications, *Academic Press*

Mishchenko, M. I., L. D. Travis, et D.W. Mackowski, 1996, T-matrix computations of light scattering by nonspherical particles: A review, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfert*, **55**, 535-575

Nakaya U., T. Terada, 1935, Simultaneous observation of the mass, falling velocity and form of individual snow crystals, *J. Fac. Soc. Hokkaido Imp. Univ., Ser. II*, **1**, 191-201

Philips B. L., 1962, A technique for numerical solution of certain integral equation of the first kind, *J. Assoc. Comp. Mach.*, **9**, 84-97

Pincus, R., and M. Baker, 1994, Precipitation, solar absorption, and albedo susceptibility in marine boundary layer clouds, *Nature*, **372**, 250-252

Press WH, Flannery BP, Teukolsky SA, Vetterling WT., 1992, Numerical Recipes in C: The Art of Scientific Computing. *Cambridge: U. Press*

Renoux A., D. Boulaud, 1998, Les aérosols : Physique et Métrologie, *Lavoisier TEC&DOC*

Rodgers CD, 2000, Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice. Series on *Atmospheric Oceanic and Planetary Physics*, vol. **2**. Singapore: World Scientific

Schnaiter, M. O. Schmid, A. Petzold, L. Fritzsche, K. F. Klein, M. O. Andreae, G. Helas, A. Thielmann, M. Gimmler, O. Möhler, C. Linke, U. Schurath, 2005, Measurement of Wavelength-Resolved Light Absorption by Aerosols Utilizing a UV-VIS Extinction Cell, *Aerosol Science and Technology*, **39**, 249-260

Shen, J., X. Cai, 2005, Algorithm of numerical calculation on Lorentz Mie theory, *Progress in Electromagnetics Research Symposium 2005*

Silvester, P.P., et R.L. Ferrari, 1996, Finite Elements for Electrical Engineers, *Cambridge Univ. Press*, New York

Tarantola A., 2005, Inverse Problem Theory and Methods for Model Parameter Estimation. *SIAM*

Twomey S., 1963, On the numerical solution of Fredholm integral equations of the first kind by inversion of the linear system produced by quadrature, *J. Assoc. Comp. Mach.*, **10**, 97-101

Twomey, S., 1974, Pollution and the planetary albedo, *Atmos. Environ.*, **8**, 1251-1256

Twomey S., 1975, Comparaison of constrained linear inverse and an iterative non linear algorithm applied to the indirect estimation of particle size distribution, *J. Comp. Phys.*, **18**, 188-200

Twomey S., 1977, Introduction to Mathematics of Inversion in Remote Sensing and Indirect Measurements. *Dover Publications Inc.*

Van de Hulst H. V., 1957, Light scattering by small particles, *J. Wiley & Sons*, New York, (reprinted in 1981 by Dover Pub., Inc., Mineola, New York).

Verhaege C., P. Personne, D. Daugeron, 2007, Qualification du néphélomètre polaire à double polarisation pour la mesure des propriétés optiques des aérosols, *Atelier Expérimentation et Instrumentation INSU/Météo-France/IFREMER*, Villeurbanne 5-6 avril 2007

Verhaege C., V. Shcherbakov, P. Personne, 2008, Limitations on retrieval of complex refractive index of spherical particles from scattering measurements, *JQSRT*, doi:10.1016/j.jqsrt.2008.05.009

Verhaege, Ch., P. Personne, and V. Shcherbakov, 2007, Assessment of Refractive Index and Microphysical Parameters of Spherical Aerosols from Data of Dual-Polarization Polar Nephelometer. In *Nucleation and Atmospheric Aerosols: 17th International Conference, Galway, Ireland, 2007* (13-17 Aug 2007). C.D. O'Down and P. Wagner (Eds.), Springer, pp. 746 - 749

Veselovskii I, Korenskii M, Griaznov V, Whiteman DN, McGill M, Roy G, Bissonnette L., 2006, Information content of data measured with a multiple-field-of-view lidar. *Appl. Opt.*, **45**:26:6839-6848

Yang, P., et K. N. Liou, 1998, An efficient algorithm for truncating spatial domain in modeling light scattering by finite-difference technique, *J. Comput. Phys.*, **140**, 346-369

Zasetsky AY, Sloan JJ., 2005, Monte Carlo approach to identification of the composition of stratospheric aerosols from infrared solar occultation measurements. *Appl. Opt.*, **44**:22:4785-4790

Zege, E. P., A. P. Ivanov, I. L. Katsev, 1991, Image Transfer Through a Scattering Medium, *Springer-Verlag*

Annexe A : Petit rappel historique sur la théorie de Mie

Biographie

Gustav Mie est un physicien allemand né le 29 septembre 1868 à Rostock et décédé le 13 février 1957 à Freiburg-im-Breisgau. Son nom complet est Gustav Adolf Feodor Wilhelm Ludwig Mie.



Photo de Gustav Mie

Mie s'inscrit en 1886 à l'université de Rostock où il étudie les mathématiques et la physique. Il choisit aussi comme matières optionnelles la chimie, la zoologie, la géologie, la minéralogie, l'astronomie ainsi que la logique et la métaphysique.

Il continue en 1889 à l'université de Heidelberg où il achève ses études de mathématiques à l'âge de 22 ans.

En 1897, il s'inscrit à l'université de Göttingen sur la liste d'aptitude aux fonctions de professeur des universités en physique théorique et est appelé en 1902 à exercer ces fonctions à l'université de Greifswald en tant que Extraordinarius (enseignant) en physique théorique. En 1917 il est nommé Ordinariat pour la physique expérimentale à l'université de Halle.

En 1924, il est nommé directeur de l'institut de physique à l'université de Freiburg-im-Breisgau, où il exerce jusqu'à sa retraite en 1935.

Pendant son séjour à Greifswald, il publie dans les annales de physique en 1908, sa méthode de calcul de la diffusion de la lumière par des particules sphériques homogènes sous le nom « Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen » (Contributions à l'optique des milieux troubles, en particulier les suspensions colloïdales métalliques). La théorie de Mie, qui porte bien évidemment son nom, est aussi appelée théorie de Lorenz-Mie. Cette théorie permet de décrire l'interaction de la lumière avec une particule sphérique. Elle est fondée sur la théorie électromagnétique et les équations de Maxwell. Elle donne une solution rigoureuse au problème de la diffusion d'une onde plane monochromatique sur une sphère métallique. Cette théorie continue à avoir un grand intérêt dans différents domaines scientifiques tels que l'astrophysique, la caractérisation optique des particules, ...

Gustav Mie a contribué non seulement au développement de la physique dans le domaine de l'électromagnétisme mais aussi au principe et à la théorie de la relativité. Son dévouement pour les normes lui permet de développer en 1910 son propre système d'unité de mesure Mies-System. À Freiburg-im-Breisgau sous le régime nazis, Mie était membre de l'opposition universitaire appelé "Freiburger Kreise" et sympathisant du "Freiburger Konzils".

En son honneur, un cratère de la planète Mars porte son nom.

Petite chronologie

1868 : Naissance de Gustav Mie

1871 : Lord Rayleigh (John William Strutt) publie une explication de la couleur du ciel en la reliant à la diffusion de la lumière par les molécules d'air.

1873 : James Clerk Maxwell publie sous sa forme définitive ses célèbres équations de Maxwell qui relient magnétisme, électricité en une même série d'équations.

1905 : Albert Einstein publie la Relativité Restreinte.

1908 : Gustav Mie publie la théorie de Mie

1915 : Publication de la Relativité Générale par Einstein

1922-28 : Sir Chandrashekhara Venkata Râman découvre et explique la diffusion Raman

1950 : Subrahmanyan Chandrasekhar, neveu de Raman, publie son livre *Radiative Transfert* dans lequel figurent les relations entre les différents éléments de la matrice de diffusion

1957 : Mort de Gustav Mie

Informations trouvées sur Internet et principalement sur Wikipédia.

Annexe B : Facteur de conversion tension - $k^2\varphi$

La puissance reçue par le capteur :

$$P(\theta) = I_0 \cdot \mathcal{V}_{ech} \cdot \varphi(\theta) \cdot \Omega \quad (B.1)$$

avec P : la puissance reçue (W)

I_0 : intensité incidente (W/m^2)

$\mathcal{V}_{ech}$: volume d'échantillonnage (m^3)

φ : section efficace volumique ($m^2/(m^3 \cdot sr)$)

Ω : angle solide du capteur (sr)

θ : angle de diffusion

L'intensité incidente dépend de la puissance du laser et de sa surface :

$$I_0 = \frac{P_L}{\frac{\pi D_L^2}{4}} \quad (B.2)$$

Le volume d'échantillonnage est l'intersection de 2 cylindres perpendiculaires de même diamètre. Ce diamètre est celui du faisceau laser.

$$\mathcal{V}_{ech} = \frac{2}{3} D_L^3 \quad (B.3)$$

L'angle solide de vue du capteur est exprimé de la façon suivante :

$$\Omega = \frac{\frac{\pi d_{capt}^2}{4}}{L_{bras}^2} \quad (B.4)$$

La puissance reçue par le capteur est transformée en tension via l'électronique du capteur. Cette électronique a une sensibilité G.

$$P(\theta) = \frac{T(\theta)}{G} \quad (B.5)$$

La première formule devient :

$$\frac{T(\theta)}{G} = \frac{P_L}{\pi D_L^2} \frac{2}{3} D_L^3 \cdot \varphi(\theta) \frac{\pi d_{capt}^2}{L_{bras}^2} \quad (B.6)$$

Après quelques simplifications, on arrive à l'expression :

$$\varphi(\theta) = \frac{3 L_{bras}^2}{2 G D_L d_{capt}^2 P_L} T(\theta) \quad (B.7)$$

Pour la section efficace volumique,

$$k^2 \varphi(\theta) = \left(\frac{2\pi}{\lambda} \right)^2 \frac{3 L_{bras}^2}{2 G D_L d_{capt}^2 P_L} T(\theta) \quad (B.8)$$

Avec T = tension du capteur

$L_{bras} = 0,15$ m (longueur du bras) dans le cas où le dispositif est sans lentille (0,14 m si la lentille est installée)

$d_{capt} = 0,0005$ m (diamètre du capteur) ou 0,0022 m avec la lentille

$G = 10^6$ V/W (sensibilité ou réponse en tension du capteur)

$D_L = 0,01$ m (diamètre du faisceau laser)

$\lambda = 0,8$ μm (longueur d'onde du laser)

$P_L = 1$ W (puissance du laser)

Annexe C : Tableaux d'incertitude de la méthode d'inversion

Estimation de l'incertitude de restitution de la méthode d'inversion sur les mesures de diffusion suivant la mesure de diffusion totale du D2PN avec un bruit de mesure de 10% (angle de mesure de 19° à 160°). Les paramètres restitués sont n l'indice réel, χ l'indice imaginaire, C_v concentration en volume, D_m diamètre moyen, $D03$ diamètre volumique médian.

χ	Δn	$\Delta\chi/\chi$	$\Delta C_v/C_v$	$\Delta D_m/D_m$	$\Delta D03/D03$
10^{-0}	0,4474	925%	91%	82%	86%
10^{-2}	0,0300	85%	66%	72%	139%
10^{-3}	0,0416	61%	58%	53%	290%
10^{-4}	0,0102	154%	38%	43%	143%
10^{-8}	0,0311	8311985%	59%	31%	192%

Les tableaux suivants correspondent au détail, en fonction de l'indice réel n pour chaque cas d'étude de l'indice imaginaire.

Pour un indice imaginaire χ de 1 :

n	Δn	$\Delta\chi/\chi$	$\Delta C_v/C_v$	$\Delta D_m/D_m$	$\Delta D03/D03$
1,3	0,3338	873%	91%	87%	109%
1,4	0,3788	1038%	89%	84%	73%
1,5	0,4081	822%	87%	78%	96%
1,6	0,4782	875%	92%	79%	74%
1,7	0,5921	1000%	95%	85%	71%

Pour un indice imaginaire χ de 10^{-2} :

n	Δn	$\Delta\chi/\chi$	$\Delta C_v/C_v$	$\Delta D_m/D_m$	$\Delta D03/D03$
1,3	0,0056	78%	86%	86%	268%
1,4	0,0099	66%	65%	82%	140%
1,5	0,0297	40%	54%	63%	30%
1,6	0,0454	132%	58%	56%	49%
1,7	0,0379	81%	64%	68%	51%

Pour un indice imaginaire χ de 10^{-3} :

n	Δn	$\Delta\chi/\chi$	$\Delta C_v/C_v$	$\Delta D_m/D_m$	$\Delta D03/D03$
1,3	0,0032	51%	45%	58%	326%
1,4	0,0017	44%	56%	65%	124%
1,5	0,0054	54%	43%	49%	348%
1,6	0,0133	86%	86%	29%	262%
1,7	0,0919	61%	51%	54%	331%

Pour un indice imaginaire χ de 10^{-4} :

n	Δn	$\Delta\chi/\chi$	$\Delta C_v/C_v$	$\Delta D_m/D_m$	$\Delta D_{03}/D_{03}$
1,3	0,0024	94%	23%	17%	71%
1,4	0,0019	115%	35%	35%	125%
1,5	0,0040	125%	33%	58%	150%
1,6	0,0070	179%	56%	38%	212%
1,7	0,0209	215%	32%	52%	107%

Pour un indice imaginaire χ de 10^{-8} :

n	Δn	$\Delta\chi/\chi$	$\Delta C_v/C_v$	$\Delta D_m/D_m$	$\Delta D_{03}/D_{03}$
1,3	0,0017	95%	17%	37%	27%
1,4	0,0013	494581%	17%	27%	35%
1,5	0,0021	1543305%	28%	19%	50%
1,6	0,0092	5531219%	89%	24%	322%
1,7	0,0688	17669882%	92%	43%	274%

Estimation de l'incertitude de restitution de la méthode d'inversion sur les mesures de diffusion suivant la polarisation perpendiculaire du D2PN avec un bruit de mesure de 10% (angle de mesure de 19° à 169°). Les paramètres restitués sont n l'indice réel, χ l'indice imaginaire, C_v concentration en volume, D_m diamètre moyen, D03 diamètre volumique médian.

χ	Δn	$\Delta\chi/\chi$	$\Delta C_v/C_v$	$\Delta D_m/D_m$	$\Delta D_{03}/D_{03}$
10^{-0}	0,3348	100%	101%	95%	570%
10^{-2}	0,0303	64%	66%	75%	380%
10^{-3}	0,0107	54%	41%	54%	150%
10^{-4}	0,0047	133%	39%	32%	256%
10^{-8}	0,0063	856082%	30%	33%	106%

Les tableaux suivants correspondent au détail, en fonction de l'indice réel n pour chaque cas d'étude de l'indice imaginaire.

Pour un indice imaginaire χ de 1 :

n	Δn	$\Delta\chi/\chi$	$\Delta C_v/C_v$	$\Delta D_m/D_m$	$\Delta D_{03}/D_{03}$
1,3	0,1274	98%	59%	95%	641%
1,4	0,2193	97%	66%	95%	590%
1,5	0,3088	98%	132%	95%	480%
1,6	0,4038	110%	153%	95%	589%
1,7	0,4875	98%	50%	95%	538%

Pour un indice imaginaire χ de 10^{-2} :

n	Δn	$\Delta\chi/\chi$	$\Delta C_v/C_v$	$\Delta D_m/D_m$	$\Delta D_{03}/D_{03}$
1,3	0,0041	28%	45%	64%	121%
1,4	0,0063	79%	80%	85%	289%
1,5	0,0156	50%	66%	54%	357%
1,6	0,0410	59%	49%	74%	360%
1,7	0,0512	85%	81%	90%	607%

Pour un indice imaginaire χ de 10^{-3} :

n	Δn	$\Delta\chi/\chi$	$\Delta C_v/C_v$	$\Delta D_m/D_m$	$\Delta D_{03}/D_{03}$
1,3	0,0016	27%	68%	45%	216%
1,4	0,0014	23%	38%	27%	115%
1,5	0,0022	39%	26%	53%	135%
1,6	0,0049	72%	26%	66%	65%
1,7	0,0232	80%	32%	69%	176%

Pour un indice imaginaire χ de 10^{-4} :

n	Δn	$\Delta\chi/\chi$	$\Delta C_v/C_v$	$\Delta D_m/D_m$	$\Delta D_{03}/D_{03}$
1,3	0,0024	118%	13%	14%	16%
1,4	0,0010	137%	10%	29%	11%
1,5	0,0021	83%	21%	42%	144%
1,6	0,0034	84%	35%	20%	239%
1,7	0,0094	205%	76%	45%	498%

Pour un indice imaginaire χ de 10^{-8} :

n	Δn	$\Delta\chi/\chi$	$\Delta C_v/C_v$	$\Delta D_m/D_m$	$\Delta D_{03}/D_{03}$
1,3	0,0022	473641%	14%	33%	30%
1,4	0,0013	698528%	35%	28%	128%
1,5	0,0013	488936%	12%	25%	27%
1,6	0,0024	1162617%	17%	42%	24%
1,7	0,0137	1166776%	50%	34%	194%

Estimation de l'incertitude de restitution de la méthode d'inversion sur les mesures de diffusion suivant la polarisation parallèle du D2PN avec un bruit de mesure de 10% (angle de mesure de 10° à 160°). Les paramètres restitués sont n l'indice réel, χ l'indice imaginaire, C_v concentration en volume, D_m diamètre moyen, D_{03} diamètre volumique médian.

χ	Δn	$\Delta\chi/\chi$	$\Delta C_v/C_v$	$\Delta D_m/D_m$	$\Delta D_{03}/D_{03}$
10^{-0}	0,4192	62%	266%	81%	224%
10^{-2}	0,0325	39%	57%	58%	165%
10^{-3}	0,0086	54%	46%	40%	179%
10^{-4}	0,0047	341%	199%	39%	192%
10^{-8}	0,0118	2562259%	64%	34%	154%

Les tableaux suivants correspondent au détail, en fonction de l'indice réel n pour chaque cas d'étude de l'indice imaginaire.

Pour un indice imaginaire χ de 1 :

n	Δn	$\Delta\chi/\chi$	$\Delta C_V/C_V$	$\Delta D_m/D_m$	$\Delta D_{03}/D_{03}$
1,3	0,5774	92%	417%	73%	330%
1,4	0,4947	87%	388%	85%	317%
1,5	0,4031	53%	158%	92%	172%
1,6	0,3066	8%	38%	83%	69%
1,7	0,2098	5%	42%	71%	82%

Pour un indice imaginaire χ de 10^{-2} :

n	Δn	$\Delta\chi/\chi$	$\Delta C_V/C_V$	$\Delta D_m/D_m$	$\Delta D_{03}/D_{03}$
1,3	0,0053	33%	46%	73%	59%
1,4	0,0053	19%	50%	53%	101%
1,5	0,0087	9%	71%	36%	235%
1,6	0,0113	21%	53%	49%	253%
1,7	0,0708	75%	61%	72%	51%

Pour un indice imaginaire χ de 10^{-3} :

n	Δn	$\Delta\chi/\chi$	$\Delta C_V/C_V$	$\Delta D_m/D_m$	$\Delta D_{03}/D_{03}$
1,3	0,0044	60%	36%	60%	141%
1,4	0,0035	42%	14%	33%	32%
1,5	0,0058	42%	12%	44%	22%
1,6	0,0072	74%	82%	26%	351%
1,7	0,0160	47%	48%	29%	121%

Pour un indice imaginaire χ de 10^{-4} :

n	Δn	$\Delta\chi/\chi$	$\Delta C_V/C_V$	$\Delta D_m/D_m$	$\Delta D_{03}/D_{03}$
1,3	0,0024	506%	460%	51%	370%
1,4	0,0020	299%	13%	24%	25%
1,5	0,0039	212%	37%	37%	195%
1,6	0,0041	298%	29%	43%	70%
1,7	0,0082	344%	41%	36%	113%

Pour un indice imaginaire χ de 10^{-8} :

n	Δn	$\Delta\chi/\chi$	$\Delta C_V/C_V$	$\Delta D_m/D_m$	$\Delta D_{03}/D_{03}$
1,3	0,0024	1133692%	30%	28%	115%
1,4	0,0031	1474933%	16%	21%	33%
1,5	0,0028	1597024%	28%	34%	105%
1,6	0,0045	4273914%	54%	31%	135%
1,7	0,0255	2923756%	124%	48%	273%

Annexe D : Article publié au JQSRT

Les pages suivantes sont la reproduction de l'article sur l'étude de la sensibilité des données du D2PN à la granulométrie et à l'indice de réfraction complexe. Cet article a été publié au Journal of Quantitive Spectroscopy and Radiative Transfert dans le numéro 109 de septembre 2008.



Contents lists available at ScienceDirect

Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer

journal homepage: www.elsevier.com/locate/jqsrt

Limitations on retrieval of complex refractive index of spherical particles from scattering measurements

Christophe Verhaege^{a,b,*}, Valery Shcherbakov^{a,b}, Pascal Personne^{a,b}^a Laboratoire de Météorologie Physique, UMR/CNRS 6016, Université Blaise Pascal, 24 Avenue des Landais, 63177 Aubière Cedex, France^b LaMP-IUT de Montluçon, Avenue A. Briand-BP 2235, 03101 Montluçon Cedex, France

ARTICLE INFO

Article history:

Received 21 March 2008

Received in revised form

22 May 2008

Accepted 23 May 2008

Keywords:

Light scattering

Complex refractive index

Size distribution

ABSTRACT

On the base of a lookup table approach we performed sensitivity tests of dual-polarization polar nephelometer (D2PN) data to optical and microphysical parameters of ensembles of spherical particles. Measurement errors were modeled as Gaussian random variables. It is shown that D2PN data enable to retrieve some microphysical parameters (depending on the case) along with the assessment of the complex refractive index. In the case of the low absorbing particles, measurement errors substantially reduce the sensitivity to the imaginary part of the refractive index and only the range of the imaginary part can be estimated, whereas the real part of the refractive index and the microphysical parameters can be retrieved. When the absorption of spherical particles is moderate, i.e., $10^{-4} \leq \chi \leq 0.5$, the real n and imaginary χ parts of the refractive index can be deduced along with the microphysical parameters. In the case when the absorption of spherical particles is high, only the microphysical characteristics and the imaginary part can be retrieved. These limitations on retrieval should be valid for data of other instruments measuring the same magnitudes as D2PN with the same errors, at least for aerosols made of spherical particles.

© 2008 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

The knowledge of microphysical and optical characteristics of aerosols is of importance for modeling the radiative balance of Earth's atmosphere, understanding the cloud life cycle, and remote sensing of tropospheric aerosols. Aerosols have been identified as a major uncertainty in predicting the global energy budget [16, Section 2.4] because of major gaps in our knowledge of the composition and optical properties of these particles and their direct and indirect effects. Aerosol microphysical characteristics (parameters of the size distribution and the concentration of the aerosols sample, composition, refractive index) vary widely among various aerosol types (e.g., dust, biomass smoke, urban pollution, sea salt) and geographical regions. For example, soot particles have the refractive indices range from 1.25 [11,13] to 2.67 [11] in the real part (n) and up to 1.34 in the imaginary part (χ) [3,11,13,25].

Nowadays, it is generally recognized that the aerosol complex index of refraction can be retrieved along with the size distribution from scattering measurements. Most of the methods are based on the Lorenz–Mie theory (see, e.g., [2]), that is, aerosols are modeled as spherical particles. For example, Tanaka et al. [26] used the lookup table method to retrieve the

* Corresponding author at: LaMP-IUT de Montluçon, Avenue A. Briand-BP 2235, 03101 Montluçon Cedex, France. Tel.: +33 4 70 02 20 73; fax: +33 4 70 02 20 94.

E-mail addresses: verhaege@moniut.univ-bpclermont.fr (C. Verhaege), shcherbakov@moniut.univ-bpclermont.fr (V. Shcherbakov), personne@moniut.univ-bpclermont.fr (P. Personne).

refractive index and size distribution on the base of the measured parallel and perpendicular components of scattered light. Zhao et al. [32] and Zhao [33] used an inversion of measured Stokes parameters to determine the properties of ensembles of particles. Jones et al. [17] inverted the absolute intensity measurements of a 15 channels polar nephelometer to retrieve both the real part of the refractive index and the size distribution. Barkey et al. [1] used genetic algorithms to find out the real part of refractive index on the base of nephelometer measurements.

Due to the progress in modeling of optical properties of single particles with diverse geometrical shapes, spheroid models come into play to account for aerosol particle non-sphericity. For example, the Version 2 AERONET (Aerosol RObotic NETwork) retrieval [9] provides a number of aerosol parameters (i.e., size distribution, complex refractive index and partition of spherical/non-spherical particles). Nevertheless, homogeneous spherical particles remain the dominant model for aerosol inverse problems. Consequently, it is of importance to know limitations on retrieval of complex refractive index and size distribution of spherical particles from scattering measurements.

It is well known that the ensemble of parameters, which can be retrieved, and the accuracy of inversion are governed by the set of the measured magnitudes and by the measurement errors. Thus, there is no way to determine the limitations on retrievals that would be valid for any kind of scattering or remote sensing measurements. The evaluation of the retrieval accuracy and of limitations should be performed for each instrument intended for use. On the other hand, limitations appropriate to nephelometers may be regarded as some bounds for other instruments retrieving the same parameters and measuring the same magnitudes with comparable errors, for a similar spectral range.

The long-term objective of the dual-polarization polar nephelometer (D2PN) designed at Laboratoire de Météorologie Physique (LaMP) is to develop a database of optical and microphysical characteristics of aerosols and to test inverse codes against it. The aim of this paper is to present results of sensitivity tests of the D2PN data to the parameters to be retrieved, and to describe the limitations on retrievals that are appropriate to the D2PN. The experimental setup of the D2PN is outlined first in Section 2. Thereafter in Section 3, our approach of sensitivity analysis is described. Section 4 is devoted to the main results.

2. Laboratory dual-polarization polar nephelometer

The D2PN developed at the LaMP is presented in Fig. 1. The sampling volume (0.67 cm^3) is formed by the perpendicular intersection of the laser beam and the particles flux of the same diameter (10 mm). The light source is a high-power (1.0 W) multimode laser diode operating at the wavelength $\lambda = 800 \text{ nm}$. The laser light passes through a depolarizer with the result that the sampling volume is illuminated by the unpolarized light (the degree of polarization is less than 1%). Measurements are performed with two identical sensors that are mounted on the rotating arm of 15 cm length and synchronously turned about the sampling volume. The polarizers are placed in front of the sensors so that the polarized components parallel $I_{\parallel}$ and perpendicular $I_{\perp}$ to the scattering plane are measured. The sensors are adjusted to assure that the intersections of their angular apertures with the sampling volume are the same and do not vary when the sensors are turned about. The angle, formed by the two sensors and the center of the sampling volume, is of 9° whatever the arm position is. During the rotation of the arm, measurements are carried out with the step of 1° . The setup is well protected by a suitable cover against light

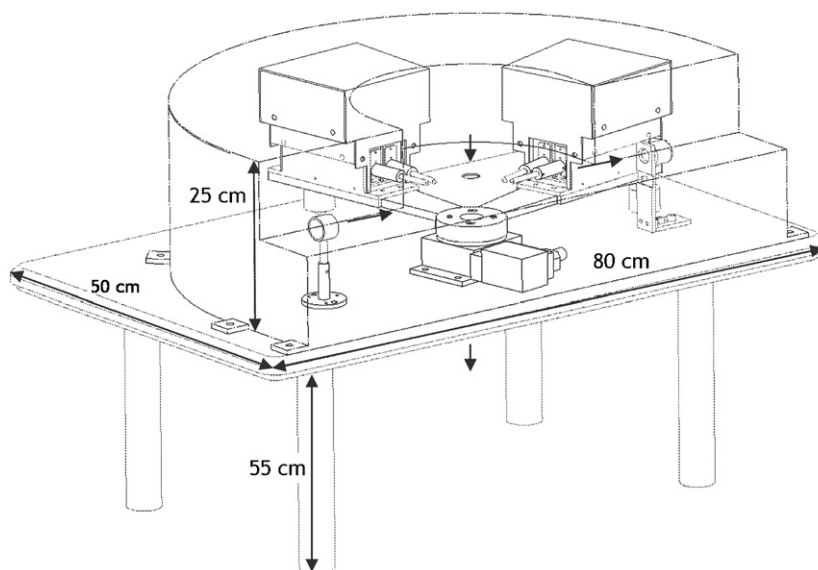


Fig. 1. Sketch of the laboratory polar nephelometer. Two positions of the rotating set are drawn. Large arrow is laser beam and small arrow is particles flux.

coming from outside. In order to avoid undesirable reflections, the laser beam is dumped by a light trap on the far side of the D2PN, and the inside of the cover is coated with a material that absorbs light coming from the setup.

The measured data are quasi-continuous functions of the scattering angle θ , i.e., the angle between the incidence and scattering directions (see, e.g., [21, Section 2.8]). Thus, two quantities $I_{\parallel}(\theta)$ and $I_{\perp}(\theta)$ can be obtained as function of θ . The parallel polarized component $I_{\parallel}(\theta)$ is measured by the first detector for the scattering angles ranging from 10° to 160° ; and the perpendicular polarized component $I_{\perp}(\theta)$ is measured by the second detector from 19° to 169° . The measured light power can range from 10 pW up to $3 \mu\text{W}$. The accuracy of the measurements is estimated to be better than 5% when the single scattering conditions are assured and the concentration of particles is sufficiently high.

The polarized components $I_{\parallel}$ ($\text{m}^{-1} \text{sr}^{-1}$) and $I_{\perp}$ ($\text{m}^{-1} \text{sr}^{-1}$) are derived using the following equation:

$$I_{\parallel,\perp} = \frac{U_{\parallel,\perp} S}{k P \Omega_d v}, \quad (1)$$

where $U_{\parallel,\perp}$ (V) are the amplified output voltages of the sensors; $S = \pi d^2/4$ (m^2) is the area of the laser beam section; $d = 0.01$ (m) is the diameter of the laser beam or of the particles flux; $k = 10^6$ (V/W) is the sensitivity of each sensors; $P = 1.0$ (W) is the power of the laser; $\Omega_d = 8.73 \times 10^{-6}$ (sr) is the solid angle that corresponds to the sensitive area of each detector; $v = 2d^3/3$ (m^3) is the sampling volume. The system constants, grouped together, lead to

$$I_{\parallel,\perp} = q U_{\parallel,\perp}, \quad (2)$$

where $q = 13.5$ ($\text{V}^{-1} \text{m}^{-1} \text{sr}^{-1}$).

It is seen from Eq. (1) that the recorded by the detectors powers $P_{\parallel,\perp} = U_{\parallel,\perp}/k$ are normalized by the values of the laser power P and of the solid angle Ω_d . Thus, the quantities $I_{\parallel}(\theta)$ and $I_{\perp}(\theta)$ are proportional to intensities (see, e.g., [15, p. 1]), but are not real ones. Taking into consideration that the sampling volume is illuminated by the unpolarized light and the polarizers are placed in front of the sensors, the components $I_{\parallel}$ and $I_{\perp}$ can be expressed as follows:

$$I_{\parallel}(\theta) = \frac{C_{sc}}{8\pi} [F_{11}(\theta) + F_{12}(\theta)], \quad I_{\perp}(\theta) = \frac{C_{sc}}{8\pi} [F_{11}(\theta) - F_{12}(\theta)], \quad (3)$$

where C_{sc} (m^{-1}) is the scattering coefficient, $F_{11}(\theta)$ and $F_{12}(\theta)$ (sr^{-1}) are the elements of the scattering matrix (see, e.g., [21,29, Section 4.2]). The element $F_{11}(\theta)$ is called the scattering phase function and satisfies the following normalization condition:

$$\frac{1}{4\pi} \int_{4\pi} F_{11}(\theta) d\Omega = \frac{1}{2} \int_0^\pi F_{11}(\theta) \sin(\theta) d\theta = 1. \quad (4)$$

The values of the unnormalized phase function can be deduced from the D2PN data by means of the formula

$$I(\theta) = I_{\parallel}(\theta) + I_{\perp}(\theta) = \frac{C_{sc}}{4\pi} F_{11}(\theta). \quad (5)$$

The parameter $P(\theta) = -F_{12}(\theta)/F_{11}(\theta)$ is called the degree of linear polarization for incident unpolarized light (see, e.g., [14]) and can be computed as follows:

$$P(\theta) = \frac{I_{\perp}(\theta) - I_{\parallel}(\theta)}{I_{\perp}(\theta) + I_{\parallel}(\theta)}. \quad (6)$$

As it is seen from Eqs. (3)–(6), the D2PN is a device to measure intensity and linear polarization of light scattered by a sample of particles. The measured data can be employed for particle characterization due to potentially strong dependence of the scattering properties of spherical particles on their size parameter and refractive index (see, e.g., [21, Section 9.7]). The components $I_{\parallel}$ and $I_{\perp}$ are proportional to the scattering coefficient C_{sc} . When the single scattering conditions are assured, the coefficient C_{sc} is proportional to the concentration of particles C_v , and this enables C_v to be retrieved along with other microphysical characteristics.

3. Sensitivity analysis approach

There are a number of methods to estimate the accuracy of retrievals (see, e.g., [23,27 Section 3.3, 28 Section 8.5]) when an inverse problem is to solve. The comprehensive analysis of those methods is out of the scope of the present work. Here we will focus on those approaches that are commonly employed.

First of all, it should be pointed out that one deals with a non-linear inverse problem when the value of the complex refractive index $m = n + i\chi$ is to be retrieved along with the size distribution of aerosols. This is because scattering characteristics are non-linear functions of n and χ . Therefore, the formalism and the methods of the linear inverse problems theory can be applied only within a sufficiently small interval around an assigned value of m . Consequently, the analysis has to be performed on a grid of m_i . The specified grid should overlap the range of possible values of the aerosol refractive index and its steps have to be small enough to assure the validity of the linear approximation. In addition, much care should be given to the generalization of the obtained results.

The term “information content” is widely used in indirect sensing measurements after Twomey [28, Section 8.5]. When a Fredholm integral equation of the first kind is to solve, e.g., a value of the aerosol refractive index is given and the size

distribution is to be retrieved from scattering measurements, in a loose sense, the matter concerns the “number of independent pieces of information” taken to be the number of eigenvalues of a kernel-determined matrix, which are greater than some assigned noise level. Such an approach allows optimization of the set of measured parameters in terms of their linear independence (see, e.g., [30]). It is reasonable that according to that criterion the D2PN data appeared to be highly redundant with respect to the size distribution of homogeneous spheres. Nevertheless, the set of measured characteristic has not been reduced because there is no way to estimate the redundancy when the complex refractive index is to be retrieved.

Another method to outline the level of information content consists in a thorough analysis of the retrieval accuracy. If the set of measured data is not sufficiently informative, the accuracy of the inversions may not be good even if the accuracy of measurements is very high. The advantage of such an approach is that it can be applied to non-linear inverse problems. On the other hand, it is time consuming because the analysis has to be really comprehensive in order to consider all possible sources of errors (see, e.g., [6]). Moreover, results of the analysis depend on the method (or algorithm) and *a priori* constraints employed to retrieve aerosol parameters. In other words, high level of errors in retrieval of a parameter does not necessarily mean that the measured data are not sensitive to that parameter. That is why the main conclusions of the analysis of the retrieval accuracy should be confirmed by other means.

Due to the rapid progress in computer technology, i.e., largely amplified calculation speed and storage capacity, Monte Carlo-based (see, e.g., [20,27 Section 2.4,31]) and lookup table (see, e.g., [12]) methods are coming into increasing use to solve inverse problems. Those methods are time consuming. In return, there is no need for linearity of an inverse problem. In addition, the data of direct modeling, which are necessary for retrievals, can be used to carry out sensitivity analysis. Recall that the measured characteristics have to be sensitive enough to variations of the parameters of interest. Otherwise the retrieved values are only a direct consequence of used *a priori* constraints. Thus, sensitivity tests are indispensable when the inverse code is adapted to a new experimental setup. In the present work, the following lookup table approach was employed.

In our investigations, we used a software package that is based on the Lorenz–Mie theory [2]. The employed Mie code enables stable and accurate calculations of the scattering matrix for homogeneous spheres having the size parameter $\rho = 2\pi r/\lambda$ up to 2×10^3 in the large range values of the complex refractive index. The scattering characteristics can be computed for any size distribution.

For the rigorous sensitivity tests, the particle volume size distribution was modeled by the lognormal distribution

$$\frac{dV(r)}{d \ln r} = \frac{C_V}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp \left[-\frac{(\ln r - \ln r_V)^2}{2\sigma^2} \right], \quad (7)$$

where r_V is the median radius, σ is the standard deviation, and C_V is the concentration. The quantities r_V , σ and C_V are the microphysical characteristics (parameters) that were mentioned above. The lognormal distribution was chosen because it is often used to fit aerosol experimental data with three modes (nucleation, accumulation, and coarse) (see, e.g., [4]). We note in passing that the selection of the gamma distribution (see, e.g., [18]) does not affect the conclusions of the present work. Special attention was paid to the sensitivity of the data of the D2PN to simultaneous variations of the complex refractive index and microphysical parameters. Thus, the input parameters a_j ($j = 1, \dots, 5$) of the lookup table were: the real n and imaginary χ parts of the refractive index, r_V , σ , and C_V . As it was pointed out in Section 2, the measured components $I_{\parallel}$ and $I_{\perp}$ are proportional to the concentration of particles C_V . Due to that feature, the concentration can be estimated without difficulty with the exception of strong absorbing particles (see Section 4). That is why in the following, we will discuss mainly the results that concern the retrievals of the refractive index, r_V , and σ , that is, the parameters that have non-linear relationship with $I_{\parallel}$ and $I_{\perp}$.

The grid of the input parameters a_j ($j = 1, \dots, 5$) was assigned to overlap for sure the range of possible values of aerosol (see, e.g., [7]) and warm clouds (see, e.g., [18]) characteristics, that is, the median radius r_V was varied from 0.25 to 25.0 μm and the standard deviation σ was assigned from 0.3 to 1.0. The tests were performed for the real part of the refractive index from 1.1 to 1.9 and the imaginary part from 10^{-10} to 10^{-1} . The ranges of the n and χ overlap for sure the values that are appropriate for most of aerosols, as it can be seen in the Table 1 taken from [5]. The steps of the grid were small enough to assure good accuracy of the first derivatives $\partial\varphi_i/\partial a_j$, where $\varphi_i(n, \chi, r_V, \sigma, C_V)$ ($i = 1, \dots, N$) are grid-scattering parameters, which correspond to the set of the quantities that are measured by the D2PN. The dependence of $\varphi_i(n, \chi, r_V, \sigma, C_V)$ on the scattering angle θ is taken into account by the subscripts i .

Table 1

Compilation of complex refractive index $m = n + i\chi$ of various aerosols types at the wavelength 0.8 μm

	Dust-like	Soot	Oceanic	Sulfate	Mineral	Water
n	1.520	1.750	1.374	1.426	1.530	1.329
χ	8.0×10^{-3}	0.430	6.01×10^{-5}	1.70×10^{-7}	1.20×10^{-3}	1.25×10^{-7}

Extract from [5].

In the following, the sensitivity of the D2PN data is analyzed in terms of root mean-squared (RMS) relative errors

$$\text{RMS} = \frac{1}{N} \sqrt{\sum_{i=1}^N \frac{[\varphi_i(n, \chi, r_V, \sigma, C_V) - \varphi_{i,\text{meas}}]^2}{\varphi_{i,\text{meas}}^2}}, \quad (8)$$

where $\varphi_{i,\text{meas}}$ models D2PN measurements, hereafter called the synthetic data (or measurements), $\varphi_i(n, \chi, r_V, \sigma, C_V)$ corresponds to the data taken from the lookup table. The relative errors are used because the components $I_{\parallel}(\theta)$ and $I_{\perp}(\theta)$ vary by several orders of magnitude as functions of the scattering angle θ .

In order to evaluate the effect of measurement errors, the two types of the synthetic data $\varphi_{i,\text{meas}}$ were considered. The first one corresponds to the “error-free” conditions, i.e., $\varphi_{i,\text{meas}} = \varphi_{i,\text{comp}}$, where $\varphi_{i,\text{comp}}$ were computed with the Mie code for assigned values of the input parameters a_j . The second type of the synthetic data considers measurements errors, which were modeled as follows:

$$\varphi_{i,\text{meas}} = (1 + e_i)\varphi_{i,\text{comp}}, \quad (9)$$

where e_i is a Gaussian random variable (see, e.g., [22, Section 7]) with zero mean and the standard deviation ε .

As it was mentioned in Section 2, the accuracy of the measurements of the D2PN is estimated to be better than 5% when the single scattering conditions are assured and the concentration of particles is sufficiently high. In the case of low concentration, the accuracy is worse and it is estimated to be of 10%. In such a case, the D2PN data are usually averaged over 20 realizations in order to reduce the effect of random errors. In other words, 20 measurements are performed at each angle in order to have an average and a standard deviation for each point. In our simulations, we modeled this case when the measurements errors were considered. In more detail, we used value of 0.1 for the standard deviation ε . The RMS values were averaged over 20 realizations. For each realization, the Gaussian random noise was added to the noiseless data $\varphi_{i,\text{comp}}$ (Eq. (9)), and the RMS value was computed according Eq. (8).

4. Results of the sensitivity analysis

The sensitivity tests were performed for four following cases of the measured data: (i) the perpendicular $I_{\perp}(\theta)$ and (ii) the parallel $I_{\parallel}(\theta)$ components taken individually, (iii) the unnormalized phase function $I(\theta) = I_{\perp}(\theta) + I_{\parallel}(\theta)$, and (iv) the components $I_{\perp}$ and $I_{\parallel}$ taken together. Recall that the D2PN measurements are carried out with the step of 1° for the scattering angles ranging from 10° to 160° for $I_{\parallel}(\theta)$ and from 19° to 169° for $I_{\perp}(\theta)$, that is, the perpendicular and parallel components are recorded at 151 values of θ . Consequently, the unnormalized phase function $I(\theta)$ and the degree of linear polarization $P(\theta)$ are deduced for $N = 142$ values of θ in the scattering angles range from 19° to 160° . As it was mentioned above, the D2PN data appeared to be highly redundant with respect to the size distribution of homogeneous spheres. That is why it is reasonable that we obtained the very close results for all four cases. Therefore, only plots for the unnormalized phase function $I(\theta)$ are presented below.

The parameters of the size distribution of aerosol particles are considered to be unknown in the process of retrieval of the refractive index. That is, the sensitivity analysis was performed within 5D space of the input parameters $a_j(j = 1, \dots, 5)$ of the lookup table. The results are shown in Figs. 2–9 as a 3D plot, i.e., as the projection of our results onto 2D space of input parameters. When an inverse problem is non-linear, the advantage of the sensitivity analysis approach, performed in terms of the RMS errors along with 3D representation, is that all minima can be seen and analyzed at the one time. This is especially convenient when graphics software enables image rotation. All secondary minima can be disclosed. It should be

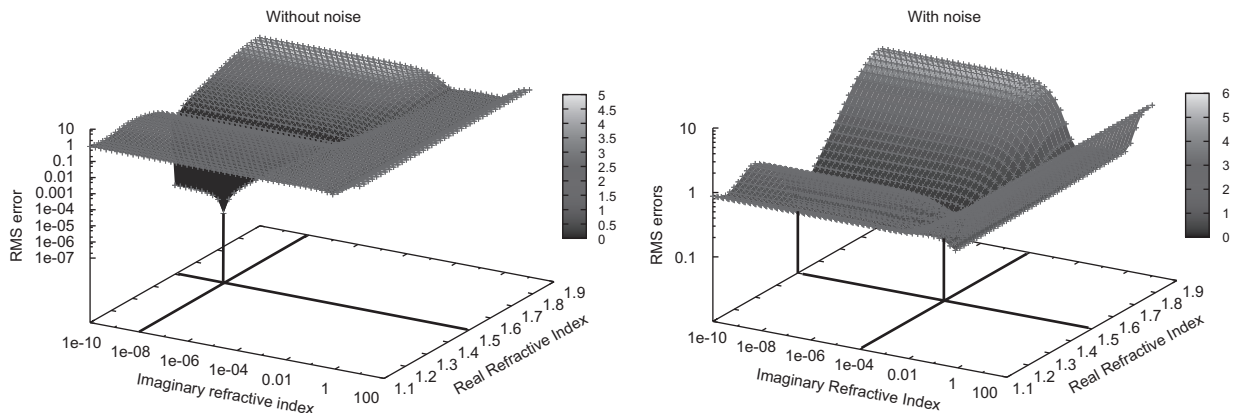


Fig. 2. 3D surface plot of RMS errors vs the imaginary and the real parts of the refractive index. Left panel is the test without measurement errors, right panel is the test with measurement errors $\varepsilon = 0.1$. The case of low absorbing particles $m = 1.5 + 10^{-8}i$, $C_V = 10^{-6}$, $r_V = 0.5 \mu\text{m}$, $\sigma = 0.5$, $19^\circ \leq \theta \leq 160^\circ$.

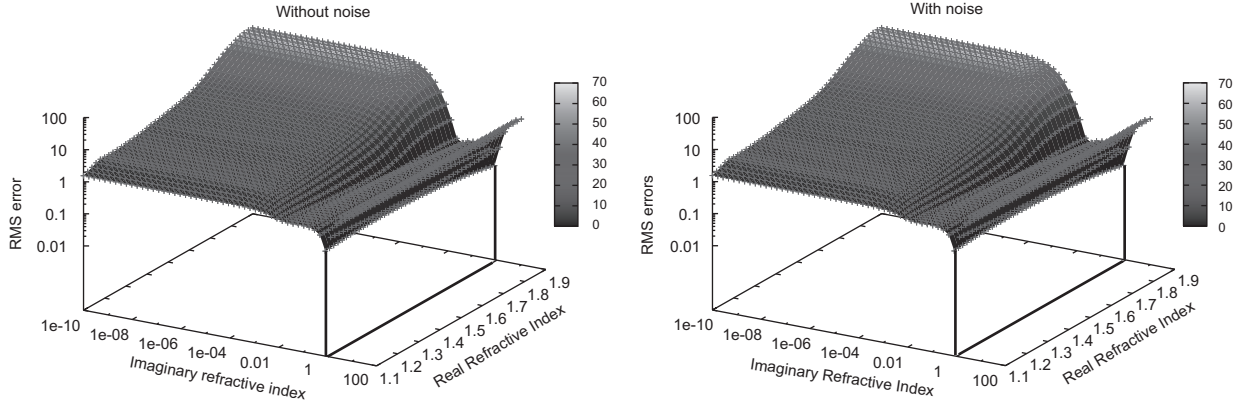


Fig. 3. Same as Fig. 2, but for the case of high absorbing particles $m = 1.5 + i$, $C_V = 10^{-6}$, $r_V = 0.5 \mu\text{m}$, $\sigma = 0.5$, $19^\circ \leq \theta \leq 160^\circ$.

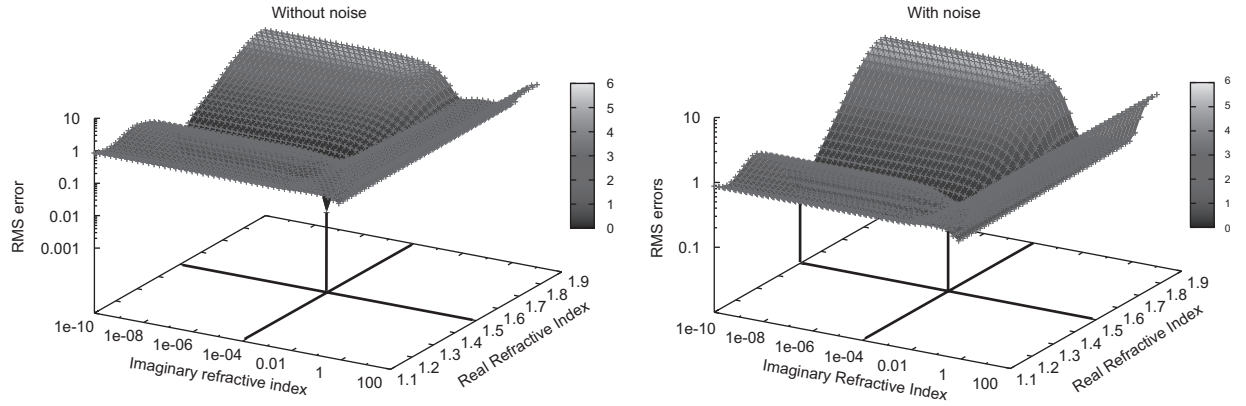


Fig. 4. Same as Fig. 2, but for the case of particles with $m = 1.5 + 10^{-4}i$, $C_V = 10^{-6}$, $r_V = 0.5 \mu\text{m}$, $\sigma = 0.5$, $19^\circ \leq \theta \leq 160^\circ$.

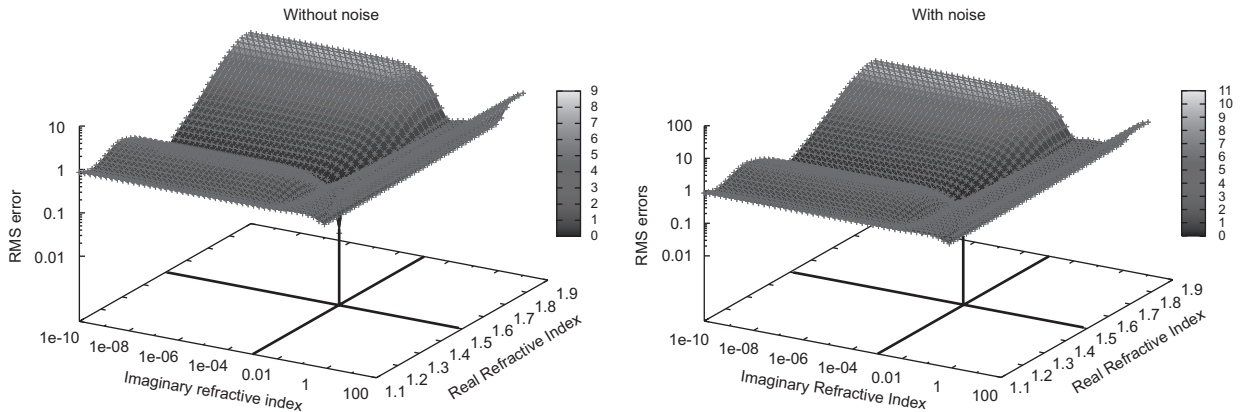


Fig. 5. Same as Fig. 2, but for the case of particles with $m = 1.5 + 10^{-3}i$, $C_V = 10^{-6}$, $r_V = 0.5 \mu\text{m}$, $\sigma = 0.5$, $19^\circ \leq \theta \leq 160^\circ$.

pointed out that 3D plots are used for the sensitivity analysis. As for inversion of the D2PN experimental data, an automated code based on the method of Dubovik et al. (see, e.g., [8]) is employed.

For Figs. 2–7, the X-axis represents the imaginary part χ of the refractive index, the Y-axis is for the real part n , and the Z-axis corresponds to the computed values of RMS. The X- and Z-axes are plotted in the log scale. On each figure, the left panel corresponds to the case of the error-free data, i.e., $\varepsilon = 0$, and the right panel is for $\varepsilon = 0.1$.

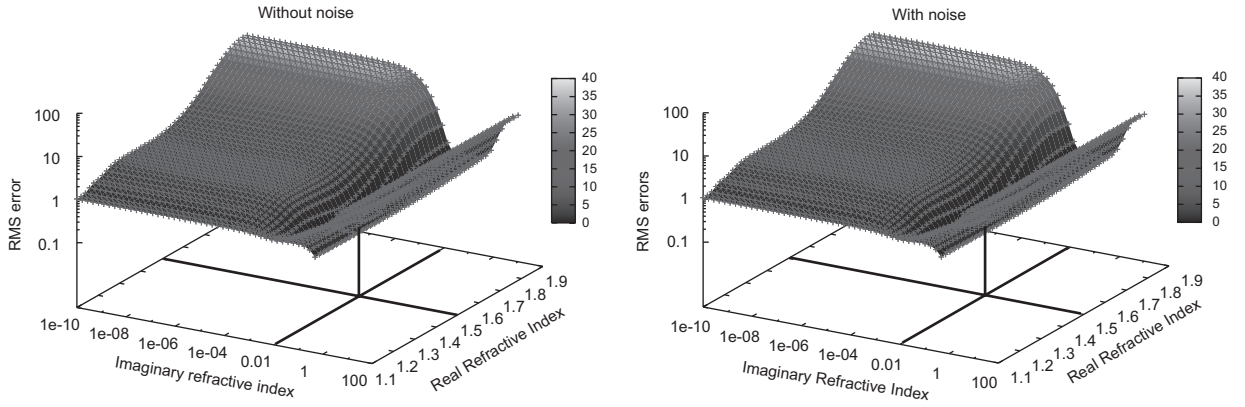


Fig. 6. Same as Fig. 2, but for the case of particles with $m = 1.5 + 10^{-2}i$, $C_V = 10^{-6}$, $r_V = 0.5 \mu\text{m}$, $\sigma = 0.5$, $19^\circ \leq \theta \leq 160^\circ$.

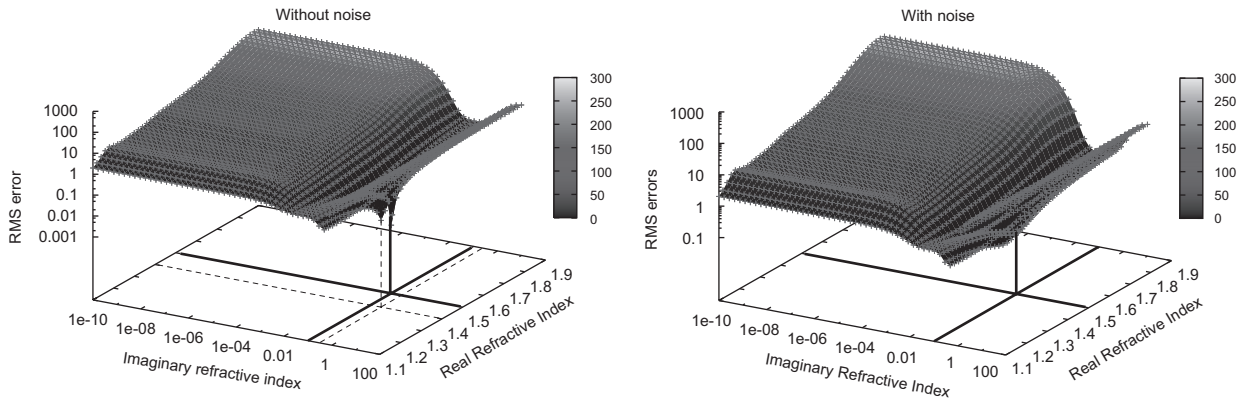


Fig. 7. Same as Fig. 2, but for the case of particles with $m = 1.5 + 10^{-1}i$, $C_V = 10^{-6}$, $r_V = 0.5 \mu\text{m}$, $\sigma = 0.5$, $19^\circ \leq \theta \leq 160^\circ$.

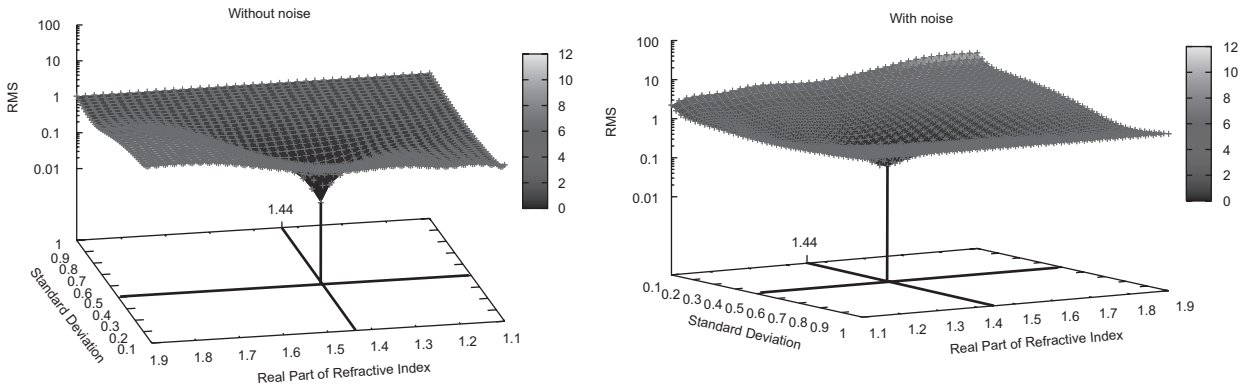


Fig. 8. 3D surface plot of RMS errors vs the standard deviation σ and the real parts of the refractive index. Left panel is the test without measurement errors, right panel is the test with measurement errors $\varepsilon = 0.1$. $m = 1.44 + 5 \times 10^{-3}i$, $C_V = 10^{-6}$, $r_V = 1.5 \mu\text{m}$, $\sigma = 0.5$, $19^\circ \leq \theta \leq 160^\circ$.

Fig. 2 shows the results obtained for the case of low absorbing particles. The synthetic measurements were computed for the refractive index value $m_{\text{meas}} = 1.5 + 10^{-8}i$, and the parameters of the size distribution $r_V = 0.5 \mu\text{m}$, $\sigma = 0.5$ and $C_V = 10^{-6}$. The RMS values are plotted as 3D surface, which depends on the values of the real and imaginary parts of the variable refractive index m . The sharp minimum is exactly at $m = 1.5 + 10^{-8}i$ on the left panel of Fig. 2. (In this figure and the subsequent ones, the point with RMS = 0 is not shown on the left panels, i.e. the error-free cases, because RMS values are plotted in the log scale.) The minimum is at the same value of the refractive index and the same values of r_V and σ

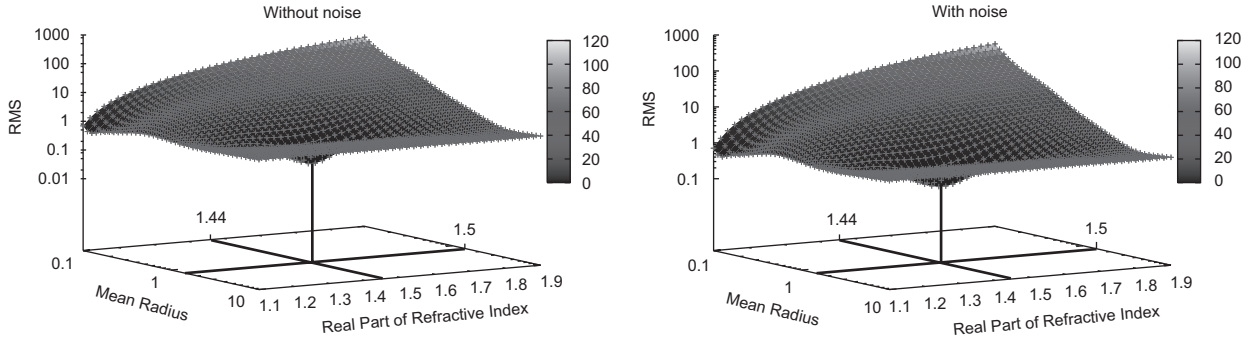


Fig. 9. 3D surface plot of RMS errors vs the radius r_V and the real parts of the refractive index. Left panel is the test without measurement errors, right panel is the test with measurement errors $\varepsilon = 0.1$. $m = 1.44 + 5 \times 10^{-3}i$, $C_V = 10^{-6}$, $r_V = 1.5 \mu\text{m}$, $\sigma = 0.5$, $19^\circ \leq \theta \leq 160^\circ$.

(not shown) that was used to compute the synthetic data. In the error-free conditions, the data of the D2PN are very sensitive to the refractive index values. Measurement errors substantially affect the sensitivity, especially, to the imaginary part of the refractive index. As it is seen on the right panel of Fig. 2, there is no sharp minimum. There is the flat valley. Only the range of the imaginary part can be estimated, i.e., $\chi \leq 10^{-4}$. On the other hand, at each value of $\chi \leq 10^{-4}$, the minimum of RMS is at $n = 1.5$, which corresponds to the synthetic measurements. Consequently, the data of the D2PN remain sensitive to values of the real part of m . In other words, when the imaginary part of the refractive index is low and the errors of measurements are of 10%, the D2PN data enable to deduce the value of the real part n and the range of the imaginary part $\chi \leq 10^{-4}$. The same conclusions were reached for other values of r_V and σ , as well as under the assumption that the measurement errors are of 5%, i.e., $\varepsilon = 0.05$.

Fig. 3 corresponds to the case when the absorption of particles is high, i.e., the imaginary part the refractive index is of the order of 1. Other parameters are the same. The value $\chi = 1.0$ was used to compute the synthetic data. For the both cases, i.e., the noiseless and noisy data, it is seen the minimum of RMS for the imaginary part of the refractive index at $\chi = 1.0$. The lowest value of RMS for the real part is at the edge of the domain of study (see Fig. 3, left panel). Thus, the data of the D2PN are not sensitive to the real part of the refractive index when the absorption is very high, that is, the value of n cannot be estimated. To the contrary, measurement errors do not change the ability to retrieve the imaginary part of the refractive index, which can be deduced with good accuracy.

The two results above can be explained as follows. In the D2PN range of scattering angles, the phase functions of non-absorbing particles strongly depend on the real part of the refractive index [2]. The increase of the imaginary part up to 10^{-4} , affects a little the phase functions. In the case of the noisy data, the errors mask the variations of the phase function that are due to the increase of χ (up to 10^{-4}). At the same time, the transformations of the phase functions caused by variations of the real part overlap the effect of measurement errors. In the D2PN range of scattering angles, for strong absorbing particles, i.e., χ is of the order of 1, the phase functions almost do not depend on the real part n of the refractive index [2]. The phase functions are very flat due to high value of the imaginary part χ . Thus, the measurement errors certainly mask the effect of the real part. At the same time, the phase functions are sensitive to variations of χ .

Cases with the moderate absorption, i.e., the values of the imaginary part $10^{-4} \leq \chi \leq 0.5$, were studied as well. The results of our tests are shown for $m_{\text{meas}} = 1.5 + 10^{-4}i$, $1.5 + 10^{-3}i$, $1.5 + 10^{-2}i$ and $1.5 + 10^{-1}i$ in Figs. 4, 5, 6 and 7, respectively. The presentations of the plots are the same as in Figs. 2 and 3. As it seen for the both error-free and noisy cases, the minima of the RMS values correspond to the values of the refractive index that were used for the synthetic measurements. Thus, the real and imaginary parts of the refractive index can be retrieved on the base of the D2PN data when the absorption of particles is intermediate. This is due to the fact that the variations of the phase functions of such kind of particles ($10^{-4} \leq \chi \leq 0.5$) are quite high when n and χ vary [2]. Consequently, for the cases with $10^{-4} \leq \chi \leq 0.5$, the real and imaginary parts of the refractive index can be estimated with quite good accuracy. It should be pointed out that it is exactly the same range for which Dubovik and colleagues developed their inverse code for polydisperse spheres and/or randomly oriented oblate and prolate spheroids [8,9].

Fig. 7 can be viewed as a representative example testifying the non-linearity of the inverse problem under consideration. On the left panel, there are two sharp minima at $m = 1.5 + 10^{-1}i$ and $1.4 + 0.5i$. Two smooth minima are seen on the right panel at the same values of the refractive index. Rigorous analysis of 3D plots on Figs. 2–5 revealed a valley at χ about 1.0. Consequently, when an iterative algorithm (see, e.g., [8] and citations therein) is used to retrieve the refractive index special attention should be given to starting vector values in order to escape the secondary minimum.

Sensitivity tests of the same kind were performed for the real part ranged from 1.1 to 1.9, and for the imaginary part ranged from 10^{-8} to 1. Retrieval uncertainties as functions of the imaginary part χ of the refractive index are detailed in Table 2. Generally, the properties outlined above remain unchanged within the range of the real part $1.1 \leq n \leq 1.9$. It is reasonable that the measurement errors significantly affect the retrieval accuracy, and the accuracy depends on the value of χ .

Table 2
Retrieval uncertainties as functions of the imaginary part χ of the refractive index

χ	$\chi \leq 10^{-4}$	$10^{-4} \leq \chi \leq 5 \times 10^{-3}$	$5 \times 10^{-3} \leq \chi \leq 0.5$	$0.5 \leq \chi$
Δn	± 0.005	± 0.01	± 0.05	Impossible
$\Delta \chi / \chi$	l.a.	$\pm 10\%$	$\pm 10\%$	$\pm 10\%$

Values remain unchanged within the range of the real part $1.1 \leq n \leq 1.9$. (l.a. means that particles are low absorbing.)

In what follows, we discuss the results of sensitivity tests to the standard deviation σ and the median radius r_V when they are retrieved along with the complex index of refraction from scattering measurements. An example of such tests is shown on Fig. 8. The X-axis is for the standard deviation, the Y-axis represents the real part n , the Z-axis corresponds to the RMS values. Fig. 8 shows the case of moderate absorbing particles $m_{\text{meas}} = 1.44 + 5 \times 10^{-3}i$ and of the measurement errors of 10%. The “true” value $\sigma = 0.5$ of the standard deviation can be retrieved. As for the imaginary part, it can be estimated (not shown). This is in agreement with the results of Fig. 5.

Our simulations revealed that the D2PN data provide possibility to retrieve both the median volume radius r_V and the real part of the refractive index. Fig. 9 presents the RMS values (Z-axis in the log scale), the radius r_V (X-axis in the log scale) and the real part of the refractive index (Y-axis). A minimum is seen for $r_V = 1.5 \mu\text{m}$ and $n = 1.44$, that is, the values used to compute the synthetic measurements.

Figs. 2–9 showed the examples of the RMS values as a function of two parameters. It follows from our simulations that the results above remain unaltered when four parameters (the microphysical characteristics σ and r_V , and the both parts of the refractive index) vary simultaneously. That is, σ and r_V can be retrieved along with the refractive index. As for $m = n + i\chi$, it should be remembered that there is difference between the cases of low, moderate and high absorbing particles (see Table 2).

The same conclusions go for retrievals of the concentration C_V , that is, five parameters n , χ , σ , r_V and C_V can be estimated simultaneously with the exception of strong absorbing particles, i.e., when χ is of the order of 1. It turns out that in such a case there is no pronounced minimum of the RMS values as a function of C_V and the imaginary part of the refractive index. These properties can be explained using the formalism of the linear inverse problems theory. The covariance matrix of retrieval errors caused by random noise can be estimated by the expression (see, e.g., [27, Section 3.2] and [10])

$$\mathbf{C} = (\mathbf{B}^T \mathbf{W}^{-1} \mathbf{B})^{-1}, \quad (10)$$

where $\mathbf{B}$ is the Jacobi matrix of the first derivatives in the near vicinity of the solution, i.e., $\mathbf{B}_{ij} = \partial \varphi_i / \partial a_j$, $\mathbf{W}$ is the covariance matrix of measurement errors. The square roots of the diagonal elements (variances) of $\mathbf{C}$ can be interpreted as ‘uncertainty bars’ [27, section 3.2]. If $D = \det(\mathbf{B}^T \mathbf{W}^{-1} \mathbf{B})$ is close to zero, $\mathbf{C}_{ii} = [(\mathbf{B}^T \mathbf{W}^{-1} \mathbf{B})^{-1}]_{ii} \rightarrow \infty$. It means that the parameters a_j cannot be estimated all together.

In the D2PN, range of scattering angles and for χ close to 1, the value of the determinant D is very low, that is, 10^6 times lower than the values for particles with the moderate absorption. On the other hand, if the set of the retrieved parameters consists of χ , σ and r_V , the values of D are of the same order of magnitude for all χ . Thus, the concentration C_V and the imaginary part of the refractive index affect the D2PN data just in opposite directions in the case of strong absorbing particles.

It should be pointed out that the results above concern only measurements carried out in a limited range of scattering angles, i.e., for θ from 10° to 169° . The most important point is that there are no data at angles θ that are close to forward scattering ($0^\circ \leq \theta < 10^\circ$). On the other hand, the eigenvector analysis (see, e.g., [28, Section 8.5]) of the logarithm of phase functions, which are measured in the range of the scattering angles from 0° to 180° , revealed the following features. The main information on strong absorbing particles is contained in the interval about $0^\circ \leq \theta \leq 20^\circ$. Moreover, if this interval is available, the determinant D is sufficiently high, and microphysical parameters can be retrieved along with the assessment of the complex refractive index. In connection with this, the aureole CIMEL measurements (see, e.g., [6,19]) are particularly attractive in study of fossil fuel combustion and biomass-burning aerosols. We note in passing that in the case the moderate absorption particles ($10^{-4} \leq \chi \leq 0.5$) the interval of scattering angles $90^\circ \leq \theta \leq 160^\circ$ is also informative.

Our simulations, performed for the polarized perpendicular $I_\perp$ and parallel $I_\parallel$ components taken individually or in combination, showed that, compared with the case of the unnormalized phase function $I(\theta)$, the sensitivity the D2PN data increased, but not essentially. At the same time, it is expected that measurements of $I_\perp$ and $I_\parallel$ will be substantial for characterization of non-spherical particles (see, e.g., [9]).

5. Conclusion

The lookup table approach is a useful tool to study the sensitivity of experimental data to retrieved parameters when one deals with a non-linear inverse problem. Although that approach is time consuming, it enables rigorous evaluation of effects of all characteristics and measurement errors without linearity assumption. Moreover, all secondary minima can be disclosed and it gives ideas on starting vector values when an iterative algorithm of inversion is supposed to be used.

The data of the D2PN provide possibility to retrieve microphysical parameters of spherical aerosols, i.e., the median radius r_v , the standard deviation σ , and the concentration C_v , along with the assessment of the complex refractive index. The D2PN data appeared to be highly redundant with respect to the size distribution of homogeneous spheres and their refractive index. At the same time, it is expected that measurements of $I_{\perp}$ and $I_{\parallel}$ will be substantial for characterization of non-spherical particles.

In the case of the low absorbing particles, measurement errors substantially reduce the sensitivity of the D2PN data to the imaginary part of the refractive index. That is, only the range of the imaginary part can be estimated, whereas the real part of the refractive index and the microphysical parameters can be retrieved. When the absorption of particles is moderate, i.e., $10^{-4} \leq \chi \leq 0.5$, the real and imaginary parts of the refractive index can be deduced along with the microphysical parameters with quite good accuracy.

In the case when the absorption of particles is high, the data of the D2PN are not sensitive to the real part of the refractive index and retrieval errors of the concentration C_v are high. Thus, only the microphysical characteristics σ , r_v and the imaginary part can be retrieved with good accuracy.

In view of the fact that the D2PN set of the measured characteristics is quite large, it is reasonable that the disclosed limitations on retrieval of the complex refractive index of spherical particles from scattering measurements should be valid for data of other instruments measuring the same magnitudes as D2PN with the same errors. In our opinion, the above-mentioned limitations can be overcome with measurements extended to intervals of angles that are close to forward scattering ($0^\circ \leq \theta < 10^\circ$).

Although intensities of scattered light for spherical and non-spherical particles differ (see, e.g., [9,24]), in our opinion the mentioned above limitations on assessment of n and χ should be valid for non-spherical aerosols. The possibility to retrieve microphysical characteristics and shape parameters of such particles needs thorough investigations. On the other hand, Dubovik et al. [9] showed that mixtures of spheroids allow rather accurate fitting of AERONET measured spectral and angular dependencies of observed intensity and polarization. Thus, it is promising to adapt the inverse method developed by Dubovik and colleagues [8,9] to retrieve complex refractive index and size distributions of spherical aerosols and ensembles of prolate and oblate particles from D2PN data.

References

- [1] Barkey B, Suzanne SE, Chung A. Genetic algorithm inversion of dual polarization polar nephelometer data to determine aerosol refractive index. *Aerosol Sci Technol* 2007;41:751–60.
- [2] Bohren CF, Huffman DR. Absorption and scattering of light by small particles. 3rd ed. New York: Wiley-Interscience; 1983.
- [3] Bond TC, Bergstrom RW. Light absorption by carbonaceous particles: an investigative review. *J Aerosol Sci* 2006;40:27–67.
- [4] Chazette P, Randriamiarisoa H, Sanak J, Couvert P, Flamant C. Optical properties of urban aerosol from airborne and ground-based in situ measurements performed during the Etude et Simulation de la Qualité de l'air en Ile de France (ESQUIF) program. *J Geophys Res* 2005;110:D02206.
- [5] D'Almeida GA, Koepke P, Shettle EP. Atmospheric aerosols. Global climatology and radiative characteristics. Hampton, VA: A Deepak Publishing; 1991.
- [6] Dubovik O, Smirnov A, Holben BN, King MD, Kaufman YJ, Eck TF, et al. Accuracy assessments of aerosol optical properties retrieved from AERONET sun and sky radiance measurements. *J Geophys Res* 2000;105:D8:9791–806.
- [7] Dubovik O, Holben BN, Eck TF, Smirnov A, Kaufman YJ, King MD, et al. Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations. *J Atmos Sci* 2002;59:590–608.
- [8] Dubovik O. Optimization of numerical inversion in photopolarimetric remote sensing. In: Videen G, Yatskiv Y, Mishchenko M, editors. *Photopolarimetry in remote sensing*. Dordrecht, The Netherlands: Kluwer Academic Publishers; 2004. p. 65–106.
- [9] Dubovik O, Sinyuk A, Lapyonok T, Holben BN, Mishchenko M, Yang P, et al. Application of spheroid models to account for aerosol particle nonsphericity in remote sensing of desert dust. *J Geophys Res* 2006;111:D11208.
- [10] Eadie W, Drijard D, James F, Roos M, Sadoulet B. Statistical methods in experimental physics. Amsterdam: North-Holland; 1971.
- [11] Fuller KA, Malm WC, Kreidenweis SM. Effects of mixing on extinction by carbonaceous particles. *J Geophys Res* 1999;104:15941–54.
- [12] Grey WMF, North PRJ, Los SO. Computationally efficient method for retrieving aerosol optical depth from ATSR-2 and AATSR data. *Appl Opt* 2006;45:12:2786–122795.
- [13] Horvath H. Atmospheric light absorption—a review. *Atmos Environ* 1993;27A:293–317.
- [14] Hovenier JW. Measuring scattering matrices of small particles at optical wavelengths. In: Mishchenko MI, Hovenier JW, Travis LD, editors. *Light scattering by nonspherical particles*. San Diego: Academic Press; 2000. p. 355–65.
- [15] Hovenier JW, Van der Mee C, Domke H. Transfer of polarized light in planetary atmospheres. Dordrecht: Kluwer Academic Publishers; 2004.
- [16] International Panel on Climate Change (IPCC), Climate Change 2007: The Physical Science Basis, Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the IPCC (ISBN:978-0521-88009-1), 2007.
- [17] Jones MR, Leong KH, Brewster MQ, Curry BP. Inversion of light-scattering measurements for particle size and optical constants: experimental study. *Appl Opt* 1994;33:4025–41.
- [18] Kokhanovsky AA. Optical properties of terrestrial clouds. *Earth Sci Rev* 2004;64:189–241.
- [19] Li Z, Goloub P, Blarel L, Damiri B, Podvin T, Jankowiak I. Dust optical properties retrieved from ground-based polarimetric measurements. *Appl Opt* 2007;46:1548–53.
- [20] Ligon DA, Gillespie JB, Chen TW. Determination of aerosol parameters from light scattering data using an inverse Monte Carlo technique. *Appl Opt* 1996;35(21):4297–303.
- [21] Mishchenko MI, Travis LD, Lacis AA. Scattering, absorption, and emission of light by small particles. New York, Cambridge: University Press; 2002 (Available at <http://www.giss.nasa.gov/~crmim/books.html>).
- [22] Press WH, Flannery BP, Teukolsky SA, Vetterling WT. Numerical recipes in C: the art of scientific computing. Cambridge: Cambridge University Press; 1992.
- [23] Rodgers CD. Inverse methods for atmospheric sounding: theory and practice. Series on atmospheric oceanic and planetary physics, vol. 2. Singapore: World Scientific; 2000.
- [24] Rother T, Schmidt K, Wauer J, Shcherbakov V, Gayet J-F. Light scattering on Chebyshev particles of higher order. *Appl Opt* 2006;45(23):6030–7.
- [25] Seinfeld JH, Pandis SN. Atmospheric chemistry and physics; from air pollution to climate change. New York: Wiley; 1998.
- [26] Tanaka M, Takamura T, Nakajima T. Refractive index and size distribution of aerosols as estimated from light scattering measurements. *J Climate Appl Meteorol* 1983;22:1253–61.

- [27] Tarantola A. Inverse problem theory and methods for model parameter estimation. SIAM; 2005.
- [28] Twomey S. Introduction to mathematics of inversion in remote sensing and indirect measurements. New York: Dover Publications Inc.; 1977.
- [29] van de Hulst HC. Light scattering by small particles. New York: Wiley, Hoboken; 1957.
- [30] Veselovskii I, Korenskii M, Griaiznov V, Whiteman DN, McGill M, Roy G, et al. Information content of data measured with a multiple-field-of-view lidar. *Appl Opt* 2006;45(26):6839–48.
- [31] Zasetsky AY, Sloan JJ. Monte Carlo approach to identification of the composition of stratospheric aerosols from infrared solar occultation measurements. *Appl Opt* 2005;44(22):4785–90.
- [32] Zhao F, Gong Z, Hu H, Tanaka M, Hayasaka T. Simultaneous determination of the aerosol complex index of refraction and size distribution from scattering measurements of polarized light. *Appl Opt* 1997;36:7992–8001.
- [33] Zhao F. Determination of the complex index of refraction and size distribution of aerosols from polar nephelometer measurements. *Appl Opt* 1999;38:2331–6.

Résumé

Un néphélomètre polaire de laboratoire a été développé afin de mesurer la diffusion d'une lumière non polarisée dans différentes directions par une population de particules. Cet appareil mesure la lumière diffusée suivant 2 directions de polarisation pour des angles compris entre 10 et 169°. Pour des particules sphériques homogènes, les concentrations minimales détectables ont été évaluées en fonction du diamètre de celles-ci. Lorsque les concentrations sont cinq fois supérieures à ces valeurs seuils, l'incertitude de mesure a été chiffrée à environ 5%.

Une méthode d'inversion de ce type de données utilisant une « look-up table » a été développée afin de restituer simultanément l'indice de réfraction complexe et la granulométrie des particules éclairées, dans le cas où ces particules sont sphériques et homogènes. Cette méthode a été testée sur une large gamme de valeurs d'indices complexes et de diamètres. Il est démontré que lorsque les particules sont faiblement absorbantes (partie imaginaire $< 10^{-4}$) seule la partie réelle peut être chiffrée. Si les particules sont fortement absorbantes seule la partie imaginaire est retrouvée. Entre ces deux cas limites la méthode restitue parfaitement l'indice de réfraction complexe et la granulométrie de ces particules.

Cette méthode a été utilisée avec des mesures réelles collectées en laboratoire et a montré de bonnes performances. Des mesures collectées en nuage avec un néphélomètre aéroporté ont aussi été traitées pour trois cas (deux en nuage et un en contrail). Ce traitement a permis de mettre en évidence que les particules des contrails ne sont pas des particules d'eau sphériques.

Résumé court

Un néphélomètre polaire de laboratoire a été développé afin de mesurer la diffusion de la lumière suivant 2 directions de polarisation par des particules. Les concentrations minimales détectables et l'incertitude de mesure ont été évaluées. Une méthode d'inversion de ces données par une look-up table a été développée afin de restituer l'indice de réfraction complexe et la granulométrie des particules sphériques. Les résultats sont que pour les particules faiblement absorbantes seule la partie réelle peut être chiffrée. Si les particules sont fortement absorbantes seule la partie imaginaire est retrouvée. Autrement la méthode restitue l'indice de réfraction complexe et la granulométrie.

Cette méthode, utilisée avec des mesures réelles collectées en laboratoire ainsi qu'avec des mesures collectées en nuage (2 nuages, 1 contrail) avec un néphélomètre aéroporté, a montré de bonnes performances. Ceci a mis en évidence que les particules des contrails ne sont pas des particules d'eau sphériques

Mots clés : diffusion de la lumière ; polarisation ; aérosols ; problème inverse ; indice de réfraction complexe ; granulométrie.

Retrieval of the complex refractive index and the size distribution of an ensemble of spherical particles from light scattering data

Résumé en anglais

A laboratory polar nephelometer was developed in order to measure the light scattered by an ensemble of particles from nonpolarized light. The instrument measures the scattered light along 2 directions of polarization for the scattering angles ranging from 10° to 169° . For homogeneous spherical particles, the detectable minimal concentrations were estimated with respect to the diameter of particles. When the concentrations are five times higher than these threshold values, the uncertainty of measurement was quantified to be about 5%.

It was developed a method of inversion of nephelometer data in order to simultaneously retrieve the complex refractive index and the size distribution of particles. The method is based on the lookup-table approach, and particles are assumed to be homogeneous spheres. This method was tested on a broad range of values of the refractive index and particle diameters. It is shown that only the real part can be quantified for low absorbing particles (imaginary part $< 10^{-4}$). If the particles are strongly absorbing, only the imaginary part can be found. Otherwise, the method retrieves the complex index of refraction and the size distribution.

The method was applied to real laboratory data, and its good performance was confirmed. The data collected in cloud with an airborne nephelometer were also processed. Three cases were considered (two in cloud and one in contrail). It was shown that the particles of the contrails were not spherical water droplets.

Résumé court

A laboratory polar nephelometer was developed in order to measure the light scattered by particles along two directions of polarization. The minimal concentrations of detection and the uncertainty of measurement were estimated.

A lookup table method was developed in order to retrieve the complex index of refraction and the size distribution of spherical particles from nephelometer data. It is shown that only the real part can be quantified for low absorbing particles. If the particles are strongly absorbing, only the imaginary part can be found. Otherwise, the method retrieves the complex index of refraction and the size distribution.

The method was applied to real laboratory measurements and to data collected in cloud (2 clouds, 1 contrail) with an airborne nephelometer. The method provides good performance. It was shown that the particles of the contrails were not spherical water droplets.

Keywords: light scattering; polarization; aerosols; inverse problem; complex refractive index; size distribution