



HAL
open science

Quantification et étude du transport des polluants dans la troposphère tropicale de l'océan Indien

Valentin Duflot

► **To cite this version:**

Valentin Duflot. Quantification et étude du transport des polluants dans la troposphère tropicale de l'océan Indien. Autre [cond-mat.other]. Université de la Réunion, 2011. Français. NNT : 2011LARE0007 . tel-00671951

HAL Id: tel-00671951

<https://theses.hal.science/tel-00671951>

Submitted on 20 Feb 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.

Quantification et étude du transport des polluants dans la troposphère de l'Océan Indien

Valentin Duflot

Laboratoire de l'Atmosphère et des Cyclones

Université de la Réunion

Thèse présentée pour l'obtention du grade de
Docteur en Physique de l'Atmosphère de l'Université de la Réunion

le 5 Novembre 2011 devant le jury composé de :

M. Jean-Luc Baray	Directeur de Thèse
M. Jean-Pierre Cammas	Rapporteur
M. Patrick Chazette	Examineur
M. Robert Delmas	Co-Directeur de Thèse
Mme Martine De Mazière	Examinatrice
M. Jean-Marie Flaud	Examineur
M. Alain Hauchecorne	Rapporteur



à Gilou.

”- Lorsque tu connaîtras la quatrefeuille en toutes saisons, sa racine, sa feuille et sa fleur, son aspect, son parfum et sa graine, alors tu pourras apprendre son vrai nom, car tu en connaîtras l’essence, ce qui est mieux que d’en connaître l’utilité. Après tout, quelle est ton utilité ? Ou la mienne ? La Montagne de Gont est-elle utile, ou bien la Haute Mer ?

Et cinq cents pas plus loin, Ogion ajouta enfin :

- Pour entendre, il faut être silencieux.”

Ursula Le Guin, *Terremer*

Remerciements

Les remerciements... Tant de gens m'ont aidé pendant la réalisation de cette thèse ! Essayons de n'oublier personne...

Il y a d'abord eu Robert Delmas, qui, lorsque je suis venu - la fleur au fusil et mon diplôme d'ingénieur télécom sous le bras - lui demander s'il n'y aurait pas la possibilité de travailler au sein du LACy, a eu la judicieuse idée de m'aiguiller vers le Master 2 Atmosphère qui venait d'ouvrir. C'est là que l'aventure a commencé...

Puis est intervenu Jean Leveau (LACy), dont l'enthousiasme pour une collaboration IASB-LACy a suscité mon intérêt et m'a fait postuler pour un stage de recherche sur le FTIR à cheval entre Bruxelles et la Réunion.

Jean-Luc Baray, Martine De Mazière et Corinne Vigouroux (IASB) m'ont alors encadré pendant cinq mois et m'ont véritablement fait prendre goût à la recherche.

Ceci m'a naturellement amené à entamer une chasse aux bourses de thèse. Dominique Le Quéau (CNRS-INSU) et Nathalie Poisson (ADEME), sous l'impulsion de Robert Delmas, ont ainsi répondu favorablement à un cofinancement de mon projet de thèse dirigée par Jean-Luc et Robert ; l'aventure pouvait continuer.

Ma première tâche fut l'installation et le rendu opérationnel du modèle GIRAFE... Mission et essuyage de plâtre qu'il m'aurait été impossible de mener à bien sans l'aide précieuse et inconditionnelle de Franck Gabarrot (OPAR).

La rédaction de mon premier article n'aurait pu se faire de manière aussi constructive sans le soutien et l'aide des co-auteurs, en particulier Martine, Bart Dils, Gauthier Vanhaelewyn (IASB), Jean-Luc Attié (LA) et, bien sûr, Jean-Luc Baray. Jean-Marc Metzger (OPAR) et l'équipe de Martine (en particulier Christian Hermans et Francis Scolas) ont permis aux campagnes FTIR d'aboutir (ha ! les dépannages en tout genre et les éternels remplissages d'azote liquide !).

Autre volet de cette thèse, autre collaboration : les campagnes avec lidar aérosols mobile embarqué sur le Marion Dufresne. De telles opérations n'auraient pu être concrétisées sans les investissements de Robert et de Yann Courcoux (OPAR). Ce dernier, tant sur le terrain qu'au bureau, s'est dépensé sans compter pour que ces

campagnes se déroulent au mieux et bénéficient du soutien de l'IPEV et des TAAF, et que les instruments soient en bon état de fonctionnement. Franck Gabarrot, Martial Barblu et Patrick Hernandez (OPAR) ont également donné de leur personne sur le terrain pour assurer la conduite des campagnes.

Quant à l'équipage du Marion Dufresne et aux personnalités hautes en couleur rencontrées lors de ces campagnes... Elles sont bien trop nombreuses pour en faire une liste exhaustive ici, mais qu'elles sachent que rien n'aurait été possible sans elles, et l'ambiance beaucoup moins chaleureuse !

L'exploitation des données lidar a été rendue possible grâce aux conseils et enseignements de Patrick Chazette et Philippe Royer (LSCE-CEA). Leur accueil au sein du CEA a été chaleureux, et leur disponibilité, leur compétence, ont été indispensables à la rédaction de mon deuxième article.

La rédaction de ce manuscrit n'aurait pu se faire aussi efficacement sans les relectures rigoureuses et rapides de Jean-Luc et Robert, et la soutenance impossible sans l'accord des membres du jury : Jean-Pierre Cammas, Patrick Chazette, Martine De Mazière, Jean-Marie Flaud et Alain Hauchecorne.

On le voit dans ces remerciements chronologiques, mes deux directeurs de thèse, Robert et Jean-Luc, ont été parmi mes principaux appuis. Toujours disponible et d'un soutien constant, Jean-Luc m'a orienté lors des périodes de doute et de "dispersion", et son pragmatisme, associé à sa bienveillance et à sa conscience professionnelle, ont fait de ces trois années une expérience très enrichissante dont je garderai un excellent souvenir.

Mais, bien sûr, il n'est pas le seul. Au labo, il me faut citer Nahouda, Chouaibou, Nelson, Hélène, Pierre, Christelle, puis, plus tard, Meriem et Priya, qui ont tous contribué à rendre l'ambiance aussi agréable que possible. Joyce a su faire preuve d'une grande réactivité pour la résolution de certains déboires administratifs. Jimmy et Françoise ont été pour moi de précieuses compagnies avec qui échanger, rire et parfois laisser s'échapper le stress ou la pression.

J'ai eu la chance de rencontrer et de côtoyer une foultitude d'individus sans lesquels rien n'aurait été pareil, et les souvenirs moins nombreux, moins grisants. Alexis Merlaud - "collègue et néanmoins ami" - m'a hébergé chez lui à Bruxelles lors de mes nombreuses visites, et mes séjours n'en furent que plus sympathiques ! Mes amis du club photo de l'université - Yves (et Zack et Camille, qui m'ont supporté chez eux pendant six mois quand même...), David, Fabien, Johanna (et Eric), Manu, Morgane, Ludo, Christophe, Sabine - ont contribué à me décoller le nez du guidon, à

me réaliser dans autre chose que ma thèse. Mes collocs - Séb, Alexis, Marie, Adrien, Mimi, Claire, Cédric, Nath, Chris, Sam, Angéline, Mamar, Nico, Claire, Tonio et bien sûr le Tigre - ont supporté mes périodes d'hibernation, mon manque de zèle dans la réalisation des tâches ménagères, et m'ont aussi grandement aidé à m'aérer la tête.

La pratique du sport m'a également beaucoup apporté, tant au niveau des rencontres que de l'équilibre. J'ai ainsi pratiqué la plongée (et la conception de jeux) avec Wulfy, et surtout le canyoning avec une sacrée bande de joyeux drilles : Christian et Carmen, Séb et Aurélie, Titi (ha! les soirées aluminium au trou de fer!), JC, Feusto, sans oublier Gilou... à qui je dois également la pratique de la chute libre.

Mes parents Maryse et Jacques, et mon frère Julien, m'ont toujours encouragé et soutenu, et ce malgré la distance. J'ai grande hâte de les retrouver, ainsi que les plus beaux petits marmailles du monde : Jean et Étienne.

Il y a aussi ceux qui sauront pourquoi je les cite tout particulièrement : Chantal, Christian, Séb, Yves, Jimmy, Sabine. Qu'ils sachent toute l'importance qu'ils ont pour moi.

Oui, car la thèse est certes une aventure professionnelle, mais avant tout humaine ; et, humainement, il s'en est passé des choses pendant ces trois années.... Alors, pour tout ce que j'ai appris sur la recherche et sur la physique de l'atmosphère, et surtout sur moi-même et sur les autres, j'adresse un immense merci à tous ceux que j'ai cités ci-dessus :

MERCI !

Et, surtout, MERCI à toi Théodora, merci pour tout ce que tu me donnes...



Table des matières

Table des figures	xiii
Liste des tableaux	xix
1 Introduction générale	1
1.1 Contexte scientifique	1
1.2 Pourquoi s'intéresser à l'Océan Indien ?	4
1.2.1 Introduction	4
1.2.2 Du manque de mesures au sol	4
1.2.3 De l'importance de la quantité de polluants émise	6
1.2.4 Des feux de biomasse	7
1.3 La dynamique troposphérique de l'Océan Indien	9
1.3.1 Introduction	9
1.3.2 La circulation troposphérique générale	11
1.3.3 Zoom sur l'Océan Indien	14
1.4 Polluants transportés dans la troposphère de l'Océan Indien	17
1.4.1 Introduction	17
1.4.2 Gaz traces	18
1.4.2.1 CO	18
1.4.2.2 Ozone	22
1.4.3 Aérosols	25
1.5 Organisation du manuscrit	30
1.5.1 Objectifs de la thèse	30
1.5.2 Plan	32
2 La spectrométrie infrarouge à transformée de Fourier	33
2.1 Introduction	33
2.2 Le modèle direct	34

TABLE DES MATIÈRES

2.2.1	Introduction	34
2.2.2	L'absorption infrarouge dans l'atmosphère	34
2.2.2.1	Introduction	34
2.2.2.2	Le spectre d'absorption IR	36
2.2.2.3	L'équation de transfert radiatif	40
2.2.2.4	Conclusion	42
2.2.3	Principes du spectromètre à transformée de Fourier (FTS)	42
2.2.3.1	Introduction	42
2.2.3.2	L'interféromètre de Michelson et l'obtention du spectre à partir de l'interférogramme	43
2.2.3.3	Le profil instrumental	46
2.2.3.4	Le rapport signal sur bruit	46
2.2.3.5	Les avantages de la spectrométrie à transformée de Fourier	47
2.2.4	Conclusion	48
2.3	La méthode d'inversion	48
2.3.1	Introduction	48
2.3.2	La méthode d'estimation optimale : bases théoriques	49
2.3.3	Les erreurs d'inversion	51
2.3.4	La version semi-empirique de l'OEM et les paramètres de régularisation	52
2.3.5	Conclusion	53
2.4	Les campagnes FTIR à la Réunion	53
2.4.1	Introduction	53
2.4.2	Le FTIR utilisé	54
2.4.3	La stratégie d'inversion, le profil a priori et les paramètres de régularisation	56
2.4.4	Contenu en information, sensibilité et bilan d'erreurs	56
2.4.5	Conclusion	60
2.5	Conclusions du chapitre 2	60
3	Téledétection des aérosols par photomètre et lidar	63
3.1	Introduction	63
3.2	L'extinction atmosphérique	64
3.2.1	Introduction	64
3.2.2	Absorption	66
3.2.3	Diffusion	66
3.2.3.1	La diffusion particulaire ou diffusion de Mie	67
3.2.3.2	La diffusion moléculaire ou diffusion Rayleigh	68

3.2.4	Conclusion	69
3.3	Téledétection photométrique	70
3.3.1	Introduction	70
3.3.2	Principe	70
3.3.2.1	L'épaisseur optique des aérosols mesurée par photomètre	70
3.3.2.2	Le coefficient d'Ångström	72
3.3.3	Les photomètres utilisés dans cette étude	72
3.3.3.1	Le photomètre CIMEL et le réseau AERONET	72
3.3.3.2	Le photomètre MICROTOPS II et le réseau MAN	74
3.3.4	Conclusion	75
3.4	La téledétection par lidar et la synergie lidar-photomètre	76
3.4.1	Introduction	76
3.4.2	Principe du lidar	77
3.4.3	Théorie du signal lidar	78
3.4.3.1	L'équation lidar (diffusion élastique)	78
3.4.3.2	Calcul du facteur de recouvrement	79
3.4.3.3	Calcul de la constante de calibration	79
3.4.3.4	Inversion de Fernald et Klett	80
3.4.3.5	Contrainte d'inversion : la synergie lidar-photomètre	81
3.4.3.6	Le rapport signal sur bruit	81
3.4.4	Conclusion	82
3.5	Les campagnes lidar-photomètre dans l'Océan Indien	82
3.5.1	Introduction	82
3.5.2	Le lidar utilisé	84
3.5.3	La campagne MACAMAZ	84
3.5.4	La campagne KAMASUTRA	86
3.5.5	Les campagnes INDOAM et KAMASUTRA II	86
3.5.6	Conclusion	89
3.6	Conclusions du Chapitre 3	89
4	Outils de modélisation	91
4.1	Introduction	91
4.2	FLEXPART	91
4.3	GIRAFE	92
4.3.1	MODIS	93
4.3.2	GIRAFE v3	93

TABLE DES MATIÈRES

4.4	LACYTRAJ	94
4.4.1	Description	94
4.4.2	Validation	95
4.5	Conclusions du chapitre 4	95
5	Transport et distribution de gaz traces dans le sud-ouest de l’Océan Indien	97
5.1	Introduction	97
5.2	Analyse de la distribution de CO dans le sud-ouest de l’Océan Indien tropical . .	98
5.2.1	Introduction	98
5.2.2	Observations FTIR au sol à la Réunion	98
5.2.3	Analyse de la saison des feux 2007	102
5.2.3.1	Données et bases de données utilisées dans cette étude	102
5.2.3.2	Observations MOPITT	104
5.2.3.3	Origines des masses d’air passant à la verticale de la Réunion . .	105
5.2.3.4	Impact des masses d’air enrichies en CO sur la distribution de CO à la verticale de la Réunion	110
5.2.4	Conclusion	116
5.3	Ozone troposphérique aux Kerguelen	118
5.3.1	Introduction	118
5.3.2	Instrumentation	118
5.3.3	Observations	119
5.3.4	Origine du maximum d’ozone en hiver austral	119
5.3.5	Conclusion	123
5.4	Conclusions du chapitre 5	123
6	Distribution et transport des aérosols dans le sud-ouest de l’Océan Indien	125
6.1	Introduction	125
6.2	Les aérosols à la Réunion	126
6.2.1	Introduction	126
6.2.2	Climatologie de l’épaisseur optique	128
6.2.3	Caractéristiques de la distribution en taille des aérosols	130
6.2.3.1	Analyse du coefficient d’Ångström	130
6.2.3.2	Distribution en taille des aérosols à la Réunion	133
6.2.4	Conclusion	134
6.3	Aérosols marins et de feux de biomasse dans le sud-ouest de l’Océan Indien . . .	135
6.3.1	Introduction	135

TABLE DES MATIÈRES

6.3.2	La calibration du lidar	136
6.3.3	Les propriétés optiques des aérosols dérivées des mesures lidar	136
6.3.3.1	Propriétés optiques des aérosols marins	138
6.3.3.2	Propriétés optiques des aérosols de feux	139
6.3.4	Discussion	149
6.3.4.1	Origine des masses d'air chargées en aérosols : comparaison avec le modèle GIRAFE	149
6.3.4.2	Incertitudes	151
6.3.4.3	Comparaison avec les études précédentes	153
6.3.5	Conclusion	156
6.4	Conclusions du Chapitre 6	157
7	Conclusions générales	159
7.1	Synthèse	159
7.2	Perspectives	163
8	Références	167
9	Annexe A : Article Duflot et al. (2010)	173
10	Annexe B : Article Duflot et al. (2011)	191
11	Annexe C : Liste des publications et communications	207

TABLE DES MATIÈRES

Table des figures

1.1	Variations de la température et du niveau de la mer à l'échelle du globe et de la couverture neigeuse dans l'hémisphère Nord	2
1.2	Composantes du forçage radiatif	3
1.3	Carte des sites du réseau GAW	5
1.4	Carte des sites du réseau NDACC	5
1.5	Carte des sites du réseau SHADOZ	6
1.6	Localisation des foyers d'incendie au cours de l'année 2010	7
1.7	Profil de température dans l'atmosphère	10
1.8	Structure verticale de la troposphère	10
1.9	Schéma de la circulation troposphérique globale	11
1.10	Positions extrêmes de la ZCIT	12
1.11	Les cellules de Walker et les écarts de températures par rapport à la moyenne océanique	13
1.12	Temps caractéristiques du transport des masses d'air	14
1.13	Circulation troposphérique dans l'hémisphère sud	15
1.14	Circulation méridionale moyenne dans l'hémisphère sud de Juin à Août	15
1.15	La "rivière de fumée" s'échappant par le sud-est de l'Afrique Australe	16
1.16	Répartition globale des sources de CO	19
1.17	Répartition latitudinale de la colonne totale de CO au cours des années 2000 à 2004 par MOPITT	20
1.18	Variation du CO à 700 hPa (données MOPITT de 2000 à 2006)	21
1.19	Profil global moyen d'ozone	22
1.20	Evolution de la concentration globale d'ozone troposphérique de Décembre 1996 à Novembre 1997 mesuré par GOME	23
1.21	Climatologie de l'ozone troposphérique à la Réunion	24
1.22	Répartition géographique des émissions des constituants principaux des aérosols	27

TABLE DES FIGURES

1.23	Schéma de l'impact des aérosols sur les nuages	28
1.24	Distribution en taille moyenne des principaux types d'aérosols	29
1.25	Climatologie des épaisseurs optiques entre 30 ° N et 70 ° S	31
2.1		
2.1	Spectre d'absorption des principaux absorbeurs IR	35
2.2	Le spectre électromagnétique.	37
2.3	Modes de vibration d'élongation et de déformation angulaire pour la molécule d'H ₂ O.	37
2.4	Profils de raie simulés et normalisés pour une demi-largeur à mi-hauteur de 0.01 cm ⁻¹ centrés en 0.	40
2.5	Interféromètre de Michelson.	43
2.6	Interférogramme d'une source lumineuse monochromatique.	44
2.7	Représentation schématique de la formation d'un interférogramme à partir d'une source lumineuse à spectre continu.	45
2.8	Photo du FTIR Bruker 120M en cours d'alignement à la Réunion.	55
2.9	Photo du Sun Tracker et de la station météo à la Réunion	55
2.10	Profil a priori de CO utilisé pour l'inversion.	57
2.11	Vecteurs propres de la fonction de moyennage	58
2.12	Fonctions de moyennage	59
2.13	Sensibilité de l'inversion	59
3.1		
3.1	Transmission atmosphérique dans le visible	64
3.2	Représentation de la taille de particules communes et régime de diffusion corres- pondant	65
3.3	Indicatrice de diffusion pour différentes tailles de particules	67
3.4	Photo du photomètre CIMEL à la Réunion	73
3.5	Carte des sites AERONET	74
3.6	Mesure manuelle de l'épaisseur optique avec le MICROTOPS II	75
3.7	Mesures photométriques (2004-2011) réalisées dans le cadre du réseau MAN . . .	76
3.8	Schéma de principe du lidar à rétrodiffusion	77
3.9	Représentation schématique de la zone de recouvrement	79
3.10	Le territoire des Terres Australes et Antarctiques Françaises (TAAF)	83
3.11	L'ALS450 sur le pont du Marion Dufresne	84
3.12	Le facteur de recouvrement	85
3.13	Moyenne quotidienne des épaisseurs optiques à 500nm mesurées pendant la cam- pagne MACAMOZ (19 Avril - 13 Mai 2009)	85

TABLE DES FIGURES

3.14	Moyenne mensuelle de AOT_{500} mesurée par MODIS pour le mois d'Avril sur les années 2002 à 2009	86
3.15	Moyenne quotidienne des épaisseurs optiques à 500nm mesurées pendant la campagne KAMASUTRA (21 Août - 17 Septembre 2009)	87
3.16	Moyenne mensuelle de AOT_{500} mesurée par MODIS pour le mois de Septembre sur les années 2002 à 2009	87
3.17	Moyenne quotidienne des épaisseurs optiques à 500nm mesurées pendant la campagne INDOAM (30 Juillet - 15 Août 2010)	88
3.18	Moyenne quotidienne des épaisseurs optiques à 500nm mesurées pendant la campagne KAMASUTRA II (18 Août - 14 Septembre 2010)	88
4.1	Comparaison LACYTRAJ/FLEXPART	96
5.1	Colonnes totales de CO	99
5.2	Colonnes partielles de CO	100
5.3	Fonctions de moyennage de MOPITT	103
5.4	Observations MOPITT	105
5.5	Zones définies pour l'étude des contributions à la concentration en CO à la verticale de la Réunion.	106
5.6	Répartition géographique des temps de résidence moyen	107
5.7	Temps de résidence moyens par zone	109
5.8	Evolution du temps de résidence moyens d'Asie du sud-est et d'Indonésie	110
5.9	Rétrotrajectoires LACYTRAJ	111
5.10	Emissions moyennes de CO	113
5.11	Corrélation FTIR/FLEXPART	114
5.12	Concentrations cumulées de CO déduites des simulations FLEXPART et des bases de données d'émission	114
5.13	Concentrations cumulées de CO par zone déduites des simulations FLEXPART et des bases de données d'émission	117
5.14	Profils de vent horizontal, d'humidité relative et de rapport de mélange d'ozone obtenus lors de la campagne ROCK	120
5.15	Distribution mensuelle du rapport de mélange d'ozone (0-100 ppbv)	121
5.16	Distribution géographique moyenne des particules résultante des simulations GIRAFE	122
6.1	Sites AERONET considérés	126

TABLE DES FIGURES

6.2	Nombre de mesures spectrales AERONET	127
6.3	Épaisseur optique à 440 nm dans l'hémisphère sud de Mai 2007 à Juin 2009	129
6.4	Corrélation entre l'épaisseur optique à 440 nm mesurée par photomètre et la colonne totale de CO mesurée par FTIR à la Réunion en 2007	130
6.5	Coefficient d'Ångström entre 670 et 1020 nm dans l'hémisphère sud de Mai 2007 à Juin 2009	132
6.6	Histogramme croisé de l'épaisseur optique à 440 nm et du coefficient d'Ångström entre 670 et 1020 nm à la Réunion	133
6.7	Distribution en taille des aérosols à la Réunion en fonction de l'épaisseur optique à 440 nm	134
6.8	Profil vertical du coefficient de rétrodiffusion apparent utilisé pour la calibration	137
6.9	Histogramme des valeurs de la constante instrumentale C_λ	137
6.10	Histogramme croisé de AOT_{380} et du coefficient d'Ångström entre 500 et 675 nm lors de la campagne MACAMAZ	138
6.11	Histogramme des valeurs de BER_{355} calculées lors de la campagne MACAMAZ	139
6.12	Profils de coefficient d'extinction des aérosols calculés lors de la campagne MACAMAZ	140
6.13	Histogramme croisé de AOT_{380} et du coefficient d'Ångström entre 500 et 675 nm lors de la campagne KAMASUTRA	141
6.14	Histogramme des valeurs de BER_{355} calculées lors de la campagne KAMASUTRA	141
6.15	Profils de coefficient d'extinction des aérosols calculés lors de la campagne KAMASUTRA	142
6.16	Histogramme des épaisseurs optiques $AOTL_{355}$ calculées grâce à la calibration lidar lors de la campagne KAMASUTRA	143
6.17	Corrélation entre $AOTL_{355}$ et AOT_{355}	143
6.18	Histogramme de $BERL_{355}$ calculé grâce à la calibration lidar lors de la campagne KAMASUTRA	144
6.19	Corrélation entre $BERL_{355}$ et BER_{355}	145
6.20	Evolutions temporelles de AOT_{355} , $AOTL_{355}$, BER_{355} et $BERL_{355}$ pendant la traversée du panache d'aérosols	146
6.21	Corrélation entre $BERL_{355}$ et $AOTL_{355}$	147
6.22	Profils d'extinction lors de la traversée du panache d'aérosols	148
6.23	Distributions horizontale et verticale des particules résultantes des simulations GIRAFE lors de la traversée du panache d'aérosols	150
6.24	Incertitudes sur le calcul des BER	152

TABLE DES FIGURES

6.25	Coefficient d'Ångström a entre 500 et 870 nm vs BER_{355}	155
7.1	Distributions verticales moyennes des polluants simulées par GIRAFE pour chaque saison australe à la verticale de la Réunion pour l'année 2010.	160
7.2	Evolution de la distribution horizontale des panaches de polluants émis par les feux de biomasse au cours de l'année 2010 simulée par GIRAFE	161
7.3	Evolution de la distribution verticale des panaches de polluants émis par les feux de biomasse au cours de l'année 2010 simulée par GIRAFE	162
7.4	Vue du chantier et vue idéalisée de la station d'observation du Maïdo	165

TABLE DES FIGURES

Liste des tableaux

1.1	Contributions des sources d'émission de CO	19
2.1	Paramètres d'inversion pour l'obtention de profils de CO	57
2.2	Bilan d'erreur de l'inversion	61
5.1	Augmentation de la concentration de CO	101
5.2	Distribution verticale du CO émis par les feux de biomasse par zone géographique.112	
6.1	Distribution en fréquence de l'épaisseur optique à 440 nm à la Réunion	128
6.2	Distribution en fréquence du coefficient d'Ångström entre 670 et 1020 nm à la Réunion	131
6.3	Comparaison avec les études précédentes	154

LISTE DES TABLEAUX

1

Introduction générale

1.1 Contexte scientifique

Le système climatique varie naturellement à travers les interactions physico-chimiques entre les cinq sphères constituant le système "Terre" : atmosphère, hydrosphère, lithosphère, cryosphère et biosphère. Cette variation naturelle a été modifiée par l'action de l'Homme sur son environnement, notamment par l'augmentation de la concentration atmosphérique en aérosols anthropiques et en gaz à effet de serre (+70% entre 1970 et 2004 [*Groupement Intergouvernemental pour l'étude du Climat (GIEC), 2007*]). Le forçage radiatif résultant de cette augmentation cause un changement notable dans l'équilibre entre l'énergie solaire reçue et l'énergie réémise par le système Terre, et sont ainsi les ingrédients de base du changement climatique. Un forçage radiatif négatif indique que le système Terre perd de l'énergie radiative, ce qui se traduit par un refroidissement. Les modèles climatiques montrent une relation directe entre le forçage radiatif et la température moyenne à la surface du globe, qui augmente de 0.4-1.2 °C pour chaque 1 W.m⁻² de forçage. La Figure 1.1 montre les variations observées entre 1961 et 1990 de la température moyenne à la surface du globe, du niveau moyen de la mer à l'échelle du globe, et de la couverture neigeuse dans l'hémisphère Nord, et illustre bien les effets du forçage radiatif sur le système Terre.

Les années 80 et 90 ont vu la communauté scientifique focaliser ses recherches sur la physico-chimie stratosphérique, avec la découverte en 1985 du fameux "trou" dans la couche d'ozone par l'équipe du British Antarctica Survey (BAS). Depuis, les principaux mécanismes mis en jeu dans cette couche atmosphérique ont été compris - même si la surveillance de cette couche reste une priorité et si certaines zones d'ombre subsistent (notamment sur la vapeur d'eau et les cirrus stratosphériques) - et la compréhension des impacts anthropiques sur la machine climatique, principalement gouvernée par la physico-chimie troposphérique, est devenu un enjeu crucial.

1. INTRODUCTION GÉNÉRALE

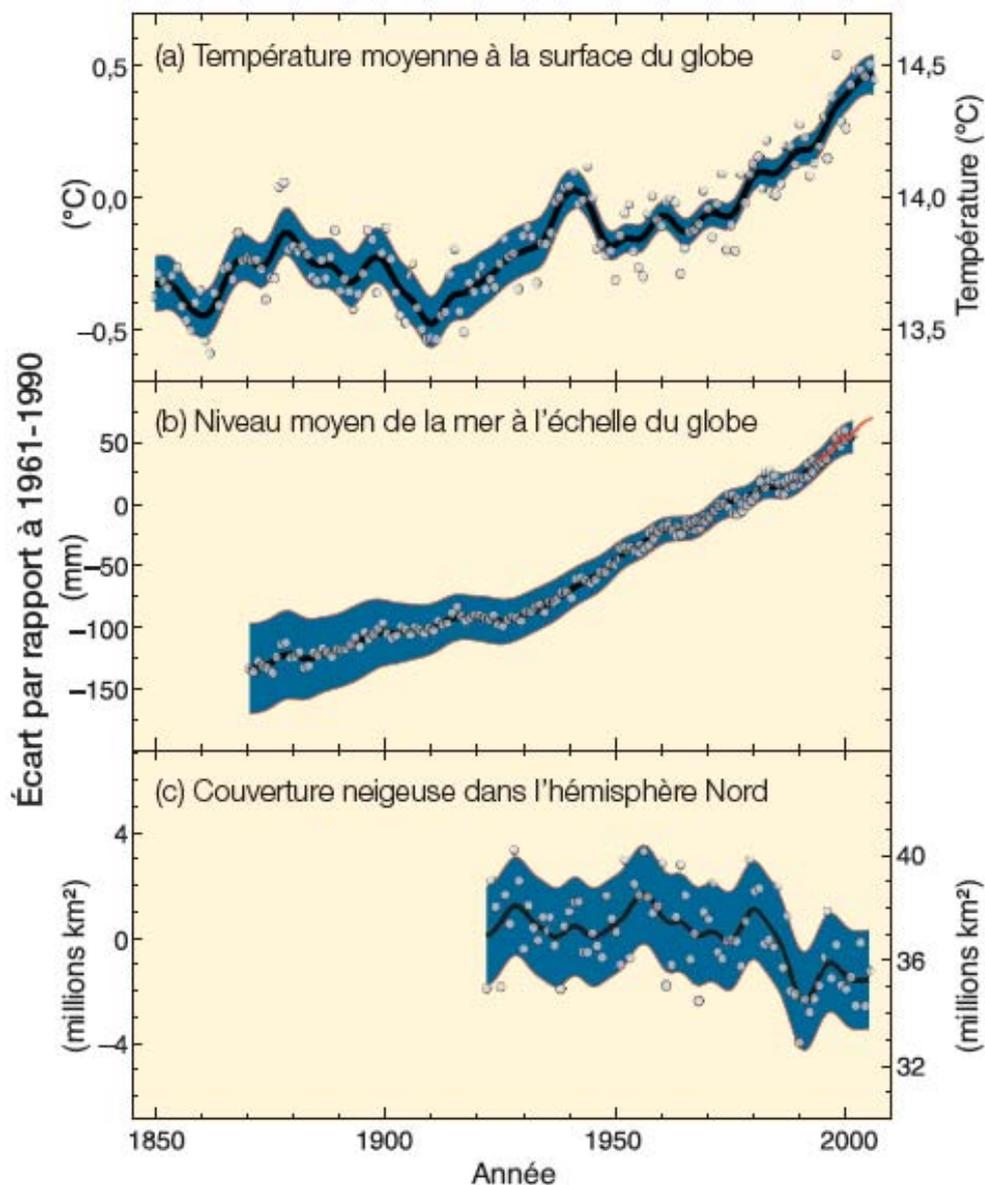


Figure 1.1: Variations de la température et du niveau de la mer à l'échelle du globe et de la couverture neigeuse dans l'hémisphère Nord - Variations observées a) de la température moyenne à la surface du globe, b) du niveau moyen de la mer à l'échelle du globe, selon les données recueillies par les marégraphes (en bleu) et les satellites (en rouge), et c) de la couverture neigeuse dans l'hémisphère Nord en mars-avril. Tous les écarts sont calculés par rapport aux moyennes pour la période 1961-1990. Les courbes lissées représentent les moyennes décennales, et les cercles correspondent aux valeurs annuelles. Les zones ombrées représentent les intervalles d'incertitude qui ont été estimés à partir d'une analyse poussée des incertitudes connues (a et b) et à partir des séries chronologiques (c) [*GIEC*, 2007]

1.1 Contexte scientifique

La troposphère est soumise à des variabilités spatio-temporelles très élevées, rendant complexe l'étude des phénomènes s'y produisant et impliquant la nécessité de mesures à la fois hautement résolues dans le temps et l'espace, et couvrant l'ensemble du globe. Dans ce contexte de changement climatique, l'objectif de telles études est la quantification du forçage radiatif induit. La Figure 1.2 montre l'état actuel des connaissances quant à cette quantification. Les gaz à effet de serre provoquent un forçage radiatif positif, alors que les aérosols ont un effet refroidissant. La dernière colonne de la Figure 1.2 indique le niveau de connaissance scientifique pour chaque composante identifiée du forçage radiatif (en lien direct avec la barre d'erreur de chaque forçage). Les aérosols, en particulier, constituent aujourd'hui une des préoccupations majeures de la communauté scientifique de par leur diversité de nature, de taille, d'impact climatique, et leur très grande variabilité spatio-temporelle.

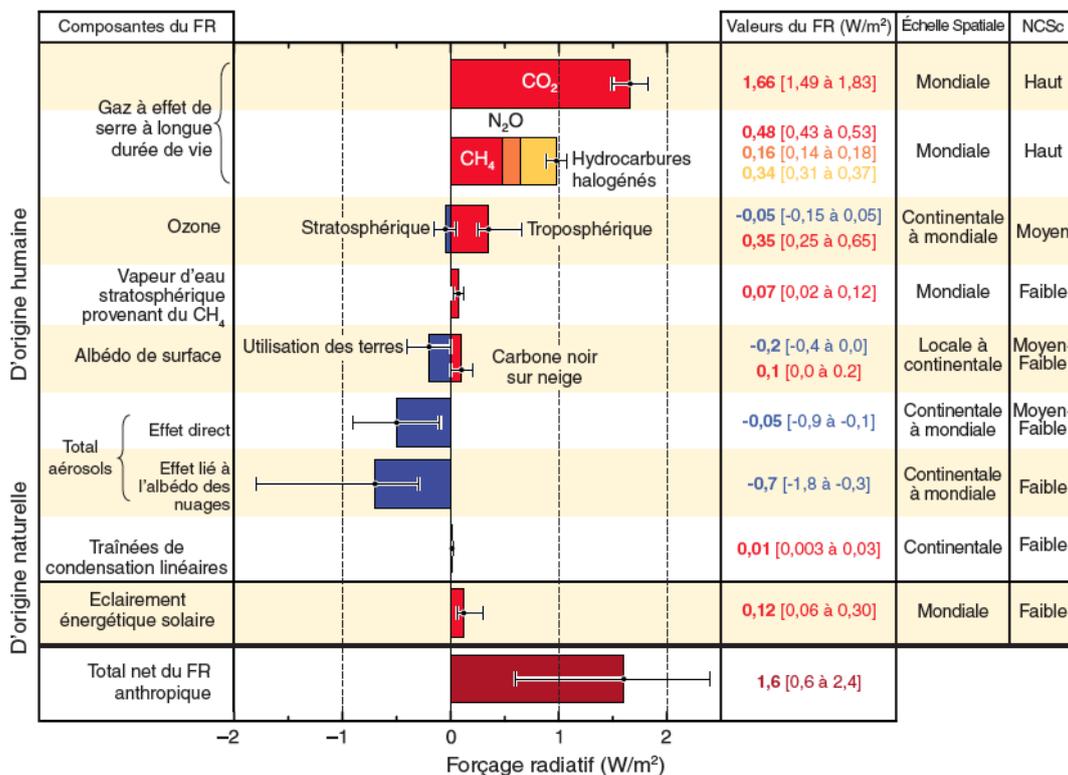


Figure 1.2: Composantes du forçage radiatif - Forçage radiatif moyen à l'échelle du globe (FR) en 2005 (valeurs les plus probables et intervalles d'incertitude de 5 à 95%) par rapport à 1750 pour le CO₂, le CH₄, le N₂O et d'autres agents et mécanismes importants, ainsi que l'étendue géographique type (échelle spatiale) du forçage et le niveau de compréhension scientifique (NCS). Les aérosols émis lors des éruptions volcaniques explosives sont un facteur de refroidissement épisodique additionnel pendant les quelques années qui suivent une éruption. La fourchette correspondant aux trainées de condensation linéaires ne tient pas compte des autres effets éventuels de l'aviation sur la nébulosité. [GIEC, 2007]

1.2 Pourquoi s'intéresser à l'Océan Indien ?

1.2.1 Introduction

Les travaux réalisés dans le cadre de cette thèse se sont focalisés sur la zone de l'Océan Indien. Une question légitime qu'un lecteur attentif pourrait se poser est : mais pourquoi donc s'intéresser à l'Océan Indien ? Le contexte de changement climatique évoqué plus haut s'inscrit dans des spécificités régionales qui contribuent aux évolutions observées à l'échelle globale. La zone de l'Océan Indien est spécifique par bien des aspects.

1.2.2 Du manque de mesures au sol

La répartition géographique des sites de mesure des réseaux GAW (Global Atmospheric Watch) (Figure 1.3) et NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change) (Figure 1.4) montre le manque de mesures au sol dans l'hémisphère sud. Ce peu de mesures au sol implique que seuls des instruments à large couverture - tels MODIS (MODerate resolution Imaging Spectroradiometer - Section 4.3.1) à bord des plateformes Terra et Aqua et le lidar CALIOP (Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization) à bord de la plateforme CALIPSO (Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation) - permettent d'étudier cette région. Cependant, l'effet des aérosols (Section 1.4.3) et des espèces polluantes sur le climat dépend fortement de leurs propriétés optiques (pour les aérosols) et de leur distribution spatiale, et ces paramètres ne peuvent être déduits aisément d'instrument spatiaux (lorsque la concentration en espèces polluantes est assez faible par exemple). Les mesures au sol peuvent offrir la possibilité de mesurer simultanément propriétés physiques et structure verticale des couches de polluants avec des résolutions temporelle et verticale élevées, et sont complémentaires des observations satellite.

Ce faible nombre de points de mesure au sol dans l'hémisphère sud a plusieurs causes : la première, évidente, est que 71% des terres émergées sont situées dans l'hémisphère nord, ce qui limite les possibilités géographiques d'installation de station d'observation dans l'hémisphère sud ; la seconde vient du fait que les pays dit "riches" - ou "développés" - sont concentrés dans l'hémisphère nord, ce qui limite les possibilités financières de création de station d'observation dans l'hémisphère sud. C'est d'ailleurs ce manque de points de mesure atmosphérique au sol qui a justifié la fondation du réseau SHADOZ (Southern Hemisphere ADditional OZonesondes) qui se consacre à l'acquisition de profils d'ozone (et de température, vent, humidité) par radiosondages dans l'hémisphère sud (Figure 1.5). La création de l'Observatoire de Physique de l'Atmosphère de la Réunion (OPAR), dont la station d'altitude du Maïdo (2200m) entrera en fonction courant

1.2 Pourquoi s'intéresser à l'Océan Indien ?

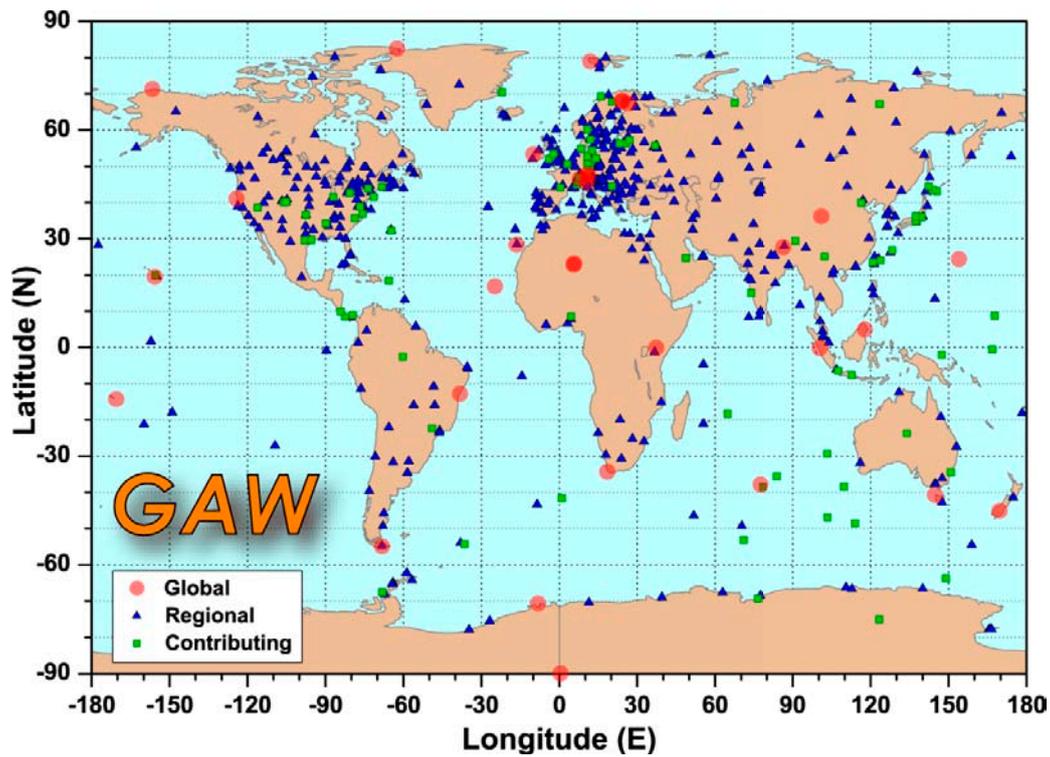


Figure 1.3: Carte des sites du réseau GAW - Source : <http://www.wmo.int/>

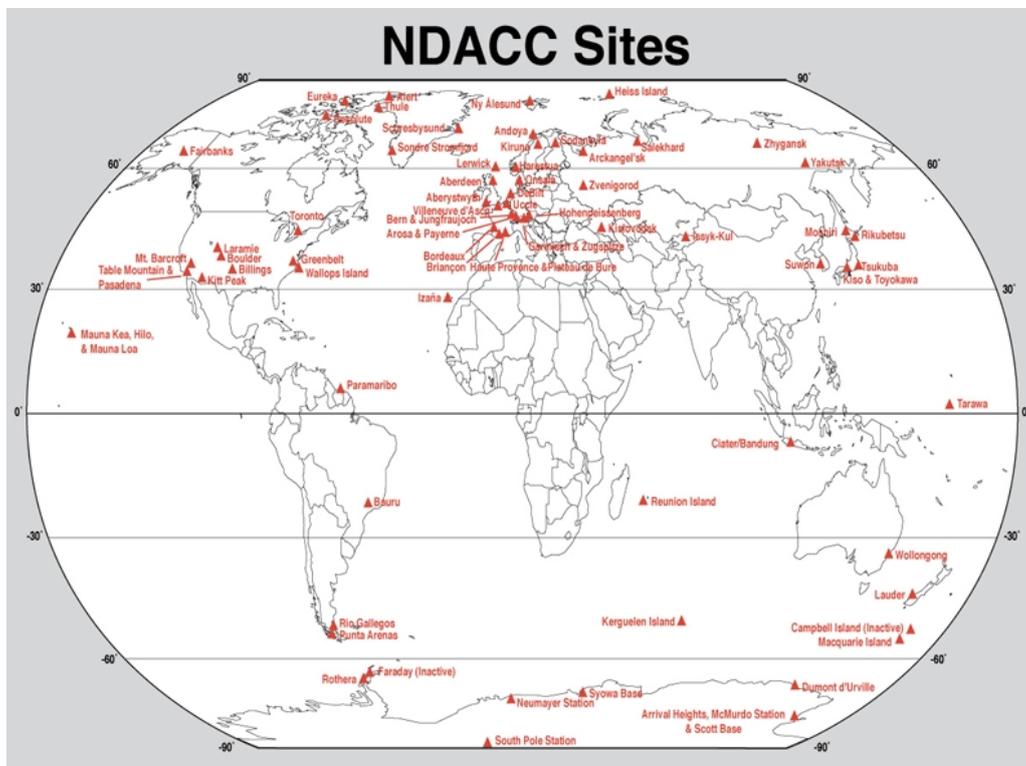


Figure 1.4: Carte des sites du réseau NDACC - Source : <http://www.ndsc.ncep.noaa.gov/>

1. INTRODUCTION GÉNÉRALE

2012, s'inscrit également dans cet objectif de pallier le manque de mesures hautement résolues verticalement et temporellement dans la zone Océan Indien.

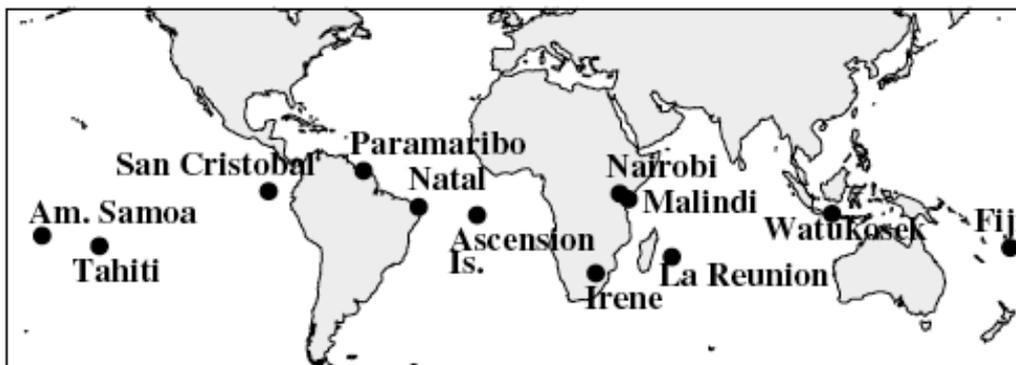


Figure 1.5: Carte des sites du réseau SHADOZ - Source : SHADOZ newsletter n° 1 - <http://tropo.gsfc.nasa.gov/shadoz/index/archive/nletter/>

1.2.3 De l'importance de la quantité de polluants émise

L'Océan Indien se trouve entouré de régions caractérisées par une contribution importante à la quantité de polluant émise annuellement sur l'ensemble du globe. L'Asie, par exemple, émettait $\approx 31\%$ du monoxyde de carbone (CO - cf. Section 1.4.1.1 pour de plus amples renseignements sur ce gaz) mondial et $\approx 33\%$ du carbone suie (cf. Section 1.4.3) mondial en 1995 [Michel, 2005]; l'Afrique Australe et l'Amérique Latine (il sera indiqué à la section suivante l'importance des émissions d'Amérique Latine sur la charge en polluants dans l'Océan Indien) représentaient $\approx 16\%$ et $\approx 9\%$ des émissions globales de carbone en 1997, respectivement [Van der Werf et al., 2006].

Ces régions sont de plus en plus en pleine mutation, mutation causée par un développement économique et un accroissement démographique intenses. Ainsi, la Chine, l'Inde et l'Asie du sud-est ont vu leurs émissions annuelles de CO augmenter de $\approx 60\%$, $\approx 34\%$ et $\approx 70\%$ entre 1980 et 2007, respectivement [Ohara et al., 2007]; l'Afrique Australe et l'Amérique Latine ont, quant à elles, vu leurs émissions annuelles de carbone augmenter de $\approx 22\%$ et $\approx 63\%$ entre 1997 et 2004, respectivement [Van der Werf et al., 2006]. Tout en gardant en tête les incertitudes quant à l'impact que pourrait avoir d'éventuelles politiques de régulation des émissions de polluants, il semble raisonnable de penser que ces augmentations d'émissions d'espèces carbonées dans l'atmosphère devraient perdurer avec l'industrialisation grandissante de ces régions [GIEC, 2007].

1.2.4 Des feux de biomasse

Cette remarquable importance des émissions d'espèces polluantes par les régions de l'hémisphère sud s'explique également par un autre phénomène : la saison des feux australe ; chaque année, de Juillet à Octobre, l'hémisphère sud s' "embrase" sous l'effet des feux de biomasse [Marenco *et al.*, 1990 ; Cooke *et al.*, 1996 ; Generoso *et al.*, 2003 ; Edwards *et al.*, 2006]. La Figure 1.6 montre la localisation des foyers d'incendie détectés au cours de l'année 2010 par MODIS (MODerate resolution Imaging Spectroradiometer - Section 4.3.1) à bord des plateformes Terra et Aqua.

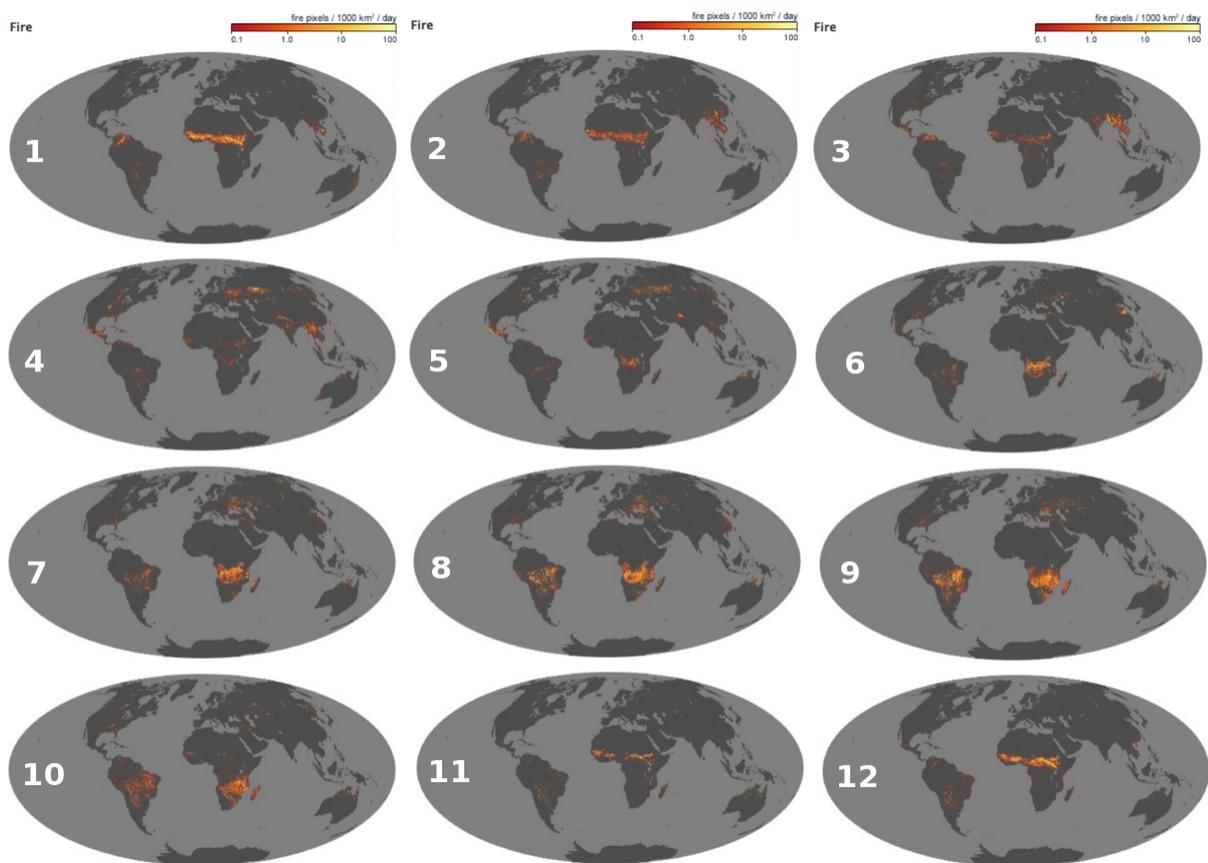


Figure 1.6: Localisation des foyers d'incendie au cours de l'année 2010 - Données MODIS (MODerate resolution Imaging Spectroradiometer - Section 4.3.1) - Source : <http://earthobservatory.nasa.gov/GlobalMaps/>

En Afrique, les feux de biomasse prennent place au sud du désert du Sahara et dans la forêt tropicale juste au nord de l'équateur de Décembre à Avril. La localisation des feux descend vers le sud graduellement au cours de l'année avec la saison sèche. Les feux de biomasse en Afrique Australe débutent vers Mai dans la partie ouest du continent, aux alentours de l'Angola et dans le sud de la République Démocratique du Congo (RDC), et se déplacent ensuite vers le sud-est

1. INTRODUCTION GÉNÉRALE

jusqu'à atteindre la côte. En Septembre, les feux s'étendent à toute l'Afrique Australe et sont particulièrement intenses en Angola, RDC, Zambie et au Mozambique. On estime que 90% des feux se produisant en Afrique sont des feux de savane [Delmas *et al.*, 1999].

En Amérique Latine, les feux se produisent principalement de Juin à Octobre, le long de la bordure sud de la forêt amazonienne, dans la savane tropicale de la région brésilienne du "cerado", ainsi que sur la côte est du Brésil, en Bolivie, au Paraguay et dans le nord de l'Argentine [Tansey *et al.*, 2004].

Le sud-est asiatique, à cheval sur l'équateur, est le siège d'une intense activité de feux de biomasse de Mars à Mai au nord de l'équateur (Chine, Inde, Thaïlande, Malaisie) [Jaffe *et al.*, 1999] et de Juillet à Septembre au sud de l'équateur (Indonésie) [Liang *et al.*, 2004].

Les feux de biomasse en Australie ont fréquemment lieu le long des côtes nord et est de Septembre à Janvier.

Les feux de biomasse sont la combustion de végétaux vivants ou morts. Cela inclut les feux déclenchés par l'Homme pour le nettoyage des sols ou leur utilisation (culture sur brûlis...) ainsi que ceux déclenchés naturellement (par les éclairs par exemple). On estime que les humains sont responsables de 90% des feux de biomasse. L'effet immédiat de ces feux est la production et l'émission de gaz et de particules dans l'atmosphère issus de la combustion de la biomasse. La combustion instantanée de la végétation produit du CO₂, du CO, des hydrocarbures non-méthane, de l'acide nitrique (HNO₃), du chlorure de méthyle (CH₃Cl) et diverses particules. Sont émis également des gaz précurseurs d'ozone (O₃), c'est à dire participant à la formation d'ozone au cours de leur transport. La signature de ces émissions d'ozone a été étudiée notamment à la Réunion [Diab *et al.*, 2004; Senten *et al.*, 2008; Clain *et al.*, 2009, 2010] (Section 1.4.2). Au cours de la combustion des forêts, le CO₂, fixé depuis plusieurs décennies voire plusieurs siècles, se dégage tout à coup dans l'atmosphère en quelques heures. La combustion des forêts détruit également un important puits de CO₂. Par conséquent, la combustion a des effets à court terme et à long terme sur le bilan mondial de CO₂ [Andreae, 1991]. Si la végétation brûlée ne se régénère pas, le CO₂ émis reste dans l'atmosphère. Si l'écosystème brûlé se régénère complètement, comme par exemple les savanes dans de bonnes conditions, la photosynthèse permet de récupérer le CO₂ de l'atmosphère et de le réincorporer dans une nouvelle végétation. Toutefois, si la régénération est impossible à cause, par exemple, d'un pâturage excessif de l'herbe en croissance, le CO₂ n'est pas réincorporé dans la végétation et/ou les sols.

Les gaz produits ont une importance environnementale. Le CO₂ et le méthane (CH₄), qui sont des gaz à effet de serre (Section 1.4.1), ont une influence sur le climat. Les particules issues de la combustion altèrent le climat et le bilan radiatif de la terre (Section 1.4.3). Les oxydes de

1.3 La dynamique troposphérique de l’Océan Indien

carbone, le méthane, les hydrocarbures non-méthanés et l’acide nitrique forment tous des gaz chimiquement actifs qui contribuent au changement climatique [Andreae, 1991].

Des mesures ont révélé que, en plus de la production instantanée de gaz présents à l’état de trace et de particules émanant de la combustion de la biomasse, le brûlage faisait également augmenter les émissions biogéniques d’oxyde nitrique (NO) et de protoxyde d’azote (N₂O) provenant du sol. On considère que ces émissions sont liées à la concentration accrue d’ammoniac (NH₃) du sol à la suite du brûlage. L’ammoniac, un composant majeur à base d’azote des cendres brûlées, constitue le substrat de la nitrification, processus microbien considéré comme responsable de la production de NO et de N₂O. L’augmentation des émissions biogéniques de NO et de N₂O par le sol peut être comparable à, voire même dépasser, la production instantanée de ces gaz au cours du brûlage de la biomasse [Lobert *et al.*, 1990].

L’Océan Indien est donc une zone contenant peu de stations de mesure atmosphérique au sol, entourée de régions parmi les plus émettrices de polluants au monde et en grande mutation industrielle et démographique, et soumises à la saisonnalité des feux de biomasse.

Une fois établies ces particularités de la zone Océan Indien, il est nécessaire de se pencher sur la question de savoir comment l’ensemble des polluants émis se dispersent et sont transportés. C’est l’objet de la section suivante.

1.3 La dynamique troposphérique de l’Océan Indien

1.3.1 Introduction

Cette section se propose de présenter les bases nécessaires à la compréhension des phénomènes dynamiques qui gouvernent les mouvements de masse d’air dans la troposphère. L’atmosphère peut se structurer en différentes couches délimitées par le gradient vertical de température (Figure 1.7). La première couche rencontrée au niveau du sol est la troposphère (du grec ancien ”tropos” et ”sphaira”, signifiant ”tour” et ”sphère” : c’est la couche en contact avec le sol, elle fait donc le ”tour” du globe). Elle s’étend jusqu’à la tropopause, sa limite supérieure, dont l’altitude varie selon la saison entre 7 et 9 km au-dessus des pôles et entre 15 à 18 km au niveau de l’équateur. Dans cette couche atmosphérique, la température décroît linéairement avec l’altitude en raison de la dissipation du rayonnement infrarouge émis par la surface de la Terre qui est la principale source de chaleur à ces altitudes. Cette couche est notamment caractérisée par un gradient thermique moyen de 6.5 °C/km, une forte concentration en vapeur d’eau (nuages) et une faible concentration en ozone. Il sera également question dans ces travaux de recherche

1. INTRODUCTION GÉNÉRALE

de la couche limite atmosphérique (CLA) (Figure 1.8) : c'est la couche d'air troposphérique en contact avec le sol dont la circulation est influencée par le relief avec un temps de réponse de l'ordre de l'heure [Stull, 1988]. Au dessus de la couche limite (d'épaisseur comprise entre 500 m et 3000 m) se trouve la troposphère libre, non influencée par le sol.

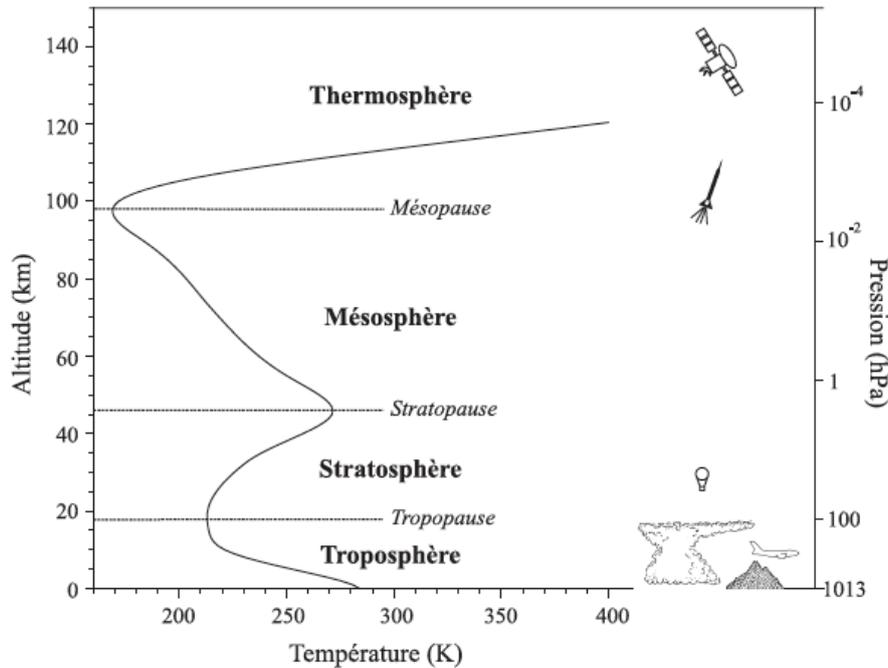


Figure 1.7: Profil de température dans l'atmosphère -

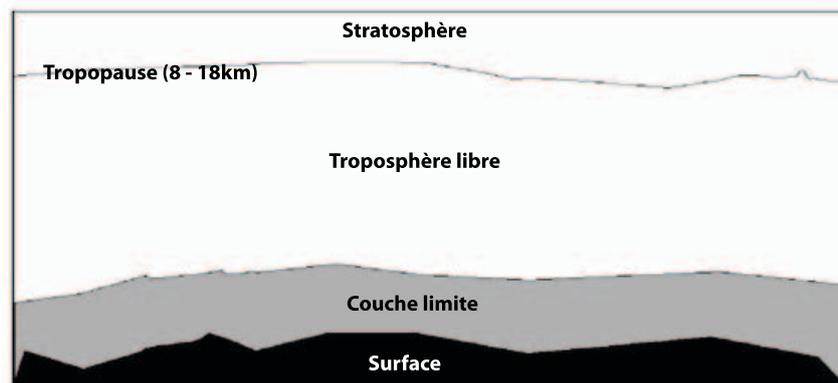


Figure 1.8: Structure verticale de la troposphère -

La tropopause, dont l'altitude peut être définie par l'inversion du gradient de température, limite les échanges entre la troposphère et la stratosphère. Cette dernière s'étend jusqu'à la stratopause à une altitude d'environ 50 km. Cette couche est caractérisée par une augmentation

1.3 La dynamique troposphérique de l'Océan Indien

de la température avec l'altitude, qui est fortement liée à la présence, entre 15 et 30 km, de fortes concentrations d'ozone, principal absorbant de rayonnement UV dans la stratosphère (la fameuse "couche d'ozone" - Section 1.4.2).

1.3.2 La circulation troposphérique générale

La circulation troposphérique générale répond à deux principaux facteurs : l'inégalité de la quantité d'énergie solaire reçue à l'équateur et aux pôles et la force de Coriolis. En effet, l'énergie solaire reçue à l'équateur est supérieure à celle reçue aux pôles, ce qui implique la nécessité de la répartir. Cette répartition de chaleur se fait via les circulations générales océanique et atmosphérique, cette dernière s'effectuant des tropiques vers les pôles et ayant essentiellement lieu dans la troposphère. Il a été mis en évidence l'existence de trois cellules de transport principales : les cellules de Hadley (0-30° de latitude), Ferrel (30-60° de latitude) et polaires (60-90° de latitude), existantes symétriquement dans les hémisphères nord et sud (Figure 1.9).

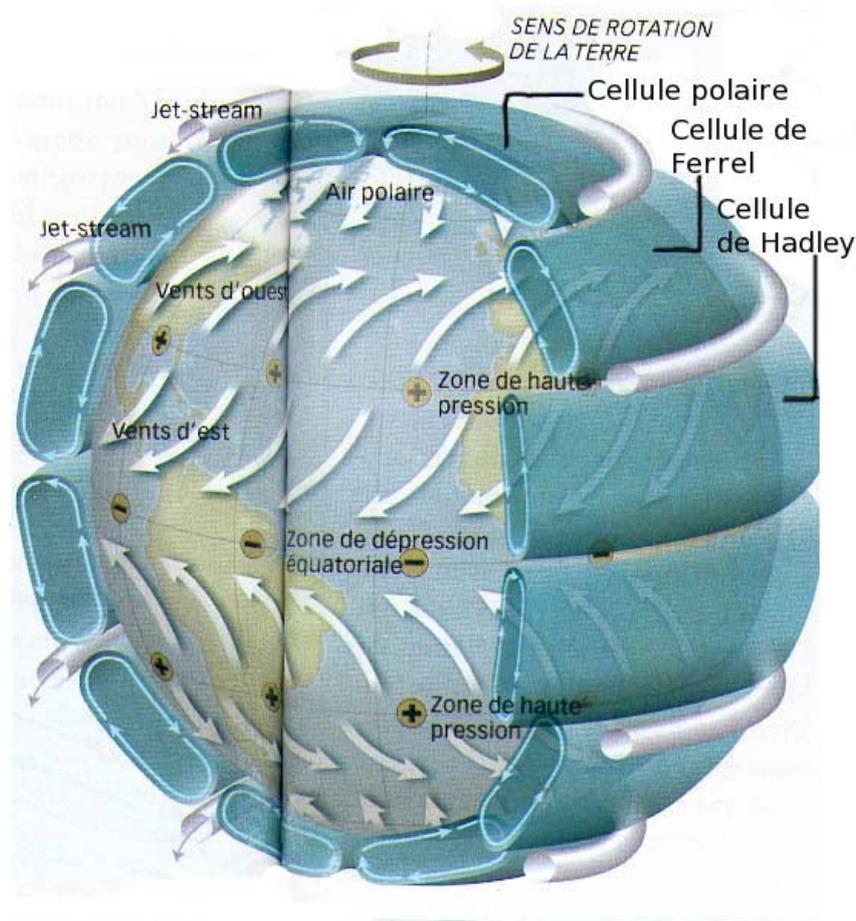


Figure 1.9: Schéma de la circulation troposphérique globale - [Villiers, 2004]

1. INTRODUCTION GÉNÉRALE

La force de Coriolis dévie vers la droite dans l'hémisphère nord et vers la gauche dans l'hémisphère sud les flux d'air dans les trois cellules. Dans chaque hémisphère, les vents de surface ont ainsi des directions caractéristiques : vents d'est sous les tropiques (alizés), vents d'ouest aux moyennes latitudes, et vents d'est dans les régions polaires. Ces flux d'air sont également influencés par l'action thermique des continents, créant des zones alternées de basses et de hautes pressions. À noter également, à 30 et 60° de latitude dans les deux hémisphères, juste sous la tropopause, la présence des courants jets ("jet stream" en anglais) : flux d'air rapide ($\approx 25 \text{ m.s}^{-1}$ en moyenne) d'ouest en est de quelques kilomètres d'épaisseur, de quelques centaines de kilomètres de largeur et de plusieurs milliers de kilomètre de longueur (Figure 1.9).

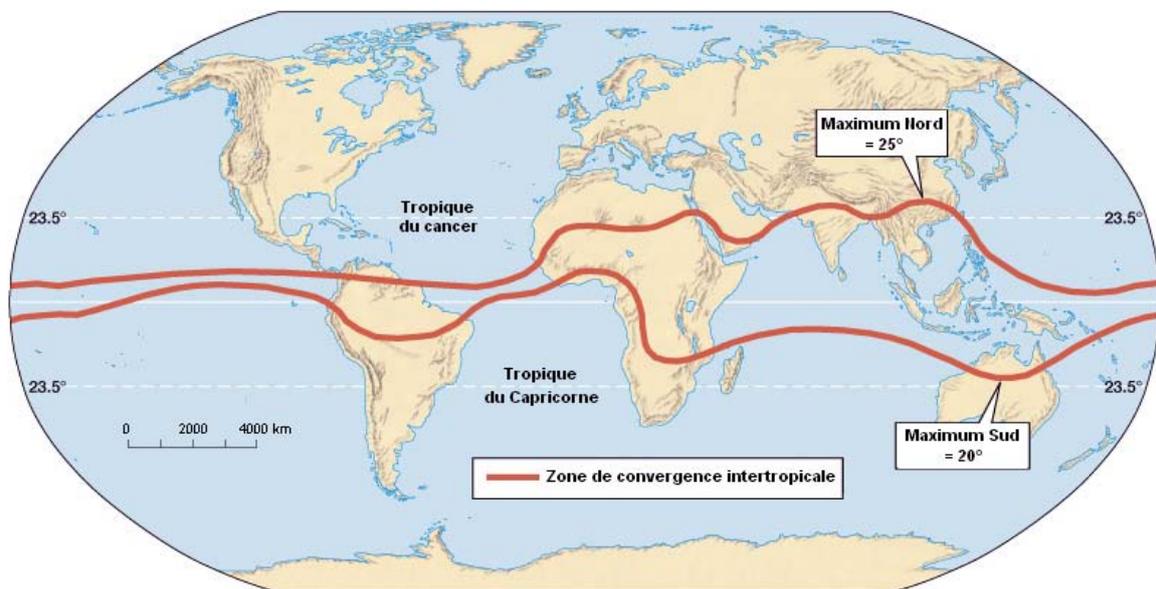


Figure 1.10: Positions extrêmes de la ZCIT - La ZCIT est la plus au nord ($\approx 25^\circ \text{ N}$) en Janvier et le plus au sud ($\approx 20^\circ \text{ S}$) Juillet - Source : adapté de University of Texas, <http://www.utexas.edu/>

La zone de rencontre entre les alizés des deux hémisphères forme la Zone de Convergence Inter-Tropicale (ZCIT ou ITCZ pour "Inter-Tropical Convergence Zone" en anglais) (Figure 1.10). Cette zone est caractérisée par des valeurs particulièrement élevées de température dans la basse troposphère et sur la surface terrestre. Lorsque cette surface est humide (océan et forêts tropicales), l'atmosphère chargée de chaleur et de vapeur d'eau forme d'énormes systèmes convectifs. Ces systèmes marquent la localisation des parties inférieures des cellules de Hadley, et la convergence du mouvement de l'air s'y résout en de fortes ascendances soulevant la tropopause jusqu'à plusieurs kilomètres au dessus de son altitude moyenne globale. La position de la ZCIT, qui suit le mouvement apparent du soleil, varie au cours de l'année. C'est en janvier que la ZCIT atteint sa position la plus méridionale : elle descend alors sur l'Afrique du sud-est, jusque vers 15

1.3 La dynamique troposphérique de l'Océan Indien

à 20° de latitude sud, et reste enfoncée dans l'hémisphère sud sur l'Océan Indien où elle marque la frontière de la mousson d'hiver ; en juillet, au contraire, la ZCIT atteint sa position la plus septentrionale et dessine très haut vers le nord les frontières de la mousson d'été au-dessus de l'Afrique sahélienne et de l'Asie du sud-est ; frontières qui, sur le sous-continent indien, font face à l'Himalaya.

A noter également, l'existence de cellules dites "de Walker", du nom de Gilbert Walker, météorologiste britannique envoyé en Inde en 1924 pour y étudier les moussons, qui fut le premier à établir le lien entre les variations de pression atmosphérique entre le Pacifique ouest et le Pacifique centre et l'intensité de la mousson indienne. Il mit ainsi à jour des cellules longitudinales de circulation troposphérique, principalement localisées dans l'hémisphère sud et gouvernées par les écarts de température entre les côtes est et ouest des océans : les masses d'air ascendantes au niveau des zones plus chaudes de l'océan considéré redescendent au dessus des zones plus froides (Figure 1.11).

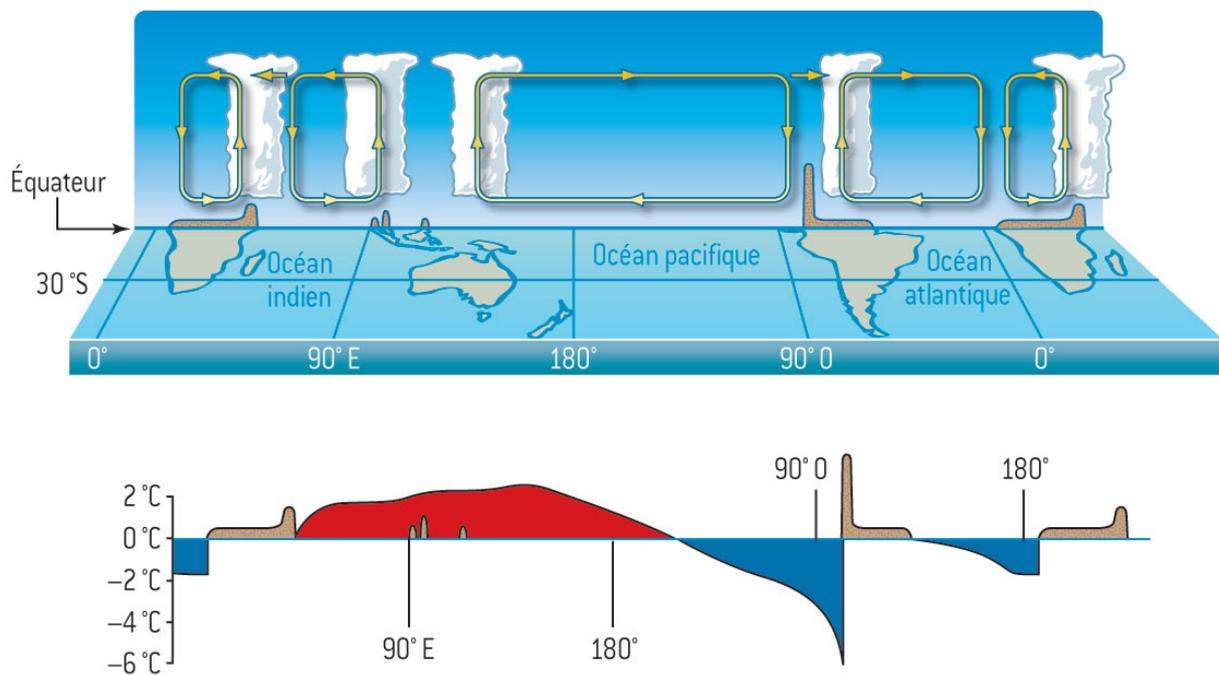


Figure 1.11: Les cellules de Walker et les écarts de températures par rapport à la moyenne océanique - [Delmas et al., 2007]

Les phénomènes de transport au sein de l'atmosphère, et en particulier au sein de la troposphère, ont des temps caractéristiques très différents (Figure 1.12). Les transports zonaux (ou longitudinaux) sont les plus rapides, avec des temps caractéristiques de deux à quatre semaines. Au sein d'un même hémisphère, les transports méridiens (ou latitudinaux) s'effectuent en un ou

1. INTRODUCTION GÉNÉRALE

deux mois, alors qu'une masse d'air mettra ≈ 1 an à passer d'un hémisphère à l'autre. On estime les temps caractéristiques du transport vertical d'une masse d'air du sol au sommet de la couche limite à un jour, du sol à la tropopause à un mois, et du sol à la stratosphère à dix ans. Une masse d'air stratosphérique descendra dans la troposphère en un temps caractéristique de deux ans [Delmas *et al.*, 2007].

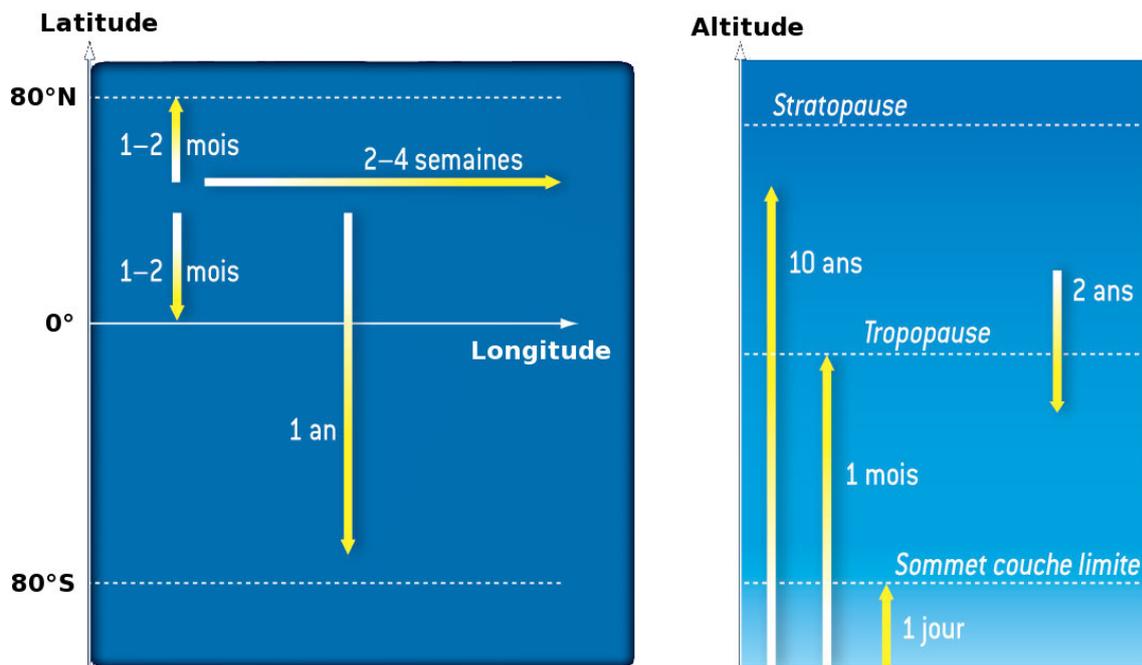


Figure 1.12: Temps caractéristiques du transport des masses d'air - [Delmas *et al.*, 2007]

1.3.3 Zoom sur l'Océan Indien

La troposphère de l'Océan Indien est bien sûr directement influencée par la circulation troposphérique générale. La Figure 1.13 montre schématiquement les voies de transport privilégiées des masses d'air dans l'hémisphère sud en Septembre 2003 à 750 hPa (≈ 2500 m).

La circulation anticyclonique localisée sur l'Afrique Australe est causée par la convergence des cellules de Hadley et Ferrel à $\approx 30^\circ$ Sud (Figure 1.14).

Cette circulation induit les cinq principaux modes de transport des masses d'air au dessus de l'Afrique Australe identifiés par Garstang *et al.*, [1996] : transport direct vers l'est ou l'ouest, transport vers l'est ou l'ouest après une circulation initiale anticyclonique, et recirculation anticyclonique. Cette évacuation des masses d'air vers l'est et l'Océan Indien explique la "rivière de

1.3 La dynamique troposphérique de l'Océan Indien

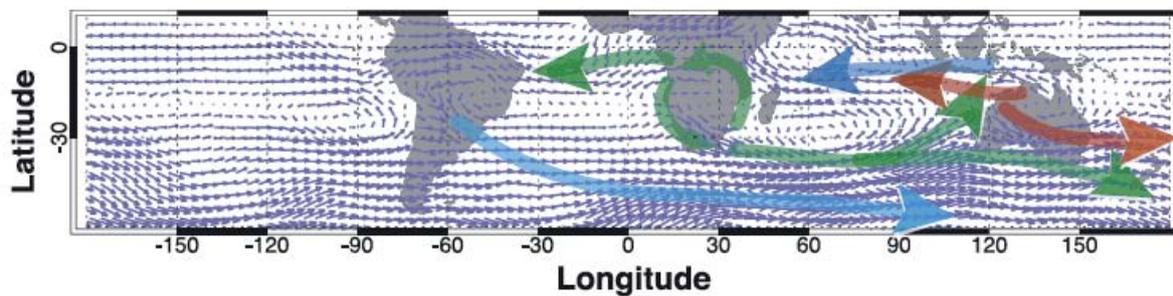


Figure 1.13: Circulation troposphérique dans l'hémisphère sud - Champs de vent moyens du Centre Européen (ECMWF) en Septembre 2005 à 750hPa ($\approx 2550\text{m}$). Les principales voies de transport des masses d'air sont montrées par les flèches [Edwards et al., 2006]

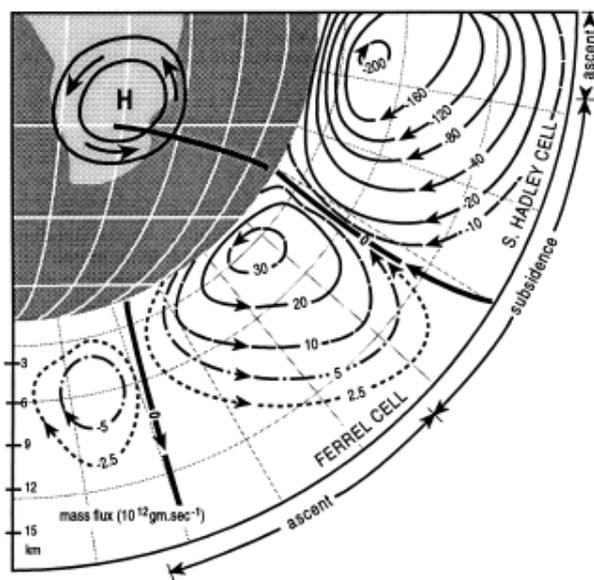


Figure 1.14: Circulation méridionale moyenne dans l'hémisphère sud de Juin à Août - [Tyson and Gatebe, 2001]

1. INTRODUCTION GÉNÉRALE

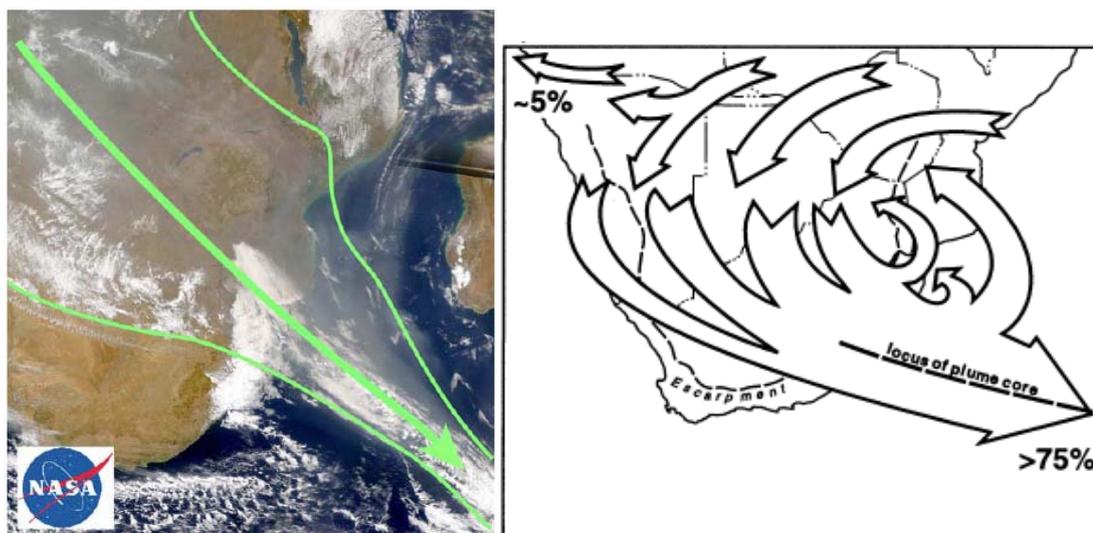


Figure 1.15: La "rivière de fumée" s'échappant par le sud-est de l'Afrique Australe - (à gauche) La "rivière de fumée" vue par satellite le 4 Septembre 2000 dans le sud du Canal de Mozambique ; (à droite) Schéma de la circulation annuelle au dessus de l'Afrique du Sud [Tyson and Gatebe, 2001]. Les pourcentages indiquent la proportion de polluants émise en Afrique Australe et évacuée.

fumée" identifiée pendant les campagnes SAFARI (Southern AFricAn Regional science Initiative) 1992 et 2000 [Tyson and Gatebe, 2001 ; Annegarn et al., 2002 ; Swap et al., 2003] (Figure 1.15) : entre Août et Octobre, les polluants émis en Afrique Australe sont exportés vers l'Océan Indien par le sud-est de l'Afrique du Sud. Ces polluants peuvent traverser l'Océan Indien et atteindre l'Australie [Kent et al., 1998 ; Rosen et al., 2000 ; Pak et al., 2003].

La voie de transport privilégiée de l'Amérique Latine vers le sud de l'Océan Indien entre 40 et 60 ° S est due à la force de Coriolis déviant les courants de basse altitude de la cellule de Ferrel vers la gauche (cf. section précédente).

La flèche bleue indiquée sur la Figure 1.13 partant de l'Asie du sud-est vers le nord de Madagascar est sujette à caution : à ma connaissance, aucune étude n'a montré le transport de masses d'air entre ces deux régions à une altitude inférieure à 3000m pendant l'hiver austral. De plus, ce transport de masses d'air depuis le sud-est asiatique vers l'hémisphère sud en basse troposphère pendant le mois de Septembre est surprenant : la ZCIT se trouve approximativement située au niveau de l'équateur dans l'Océan Indien à cette époque de l'année, empêchant le passage de masses d'air dans les basses couches (convection profonde) [De Laat et al., 2001]. En revanche, dans le cadre de INDOEX (INDian Ocean EXperiment), le transport de masses d'air en basse troposphère venant du sud-est asiatique vers la partie sud de l'Océan Indien a bien été montré pendant l'été austral, jusqu'à $\approx 10^\circ$ Sud [Rajeev et al., 2000 ; Minvielle et al., 2004].

1.4 Polluants transportés dans la troposphère de l'Océan Indien

La question du transport de polluants depuis l'Asie du sud-est vers le sud de l'Océan Indien en hiver austral sera traitée au Chapitre 5.

La circulation générale atmosphérique répond donc essentiellement à la différence d'énergie solaire reçue à l'équateur et aux pôles, et à la force de Coriolis. Dans la troposphère, elle s'organise en cellules symétriquement distribuées de part et d'autre de l'équateur, ayant pour principale fonction de répartir autour du globe l'énergie reçue.

La troposphère de l'Océan Indien est parcourue de courants de transport de masses d'air provenant d'Afrique Australe, d'Amérique Latine et d'Asie du sud-est. Le manque de mesures hautement résolues verticalement dans la zone a entraîné, notamment, la conduite des campagnes INDOEX (en 1992 et 1999), principalement focalisée sur la zone nord de l'Océan Indien. Le sud de l'Océan Indien est une région relativement peu documentée, et la répartition verticale des masses d'air, ainsi que leur provenance relative, restent à être étudiées.

Les sections précédentes ont permis de comprendre l'intérêt scientifique de l'étude de la zone Océan Indien : elle est le théâtre de courants troposphériques complexes susceptibles de transporter d'importantes quantités de polluants émises par les régions de l'hémisphère sud. Les polluants anthropiques sont essentiellement issus des processus de combustion se produisant lors des feux de biomasse et la combustion de fuels fossiles ; les polluants émis naturellement sont les poussières désertiques et les petites particules issues des embruns au dessus de l'océan. La section suivante se propose de détailler certaines des propriétés des polluants sur lesquels cette thèse s'est focalisée.

1.4 Polluants transportés dans la troposphère de l'Océan Indien

1.4.1 Introduction

L'air sec de l'atmosphère terrestre est composé de 78.08% d'azote, 20.95% d'oxygène, 0.93% d'argon, 0.039% de CO₂ et des traces d'autres gaz (appelés d'ailleurs "gaz traces"). On appelle "polluant atmosphérique" les gaz ou particules dont les degrés de concentration et les durées de présence sont suffisants pour produire un effet toxique sur l'Homme et/ou sur l'environnement. On compte aujourd'hui des dizaines de milliers de molécules différentes, polluants avérés ou suspectés qui, pour beaucoup, agissent en synergie entre eux et avec d'autres paramètres (ultraviolets solaires, hygrométrie, acidité, oxydation, etc.). Les travaux réalisés dans le cadre de cette thèse n'ont bien sûr pas pu concerner l'ensemble des polluants que l'on peut rencontrer

1. INTRODUCTION GÉNÉRALE

au détour d'une promenade dans la troposphère de l'Océan Indien ; ils se sont focalisés sur le CO, l'ozone et les aérosols, le premier étant très toxique pour les mammifères, le deuxième étant un gaz à effet de serre majeur, et les derniers englobant une myriade de petites particules en suspension dans l'air dont l'impact sur le climat global est largement reconnu, bien que mal estimé. De plus, à l'inverse du CH₄ ou du CO₂ - qui possèdent des durées de vie troposphériques suffisamment longues pour leur conférer une répartition globale assez homogène - le CO, l'ozone et les aérosols présentent des distributions régionales hétérogènes, de part leurs durées de vie troposphériques relativement courtes : moins de deux mois pour CO, quelques semaines pour l'ozone, moins d'une semaine pour les aérosols. Outre leurs propriétés chimiques et leurs impacts climatiques, ces espèces sont donc d'excellents traceurs pour le suivi des mouvements des masses d'air troposphériques dans le cadre d'une analyse régionale.

L'effet de serre permet à la température moyenne terrestre de se maintenir à $\approx 15^\circ\text{C}$ (sans effet de serre, elle serait de -18°C). Voici son principe : une partie du rayonnement solaire infrarouge reçu par la Terre est réémise ; de cette partie réémise, une fraction est absorbée par les molécules atmosphériques : ce sont les gaz à effet de serre. L'absorption de la radiation infrarouge par ces molécules entraîne un réchauffement de l'atmosphère, et l'émission de cette chaleur dans toutes les directions constitue un apport de chaleur supplémentaire à la surface.

Cette section se propose de présenter les sources et puits, les caractéristiques physico-chimiques et l'impact que peuvent avoir le CO, l'ozone, et les aérosols sur le climat.

1.4.2 Gaz traces

1.4.2.1 CO

Le CO est un polluant atmosphérique produit par l'oxydation du CH₄ et d'autres hydrocarbures biogéniques, par la combustion de fuel fossile, par l'utilisation de biofuel et par les feux de biomasse [Galanter *et al.*, 2000 ; GIEC, 2007], ces deux derniers étant les sources majeures dans les zones tropicales (Figure 1.16).

La réaction d'oxydation avec le radical OH est la principale cause de la disparition du CO [Logan *et al.*, 1981 ; Kanakidou and Crutzen, 1999], particulièrement dans la basse troposphère tropicales à cause de l'abondance de vapeur d'eau et de la forte irradiation solaire [Ridley *et al.*, 1992]. L'oxydation d'une molécule de CO conduit également à la formation d'une molécule d'ozone. Le CO est donc un des principaux gaz précurseurs de l'ozone photochimique dans la troposphère [Daniel and Solomon, 1998]. Cette propriété lui confère une grande importance dans le phénomène de réchauffement climatique : il contribue à la formation d'un des principaux gaz à effet de serre (l'ozone).

1.4 Polluants transportés dans la troposphère de l'Océan Indien

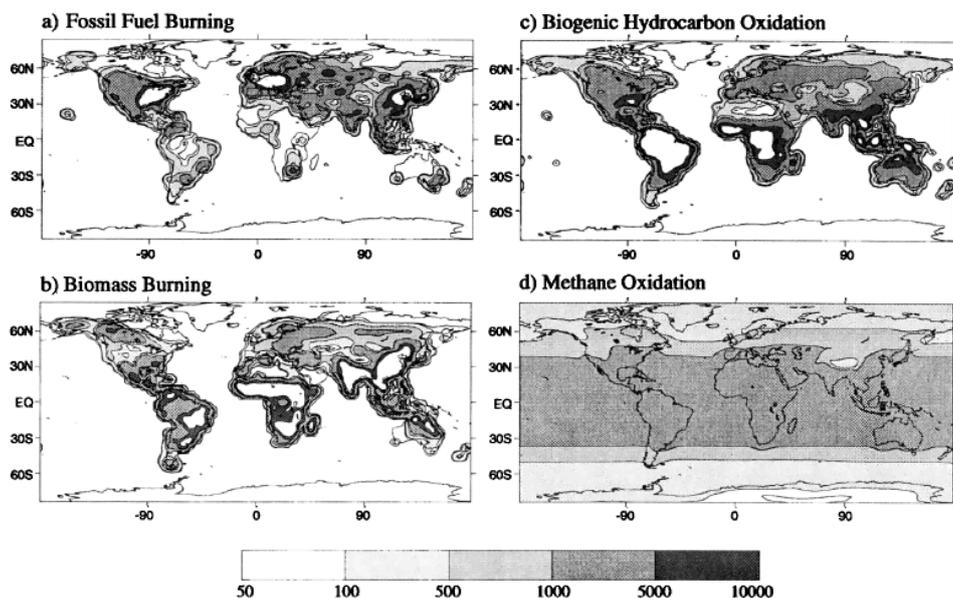


Figure 1.16: Répartition globale des sources de CO - Sources de CO modélisés en $[\text{kg km}^{-2} \text{an}^{-1}]$ (le blanc à l'intérieur des zones noires indique des valeurs supérieures à $10\,000 \text{ kg km}^{-2} \text{an}^{-1}$). (a) Emissions annuelles par les fuels fossiles. (b) Emissions annuelles par les feux de biomasse. (c) Emissions annuelles par oxydation des hydrocarbonés biogéniques. (d) Emissions annuelles par oxydation du CH_4 [Holloway et al., 1999].

Monoxyde de carbone (CO)	Tg (CO).an ⁻¹
Sources anthropiques	
Combustion de biomasse	1000 ± 600
Combustibles fossiles	640 ± 200
Naturelles	
Océan	100 ± 90
Végétation	75 ± 25
Émission des sols	17 ± 15
Mixtes	
Oxydation du CH_4	600 ± 300
Oxydation des COV	900 ± 500
Production Totale	3300 ± 1700
Puits	
Oxydation par OH	2000 ± 750
Dépôt au sol	390 ± 140
Flux dans la stratosphère	110 ± 30
Perte totale	2500 ± 750

Table 1.1: Contributions des sources d'émission de CO - Adapté de [Seinfeld and Pandis, 2006].

1. INTRODUCTION GÉNÉRALE

Le Tableau 1.1 donne les contributions de chaque source à la quantité de CO émise annuellement à l'échelle globale, ainsi que les pertes.

Outre ses propriétés chimiques, le CO est un traceur intéressant pour l'étude du transport atmosphérique : ayant une durée de vie de plusieurs semaines à quelques mois, c'est un indicateur efficace pour comprendre comment la distribution à grande échelle des polluants atmosphériques est influencée par le transport des panaches issus des feux de biomasse et de l'utilisation des fuels fossiles. La Figure 1.17 donne la répartition latitudinale de la colonne totale de CO au cours des années 2000 à 2004 vue par l'instrument MOPITT (Measurement Of Pollution In The Troposphere) à bord de la plateforme Terra.

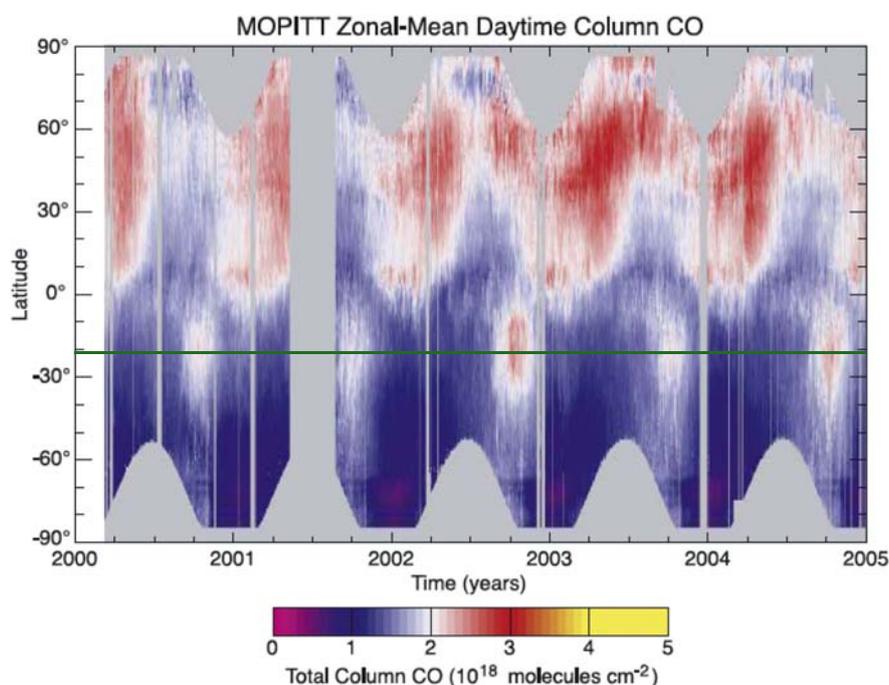


Figure 1.17: Répartition latitudinale de la colonne totale de CO au cours des années 2000 à 2004 par MOPITT - [Bowman., 2006]

On peut remarquer que les concentrations en CO sont plus élevées dans l'hémisphère nord que dans l'hémisphère sud ; cela est très probablement dû à l'industrialisation et au nombre d'habitants plus important au nord qu'au sud. Les saisons des feux australe et boréale sont clairement visibles pendant les saisons sèches correspondantes. En particulier, dans l'hémisphère sud, un pic de concentration est observé de Juillet à Octobre entre 10 et 40 ° Sud. La latitude de la Réunion (21 ° S) est marquée par la ligne verte sur la Figure 1.17 ; elle est localisée sur le pic de concentration évoqué, et la charge en CO à sa verticale se trouve donc influencée par la saisonnalité des émissions de CO, elle-même principalement gouvernée par les feux de biomasse.

1.4 Polluants transportés dans la troposphère de l’Océan Indien

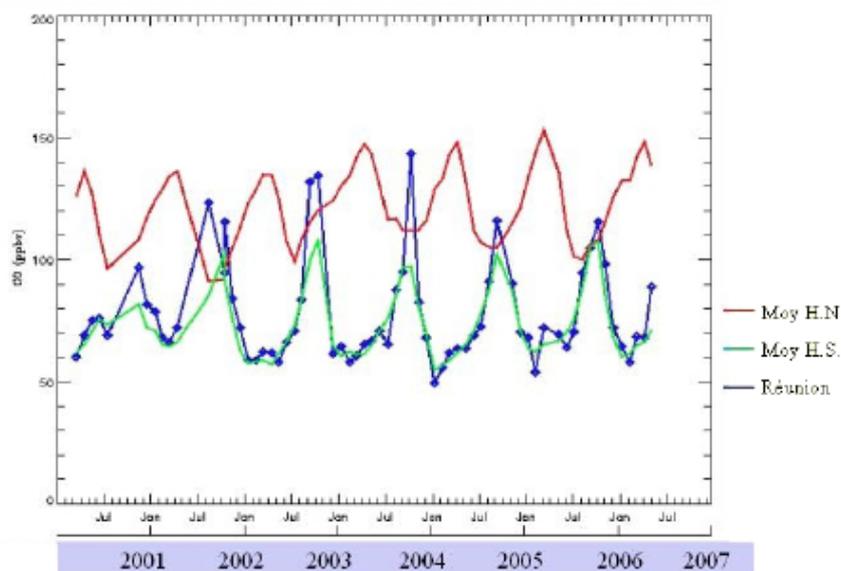


Figure 1.18: Variation du CO à 700 hPa (données MOPITT de 2000 à 2006) - Sont indiquées les variations hémisphériques et à la Réunion [Attié J.L., 2007]

A la Réunion, l’influence des feux de biomasse sur la composition de la troposphère tropicale et les schémas de transport associés ont été principalement déterminés par l’analyse de mesures d’ozone [Randriambelo *et al.*, 2000 ; Clain *et al.*, 2009]. Il est cependant délicat dans le cas de l’ozone de distinguer les contributions issues de sources anthropiques de celles provenant d’échanges stratosphère-troposphère, ceux-ci pouvant être induits dans cette région par le courant-jet subtropical [Baray *et al.*, 1998] et par la convection tropicale [Zachariasse *et al.*, 2000 ; Leclair de Bellevue *et al.*, 2006]. Le CO étant principalement produit dans la basse troposphère, l’étude de sa distribution dans l’Océan Indien subtropical permet d’améliorer la compréhension des phénomènes de transport de polluants. Bremer *et al.* [2004] ont montré que, à l’île de la Réunion, la colonne totale d’ozone est plus élevée en Septembre-Octobre que le reste de l’année. Ce maximum est en phase avec la saison des feux se produisant dans le sud de l’Afrique et à Madagascar : de fortes concentrations de précurseurs d’ozone sont émises par ces feux, transportées en moyenne troposphère par la convection profonde et advectées vers l’Océan Indien par les vents d’ouest. La concentration de CO mesurée par MOPITT à la Réunion montre également cette signature de la saison des feux (Figure 1.18). Senten *et al.* [2008] et Vigouroux *et al.* [2009] ont détecté par spectrométrie infrarouge à Transformée de Fourier (FTIR) à la Réunion la variation saisonnière de CO et de formaldéhyde (HCHO) durant la saison des feux australe, ainsi que l’impact sur la composition atmosphérique à la Réunion d’événements de feux de biomasse survenant en Afrique et à Madagascar.

1. INTRODUCTION GÉNÉRALE

1.4.2.2 Ozone

La grande majorité de l’ozone atmosphérique ($\approx 90\%$) est située dans la stratosphère où il joue un rôle crucial en absorbant le rayonnement ultraviolet émis par le soleil. L’absorption par la couche d’ozone, dans la stratosphère, est suffisamment efficace pour filtrer le rayonnement solaire de longueur d’onde inférieure à 290 nm. Cette radiation est nocive pour la vie, d’où l’importance de la fameuse ”couche d’ozone”, située dans la stratosphère, qui nous en protège. La Figure 1.19 donne la distribution verticale moyenne de l’ozone entre 0 et 35 km : la concentration d’ozone est faible dans la troposphère, augmente brusquement à partir de la tropopause pour atteindre un maximum dans la basse stratosphère (la ”couche d’ozone”), situé entre 15 et 20 km au niveau du pôle d’hiver, et entre 25 et 30 km à l’équateur.

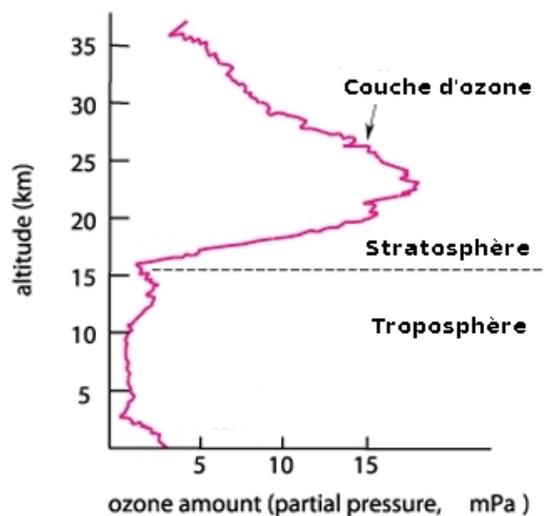


Figure 1.19: Profil global moyen d’ozone - Source : adapté de [WMO, 1999]

Alors que l’ozone stratosphérique est bénéfique, l’ozone troposphérique est considéré comme un polluant nocif : il peut causer des irritations oculaires et respiratoires chez l’Homme [World Health Organization (WHO), 1987] et est un des gaz à effet de serre majeurs. Dans la troposphère, la principale cause de formation de l’ozone est la photolyse du dioxyde d’azote (NO_2) par le rayonnement solaire. On estime qu’environ 80% de l’ozone de la troposphère résulte d’une formation photochimique dans les basses couches, contre 20% ayant une origine stratosphérique (échanges stratosphère-troposphère par déformation de la tropopause) [Collins et al., 2000]. Dans cette formation photochimique, on distingue la formation à l’échelle locale, qui est due à la production du radical peroxyde (RO_2 - espèce chimique possédant un électron célibataire) par oxydation des hydrocarbures (dans les panaches de pollution des villes par exemple), d’une formation à grande échelle plutôt causée par l’oxydation du CH_4 et du CO . Ceci est lié au

1.4 Polluants transportés dans la troposphère de l'Océan Indien

fait que les vitesses d'oxydation et donc les durées de vie des hydrocarbures dans l'atmosphère (quelques heures à quelques jours) sont beaucoup plus faibles que celle du CO (quelques mois) ou du CH₄ (10 ans).

La Figure 1.20 montre la répartition géographique de l'ozone troposphérique mesuré par l'instrument GOME (Global Ozone Monitoring Experiment) à bord de la plateforme européenne ERS-2 en 1997. Outre les régions très peuplées qui présentent de fortes concentrations d'ozone, la distribution horizontale de l'ozone suit les saisons des feux dans chacun des hémisphères. En particulier, on peut remarquer des pics de concentration d'ozone dans l'Atlantique sud et dans le sud de l'Océan Indien de Juin à Novembre, et surtout de Septembre à Novembre. La présence de précurseurs d'ozone - tel le CO (cf. Section précédente) - dans les panaches émis par les feux de biomasse explique cette augmentation de l'ozone troposphérique à cette période dans l'hémisphère sud.

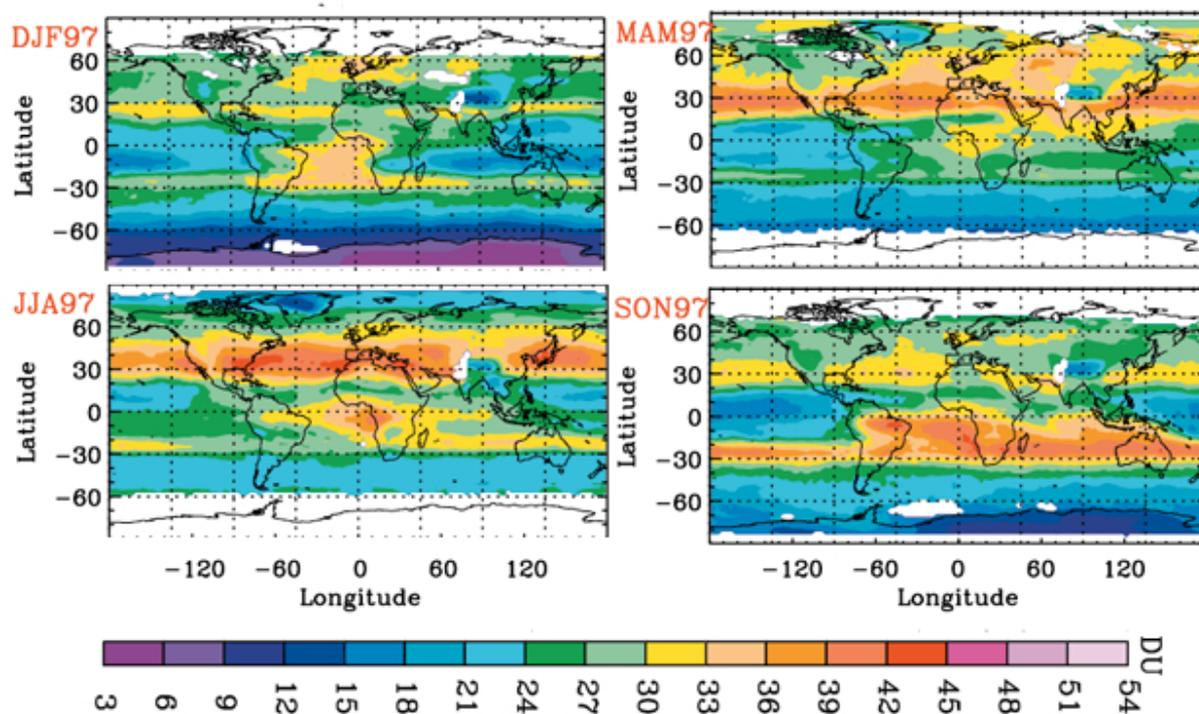


Figure 1.20: Evolution de la concentration globale d'ozone troposphérique de Décembre 1996 à Novembre 1997 mesuré par GOME - Source : adapté de [Liu *et al.*, 2006]

On constate également que la Réunion se situe sur la voie de passage de ces masses d'air chargée en ozone pendant la saison des feux australe. Des études récentes ont montré le rôle des feux de biomasse [Diab *et al.*, 2004, Clain *et al.*, 2009] et des échanges stratosphère-troposphère [Clain *et al.*, 2010] dans la distribution de l'ozone sous les tropiques et à la Réunion, où la

1. INTRODUCTION GÉNÉRALE

saisonnalité des feux de biomasse est visible sur les mesures d’ozone troposphériques (Figure 1.21).

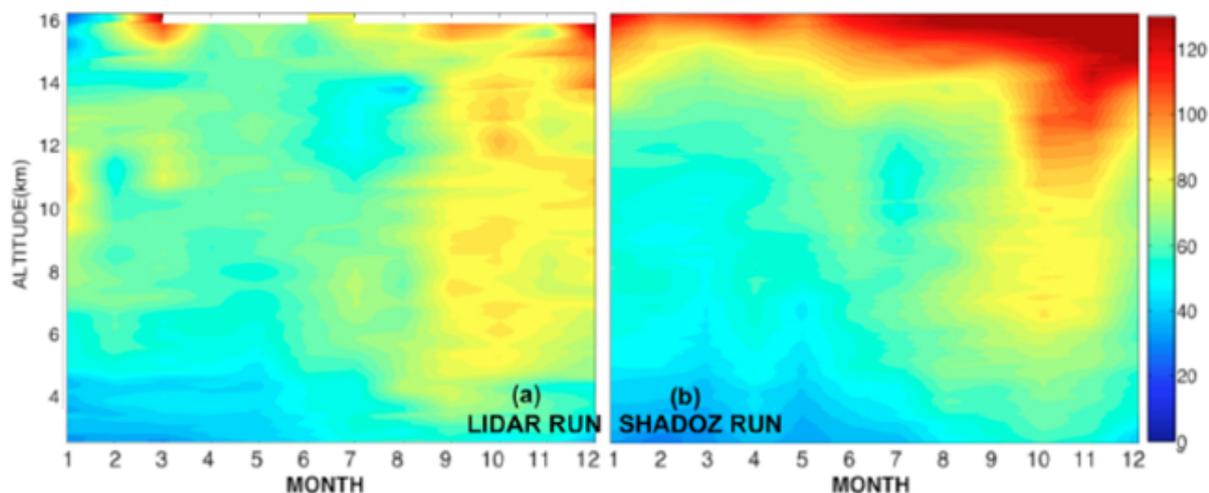


Figure 1.21: Climatologie de l’ozone troposphérique à la Réunion - Evolution annuelle de la distribution verticale de la concentration d’ozone troposphérique obtenue par lidar (à gauche) et radiosondages (à droite) [Clain *et al.*, 2009]

Les données du programme MOZAIC (Measurements of OZone, water vapour, carbon monoxide and nitrogen oxides by in-service AIRbus airCRAFT, [Marenco *et al.*, 1998]), en activité depuis 1994 et couplé avec des lâchers de ballon équipés d’ozonesonde dans le cadre du programme AMMA (African Monsoon Multidisciplinary Analysis), ont également permis de documenter la production d’ozone troposphérique en relation avec les émissions de polluants des villes d’Afrique de l’Ouest ainsi que la saisonnalité et la variabilité interannuelle de l’ozone dans la troposphère et la basse stratosphère au dessus de l’Afrique de l’Ouest [Thouret *et al.*, 2009; Ancellet *et al.*, 2011]. Dans les moyennes latitudes de l’hémisphère sud, des tendances positives de l’ozone troposphérique ont été analysées par Oltmans *et al.* [2006] en utilisant les longues séries temporelles de profils d’ozone troposphérique obtenues à différents sites dont Lauder (45 ° S, 170 ° E) en Nouvelle Zélande. Morioka *et al.* [2011] prouvent l’augmentation de la concentration d’ozone dans la haute troposphère pour la plupart des stations SHADOZ. La campagne INDOEX a également permis de documenter la concentration d’ozone troposphérique dans l’Océan Indien. En particulier, De Laat [2002] montrent la présence d’ozone dans la haute troposphère de l’Océan Indien (entre 20 ° S et 10 ° N) dont l’origine sont des feux de biomasse se produisant en Afrique.

1.4.3 Aérosols

Le terme aérosol désigne les particules solides ou liquides en suspension dans une masse d’air, à l’exclusion des gouttelettes (ou des cristaux) de nuage et de pluie (plus généralement définis sous le terme d’hydrométéores). Ils sont principalement localisés dans la troposphère. Contrairement aux gaz traces, les aérosols ne désignent pas une espèce précise, mais constituent un terme générique regroupant une diversité d’objets de tailles allant de quelques nanomètres à quelques centaines de micromètres.

Les gaz à effet de serre tels que le CO_2 et le CH_4 ont une durée de vie de plus de 10 ans dans l’atmosphère et présentent ainsi une répartition assez homogène autour du globe ; à l’inverse, les aérosols troposphériques, ayant une durée de vie de l’ordre d’une semaine, sont spatialement et temporellement répartis de manière hétérogène [Andreae et al., 1986] (la stratosphère contient aussi des aérosols jusqu’à 18-20 km d’altitude, mais, contrairement aux aérosols troposphériques, leur concentration est relativement uniforme et leur durée de vie beaucoup plus longue, de plusieurs mois à plusieurs années). C’est ainsi que l’augmentation globale de CO_2 de 1-2 ppm par an a été mesurée il y a 50 ans à partir d’un unique point de mesure au sol (Mauna Loa, Hawaï) [Keeling, 1960], alors que des observations satellite quotidiennes et des mesures in situ continues sont nécessaires pour observer l’émission et le transport de panaches d’aérosols sous le vent des régions peuplées et polluées (smog urbain), des régions soumises aux feux de biomasse (panaches de fumée), des déserts (poussières) et des régions océaniques (sels marins).

Les aérosols issus des régions peuplées et polluées résultent des activités industrielles et de la combustion de fuel fossile. Ce sont principalement des particules fines hygroscopiques : sulfates, carbones organiques (OC, pour "Organic Carbon"), et carbones suies (BC, pour "Black Carbon") [Kiehl and Briegleb, 1993 ; Novakov et al., 1997]. Le carbone suie représente la fraction effective de carbone élémentaire qui participe aux propriétés d’absorption de l’aérosol. Les émissions de BC sont plus faibles pour des moteurs récents que pour des vieux moteurs, c’est la raison pour laquelle la fraction de BC est généralement plus importante en Asie du sud-est et en Amérique Latine [Ramanathan et al., 2001 ; Dubovik et al., 2002].

Les panaches de fumée issus de feux de biomasse contiennent majoritairement de fines particules organiques avec des concentrations variées de BC, émis lors de la phase la plus chaude de la combustion, en présence de flamme. Lors des feux de forêt, cette première phase est suivie d’une phase moins chaude d’émission de fumée par les cendres et les braises, fumée contenant essentiellement des particules organiques sans BC. A l’inverse, la savane africaine brûle rapidement avec force flamme, émettant de grandes quantités de carbone suie, sans phase d’émission de fumée par les cendres ou les braises [Ross et al., 1998 ; Eck et al., 2001]. Un même type de

1. INTRODUCTION GÉNÉRALE

source (les feux de biomasse) peut donc produire des aérosols de compositions et de propriétés physiques différentes (cf. plus bas sur l'importance de la proportion de BC dans les aérosols).

Les poussières (ou aérosols terrigènes) sont principalement émises des déserts de l'est de l'Asie, du Sahara, et d'Arabie Saoudite [Husar *et al.*, 1997; Herman *et al.*, 1997], ces deux dernières régions constituant les plus grandes sources de poussières [Chung and Seinfeld, 2002]. L'émission de poussières résulte de l'arrachage de particules minérales du sol sous l'effet du vent, et produit des aérosols de taille moyenne $> 1\mu\text{m}$ (mode grossier) [Tanré *et al.*, 2001].

Les aérosols marins sont composés de particules de sel grossières émises par la dispersion de l'écume de mer sous l'effet d'un vent fort et de fines particules sulfatées provenant de l'océan [Hoppel *et al.*, 1990].

La Figure 1.22 donne la répartition géographique des émissions des constituants principaux des aérosols (sulfate, OC, BC, poussières et sels marins) ainsi qu'une estimation des quantités émises et perdues à l'échelle globale, ainsi que les durées de vie moyennes des aérosols. Deux mécanismes principaux provoquent la disparition des aérosols de l'atmosphère : la déposition sèche (chute par gravité) et la déposition humide (incorporation dans les gouttelettes des nuages pendant la formation des précipitations ou lessivage).

Les effets des aérosols sur le climat diffèrent de ceux des gaz à effet de serre par deux effets principaux. Les aérosols étant hautement réfléchissants, ils augmentent l'albedo (pouvoir réfléchissant) planétaire, refroidissant ainsi la surface et contrebalançant globalement le réchauffement causé par les gaz à effet de serre de 25 à 50% [Twomey *et al.*, 1984; Charlson *et al.*, 1992; Kiehl and Briegleb, 1993; GIEC, 2007]; c'est ce qu'on appelle l'effet direct des aérosols. Cependant, les aérosols contenant des particules de BC (présentes dans la fumée et le smog) sont sombres et absorbent donc fortement la lumière du soleil. Les effets de ce type d'aérosol sont doubles, à la fois réchauffant l'atmosphère et refroidissant la surface avant qu'une redistribution de l'énergie n'ait lieu dans la colonne atmosphérique. Pendant des périodes de fortes concentrations d'aérosols au dessus de l'Océan Indien, par exemple, des mesures ont révélé que ces aérosols de carbone suie avaient réchauffé la basse couche troposphérique située entre 2 et 4km tout en réduisant d'environ 15% la quantité de lumière solaire atteignant la surface [Ramanathan *et al.*, 2001]. Réchauffer l'atmosphère tout en refroidissant la surface diminue le gradient vertical de température de l'atmosphère, ce qui devrait diminuer l'évaporation et la formation de nuages [Hansen *et al.*, 1997; Ackerman *et al.*, 2000].

La seconde différence entre l'effet des gaz à effet de serre et les aérosols est due à l'impact des aérosols sur les nuages et les précipitations (effet indirect). Les aérosols - notamment les aérosols hydrophiles (sulfates, nitrates, chlorures) - peuvent servir de noyaux de condensation (ou CCN, pour "Cloud Condensation Nuclei") initiant la formation des nuages, de sorte qu'à

1.4 Polluants transportés dans la troposphère de l'Océan Indien

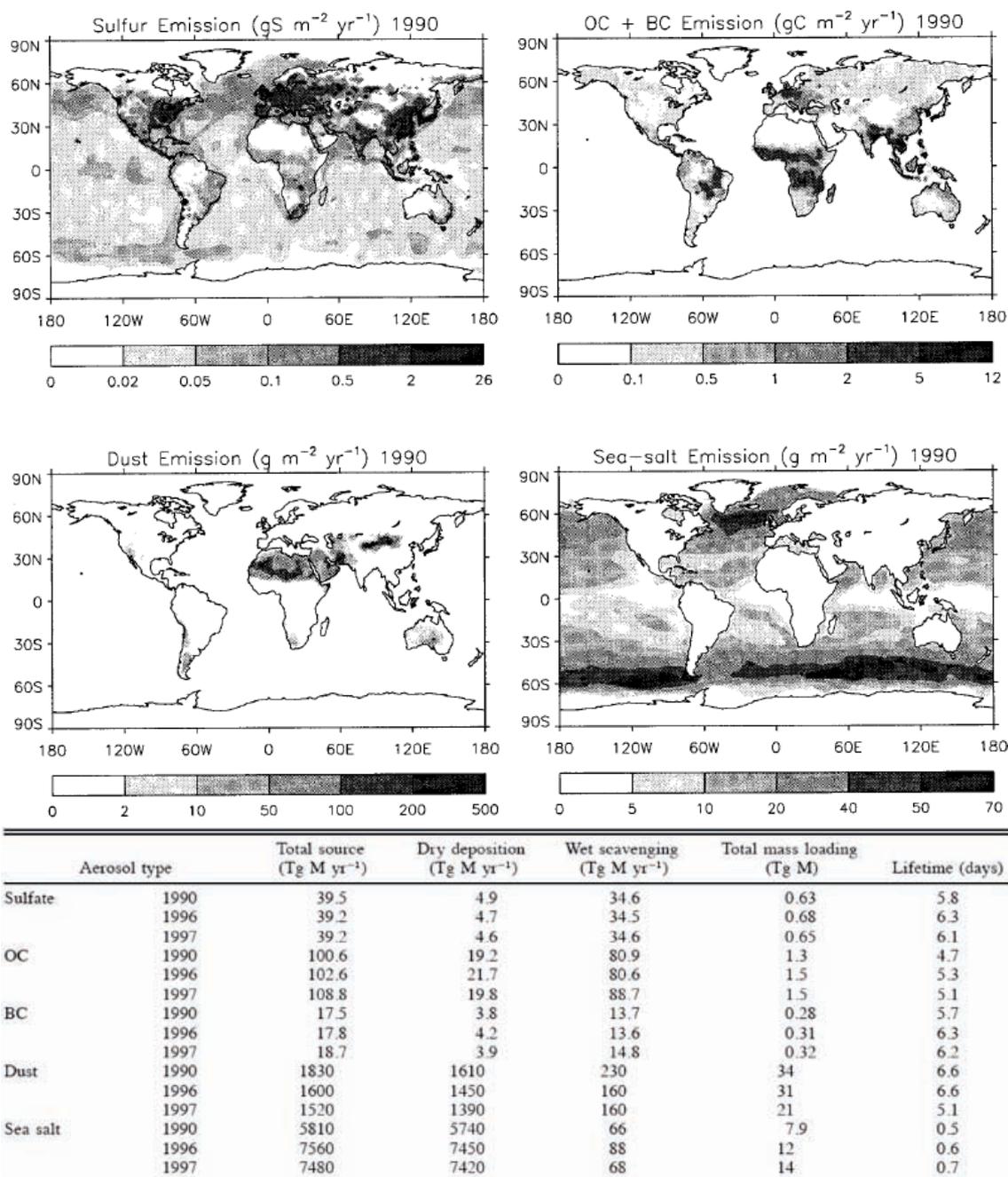


Figure 1.22: Répartition géographique des émissions des constituants principaux des aérosols - (en haut à gauche) Emission de sulfates; (en haut à droite) Emission de OC+BC; (en bas à gauche) Emission de poussières; (en bas à droite) Emission de sels de mer. Le tableau donne les émissions totales pour chacun des types d'aérosols, les pertes par déposition sèche, par déposition humide, la charge totale (différence entre émission et perte) et la durée de vie moyenne pour les années 1990, 1996 et 1997 [Chin et al., 2002]

1. INTRODUCTION GÉNÉRALE

contenu en eau fixé, un nuage issu d'une masse d'air d'avantage chargée en aérosols contient un nombre de gouttelettes supérieur au contenu d'un nuage moins pollué en aérosols. Dans les régions polluées, les nombreuses particules d'aérosols se partagent ainsi la vapeur d'eau pendant la formation des nuages, réduisant la taille des gouttelettes d'eau de 20 à 30%, et causant ainsi une augmentation jusqu'à 25% de l'albedo des nuages [Coakley et al., 1987; Kaufman and Fraser, 1997; Nakajima et al., 2001; Ramanathan et al., 2001] et refroidissant la surface de la Terre. Les gouttelettes d'eau polluées, plus petites, sont inefficaces pour la production de précipitation [Twomey, 1997; Rosenfeld, 1999, 2000] et peuvent donc à terme modifier le régime de précipitation dans des régions peuplées adaptées aux taux de précipitation actuels (Figure 1.23). L'effet refroidissant causé par les nuages pollués est encore mal caractérisé avec une incertitude 5 à 10 fois supérieure à l'incertitude sur les effets réchauffant des gaz à effet de serre. L'effet des aérosols sur les précipitations est encore moins bien compris (Section 1.1).

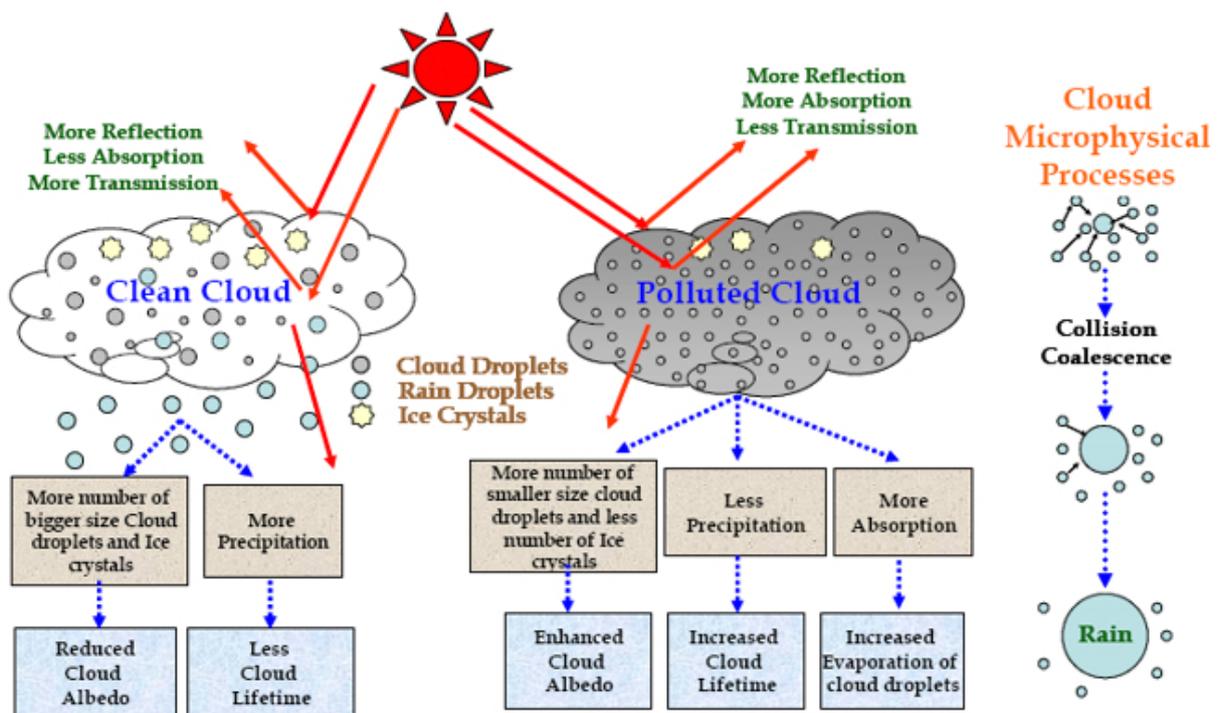


Figure 1.23: Schéma de l'impact des aérosols sur les nuages - Source : Indian Institute of Technology Kanpur (<http://www.iitk.ac.in/>)

Pour évaluer l'effet des aérosols sur le climat, il est nécessaire de distinguer les aérosols naturels des aérosols anthropiques. Les modèles et les mesures effectuées jusqu'à présent montrent que les panaches de fumée et de pollution régionale présentent d'importantes concentrations d'aérosols de mode "fin" (de diamètre inférieur à $1\mu m$). Les couches d'aérosols naturels peuvent

1.4 Polluants transportés dans la troposphère de l’Océan Indien

contenir des poussières ou des sels de mer de mode ”grossier” ($> 1\mu\text{m}$), et des aérosols fins provenant de sources continentales (Figure 1.24) [Chin *et al.*, 2002; Kaufman *et al.*, 2002].

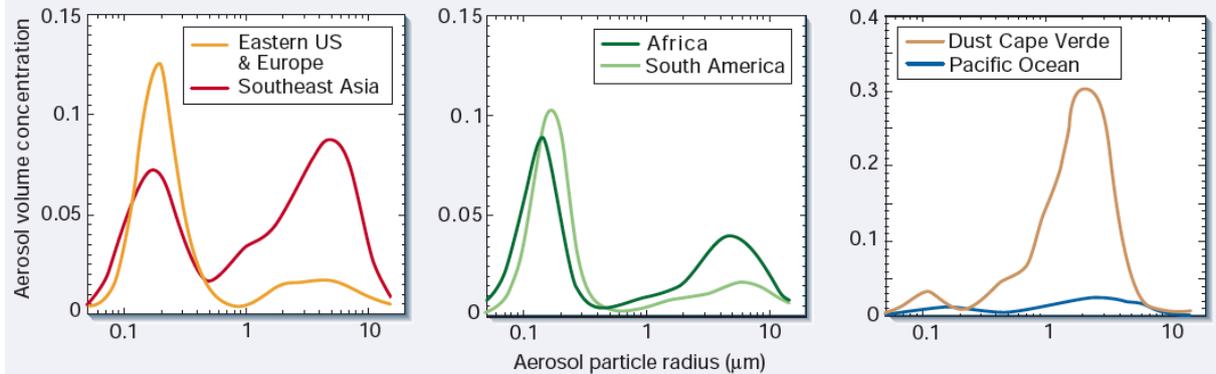


Figure 1.24: Distribution en taille moyenne des principaux types d’aérosols - (à gauche) Aérosols anthropiques de pollution régionale; (au milieu) Aérosols de feux; (à droite) Poussières (en jaune) et aérosols marins (en bleu). Les distributions en taille sont données en $\mu\text{m}^3\mu\text{m}^{-2}$ et proviennent de mesures photométriques (AERONET) et in situ [Kaufman *et al.*, 2002].

Dans l’Océan Indien, les aérosols proviennent principalement de la pollution régionale anthropique (Asie, Afrique du Sud, Amérique Latine), des feux de biomasse (*idem*) [Lelieveld *et al.*, 2000] et, bien sûr, de l’océan lui-même (sels marins). La concentration en aérosols et leurs propriétés optiques ont été intensément étudiées dans l’Océan Indien nord dans le cadre de INDOEX pendant la mousson d’hiver [Rajeev *et al.*, 2000; Leon *et al.*, 2001; Pelon *et al.*, 2001; Ramanathan *et al.*, 2001; Rasch *et al.*, 2001; Welton *et al.*, 2002; Chazette, 2003; Forêt *et al.*, 2006]. Cependant, comparé à l’hémisphère nord et à l’Océan Indien nord, le sud de l’Océan Indien est une zone relativement ”propre” d’aérosols, excepté pendant la saison des feux australe. La Figure 1.25 montre une climatologie de l’épaisseur optique (qui est un indicateur de la concentration en aérosols sur toute la colonne atmosphérique - cf. Section 3) entre 30°N et 70°S réalisée à partir des mesures MODIS de 2002 à 2009. On remarque que l’Océan Indien nord (aux alentours de l’Inde, dans la mer d’Oman et dans le Golfe du Bengale) présente une épaisseur optique de l’ordre de ≈ 0.2 tout au long de l’année, étant soumis à la pollution régionale anthropique, peu soumise aux variations saisonnières. Entre 10°N et 40°S , la charge en aérosols est plus variable, passant de ≈ 0.1 en moyenne de Décembre à Août à plus de ≈ 0.2 en hiver austral (saison des feux), période durant laquelle la ”rivière de fumée” évoquée plus haut (évacuation des panaches issus des feux de biomasse par le sud-est de l’Afrique Australe) est nettement visible. On remarque également la présence d’un flux d’aérosols entre l’Asie du sud-est et le sud-ouest de l’Océan Indien. Entre 40 et 60°S , la charge en aérosols est également très variable, étant de ≈ 0.1 de Juin à Août et de ≈ 0.2 de Septembre à Mai en moyenne. L’augmentation

1. INTRODUCTION GÉNÉRALE

de la charge en aérosols dans cette bande de latitude provient de la concentration importante d'aérosols marins due à la vitesse du vent de surface plus élevée pendant cette période [Van Loon and Rogers, 1983; Kaufman et al., 2002], et au transport des aérosols de feux d'Amérique Latine et d'Afrique Australe vers l'Australie (Section 1.3.3) de Août à Novembre.

La troposphère de l'Océan Indien est donc le siège du transport de nombreux polluants, et parmi ceux-ci le CO, l'ozone et les aérosols. Les deux premiers participent au réchauffement climatique par l'effet de serre, tandis que les derniers, interagissant à la fois avec le rayonnement solaire et les nuages, et présentant une variabilité spatio-temporelle importante, ont des effets plus complexes sur le climat qui restent à être intensivement étudiés.

Après avoir décrit l'intérêt de la zone Océan Indien dans le domaine de la physique de l'atmosphère, les mécanismes et caractéristiques de la dynamique troposphérique, et les propriétés de certains polluants qui y sont transportés, la section suivante se propose de résumer les principaux objectifs de cette thèse, et de décrire comment ce manuscrit s'articule autour.

1.5 Organisation du manuscrit

1.5.1 Objectifs de la thèse

Les travaux menés dans le cadre de cette thèse ont pour principaux objectifs la caractérisation des structures spatiales de concentration des polluants dans le sud de l'Océan Indien, et l'identification de leur provenance. Un accent particulier a été mis sur l'étude de ces paramètres à la verticale de la Réunion (21 ° S, 55 ° E), celle-ci se voyant bientôt dotée de la station d'observation du Maïdo (OPAR, Observatoire de Physique de l'Atmosphère de la Réunion), située à 2200m. Cette station d'observation, unique dans l'hémisphère sud, entrera en fonction courant 2012. Elle a pour but l'étude des mécanismes physico-chimiques se produisant dans la troposphère et dans la stratosphère et constituera un point de sondage continu et assez exhaustif de ces deux couches atmosphériques.

Les principales questions scientifiques abordées lors de mes recherches sont les suivantes :

- Quelle est la structure verticale des couches de polluant à la verticale de la Réunion et du sud de l'Océan Indien ?
- Quelle est la provenance de ces polluants ?
- Quelles sont leurs propriétés optiques (dans le cas des aérosols) ?
- Quelles sont les contributions relatives de chaque zone source identifiée ?

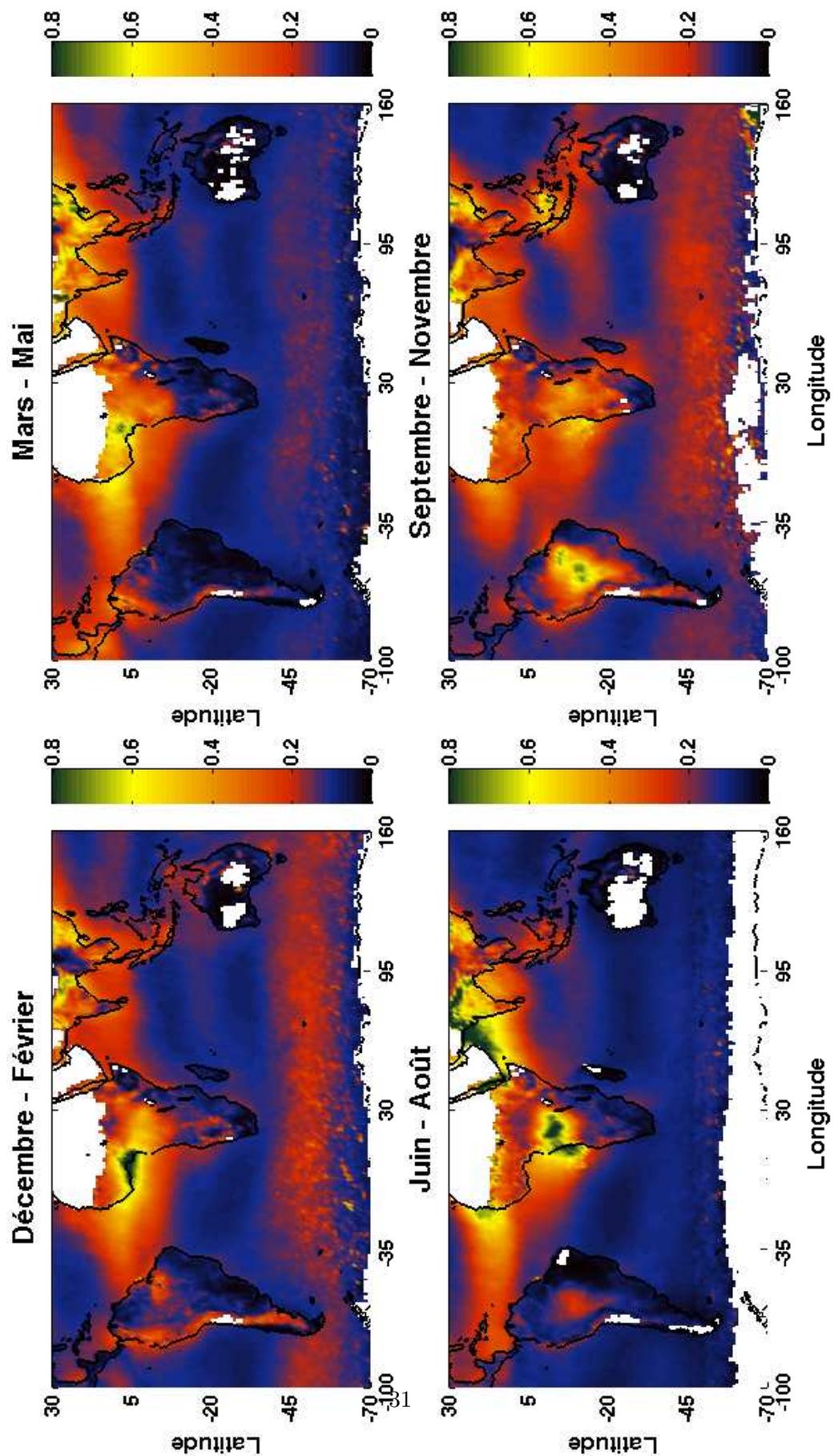


Figure 1.25: Climatologie des épaisseurs optiques entre 30° N et 70° S - (en haut à gauche) De Décembre à Février ; (en haut à droite) De Mars à Mai ; (en bas à gauche) De Juin à Août ; (en bas à droite) De Septembre à Novembre. Moyenne des mesures MODIS de 2002 à 2009.

1. INTRODUCTION GÉNÉRALE

- Quels sont les mécanismes dynamiques qui gouvernent ces transports de masses d'air polluées ?

Afin de mener à bien ces recherches, j'ai participé à l'organisation, l'installation et la conduite de plusieurs campagnes de mesure réalisées à la fois à la Réunion et dans l'Océan Indien, à bord d'un navire de recherche sillonnant la partie australe de cet océan. L'exploitation des mesures acquises lors de ces campagnes a nécessité un investissement important afin de maîtriser les techniques d'inversion permettant d'accéder aux distributions verticales des polluants détectés, et à leur propriétés optiques (aérosols). L'utilisation de modèles de dispersion de panache et de bases de donnée d'émission a permis la détermination des zones sources et de leur contribution relative aux concentrations de polluants mesurées.

1.5.2 Plan

Ce manuscrit s'articule autour des différents points listés ci-dessus. Les instruments et techniques d'inversion utilisés sont exposés dans les deux chapitres qui suivent : les Chapitres 2 et 3 décrivent les théories physiques, instrumentales et d'inversion relatives à la télédétection de gaz traces par spectrométrie infrarouge à transformée de Fourier et à la télédétection des aérosols par lidar et photomètre, respectivement, ainsi que les campagnes menées dans le cadre de cette thèse et faisant intervenir ces instruments. Le Chapitre 4 se focalise sur les modèles de dispersion de panache utilisés. Les Chapitres 5 et 6 présentent les résultats obtenus lors des campagnes décrites précédemment, et s'appuient en partie sur les articles publiés dans des revues à comité de lecture et réalisés dans le cadre de cette thèse [Duflot *et al.*, 2010, 2011 ; Baray *et al.*, 2011], également fournies en Annexe. Enfin, le Chapitre 7 expose les conclusions pouvant être tirées de cette thèse, ainsi que les perspectives de recherche qu'elle ouvre.

2

La spectrométrie infrarouge à transformée de Fourier

2.1 Introduction

Une des techniques exploitées dans le cadre de cette thèse repose sur les propriétés d'absorption infrarouge de certaines espèces de gaz polluants atmosphériques. Le CO, en particulier, possède des raies d'absorption dans l'infrarouge permettant de le détecter, et de le quantifier. Ce chapitre se propose de présenter les aspects théoriques et pratiques de la spectrométrie infrarouge à transformée de Fourier ayant permis de caractériser l'évolution de la distribution verticale du CO à la verticale de la Réunion lors de trois campagnes de mesure menées en 2004, 2007 et de 2009 à 2011. Les résultats fournis par ces études sont exploités et présentés dans le Chapitre 5, traitant du transport et de la distribution de gaz traces dans le sud-ouest de l'Océan Indien.

La lumière solaire subit de nombreuses interactions avec les constituants atmosphériques lors de sa traversée de l'atmosphère : le rayonnement UV est absorbé par l'oxygène et l'ozone dans les hautes couches atmosphériques (thermosphère, mésosphère et stratosphère) ; le rayonnement UV-visible solaire est principalement diffusé par les molécules et les aérosols atmosphériques présents dans les basse et moyenne atmosphères ; le rayonnement infrarouge (IR) solaire - pour lequel la diffusion peut être négligée - est quant à lui en grande partie absorbé par les composés minoritaires atmosphériques. La Figure 2.1 présente les caractéristiques d'absorption de quelques uns des principaux absorbeurs IR atmosphériques. Outre ces derniers, la plupart des molécules présentes dans l'atmosphère absorbent le rayonnement IR solaire. Lorsque les raies d'absorption d'un gaz ne sont pas masquées par l'absorption par la vapeur d'eau, le dioxyde de carbone ou encore d'autres molécules, il est possible de les utiliser pour déterminer la quantité

2. LA SPECTROMÉTRIE INFRAROUGE À TRANSFORMÉE DE FOURIER

(et parfois l'altitude lorsque la quantité d'information est suffisante) de gaz absorbant présent dans l'atmosphère.

La méthode décrite dans ce chapitre pour l'obtention de la concentration de gaz absorbant présente dans l'atmosphère à un instant et dans une tranche d'altitude donnés est basée sur l'établissement d'un modèle dit "direct" et d'une méthode d'inversion. Le modèle direct permet de calculer le spectre d'absorption infrarouge solaire à partir de la connaissance de l'état de l'atmosphère et des caractéristiques de l'instrument de mesure. La méthode d'inversion consiste en la déduction de la meilleure estimation de l'état de l'atmosphère - dans notre cas : l'obtention de profils de CO - à partir des mesures et du modèle direct. La compréhension du modèle direct nécessite la présentation des bases théoriques de l'absorption infrarouge par les molécules atmosphériques (Section 2.2.2) et du principe de fonctionnement de l'instrument - le spectromètre à transformée de Fourier (FTS) - permettant la mesure du spectre d'absorption infrarouge atmosphérique (Section 2.2.3). La méthode d'inversion qui permet de déterminer des concentrations de gaz traces à partir d'une mesure spectrale est présentée Section 2.4. Les campagnes FTIR réalisées à la Réunion, les caractéristiques de l'instrument utilisé, les paramètres utilisés pour l'inversion et l'obtention de profils de CO et l'évaluation de la sensibilité et des erreurs de ces inversions sont enfin exposées Section 2.5.

2.2 Le modèle direct

2.2.1 Introduction

Le modèle direct présenté ici permet l'obtention du spectre d'absorption solaire à partir de mesures effectuées par un spectromètre à transformée de Fourier. Or, le spectre d'absorption solaire mesuré par un spectromètre correspond au produit de convolution de l'expression du spectre par le profil instrumental du spectromètre. L'objectif de cette section est donc de présenter les bases théoriques et les principes permettant la compréhension de l'expression du spectre d'absorption atmosphérique (Section 2.2.2), ainsi que les caractéristiques et limitations aboutissant au profil instrumental du spectromètre (Section 2.2.3).

2.2.2 L'absorption infrarouge dans l'atmosphère

2.2.2.1 Introduction

Au cours de leur pénétration dans l'atmosphère, les photons solaires entrent en collision avec les molécules atmosphériques et sont progressivement absorbés. L'absorption du rayonnement par les molécules atmosphériques est intimement liée aux caractéristiques énergétiques de ces dernières. Une molécule possède des niveaux énergétiques discrets et quantifiés associés à des

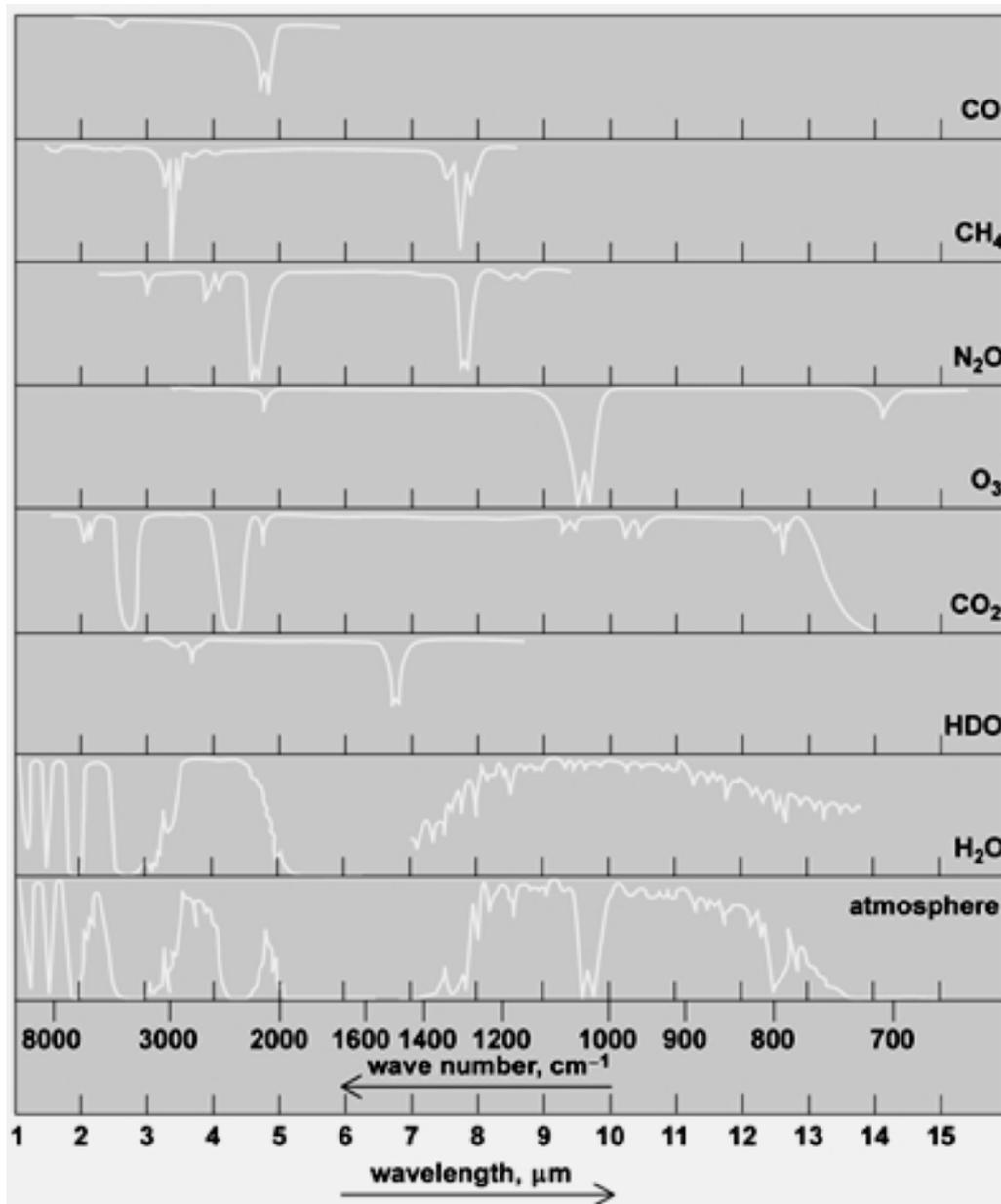


Figure 2.1: Spectre d'absorption des principaux absorbeurs IR - Absorption de la radiation solaire IR par les gaz atmosphériques CO, CH₄, N₂O, O₃, CO₂, HDO et H₂O. Le pourcentage absorbé à une longueur d'onde donnée correspond à la profondeur du creux. Le cadre inférieur correspond à la somme de tous les cadres supérieurs [Wolfe, 2008].

2. LA SPECTROMÉTRIE INFRAROUGE À TRANSFORMÉE DE FOURIER

états de rotation, de vibration ou de configuration électronique. Un photon peut être absorbé lorsque son énergie correspond à une transition entre le niveau fondamental et un de ces états excités. Dans l'infrarouge, l'absorption des photons est due à la transition depuis l'état fondamental vers un niveau de rotation-vibration de la molécule et donne naissance au spectre d'absorption infrarouge dont les caractéristiques sont présentées Section 2.2.2.2.

L'absorption de la radiation infrarouge dépend des conditions de pression et de température ainsi que de la concentration en molécules, lesquelles varient avec l'altitude le long de la colonne atmosphérique. Cette variabilité nécessite l'application d'une équation intégrée - l'équation de transfert radiatif - pour calculer l'intensité lumineuse en un point de l'atmosphère et permettre au modèle direct du programme d'inversion de simuler les spectres d'absorption IR. Cette équation de transfert radiatif est présentée Section 2.2.2.3.

2.2.2.2 Le spectre d'absorption IR

A des températures supérieures au zéro absolu, tous les atomes d'une molécule sont en constante vibration les uns par rapport aux autres. Lorsque la fréquence d'une vibration spécifique est égale à la fréquence d'une radiation IR atteignant la molécule, cette molécule absorbe cette radiation. La Figure 2.2 montre le domaine de fréquence IR. Chaque atome possède trois degrés de liberté, correspondants aux mouvements suivant les trois axes d'un repère cartésien (x, y, z). Une molécule polyatomique constituée de n atomes possède $3n$ degrés de liberté. Néanmoins, trois degrés de liberté sont nécessaires pour décrire la translation de cette molécule dans l'espace suivant les trois axes d'un repère cartésien, et trois autres degrés de liberté correspondent à la rotation de la molécule selon ces trois mêmes axes. Ainsi, une molécule non linéaire possède $3n - 6$ degrés de liberté correspondants à ses modes de vibration fondamentaux. Les molécules linéaires possèdent $3n - 5$ modes de vibration fondamentaux car deux degrés de liberté sont suffisants pour décrire leurs possibilités de rotation. Parmi ces $3n - 6$ ou $3n - 5$ modes de rotation-vibrations fondamentaux, ceux entraînant un changement dans le moment dipolaire de la molécule peuvent produire une activité IR ; autrement dit : pour qu'une molécule puisse absorber une radiation IR, elle doit subir une modification de son moment dipolaire lors de son mouvement vibrationnel ou rotationnel [Andrews, 2000].

Le nombre total de raies d'absorption IR observées pour une molécule est généralement différent du nombre total de ses modes de vibration-rotation fondamentaux. Il peut être inférieur parce que quelques modes ne sont pas actifs dans l'IR et parce qu'une seule fréquence peut interagir avec plusieurs modes de vibration-rotation. A l'inverse, des raies d'absorption additionnelles peuvent être générées par des "overtones" (multiples entiers de fréquences d'absorption fondamentales), des combinaisons, des différences, des couplages de fréquences d'absorption fonda-

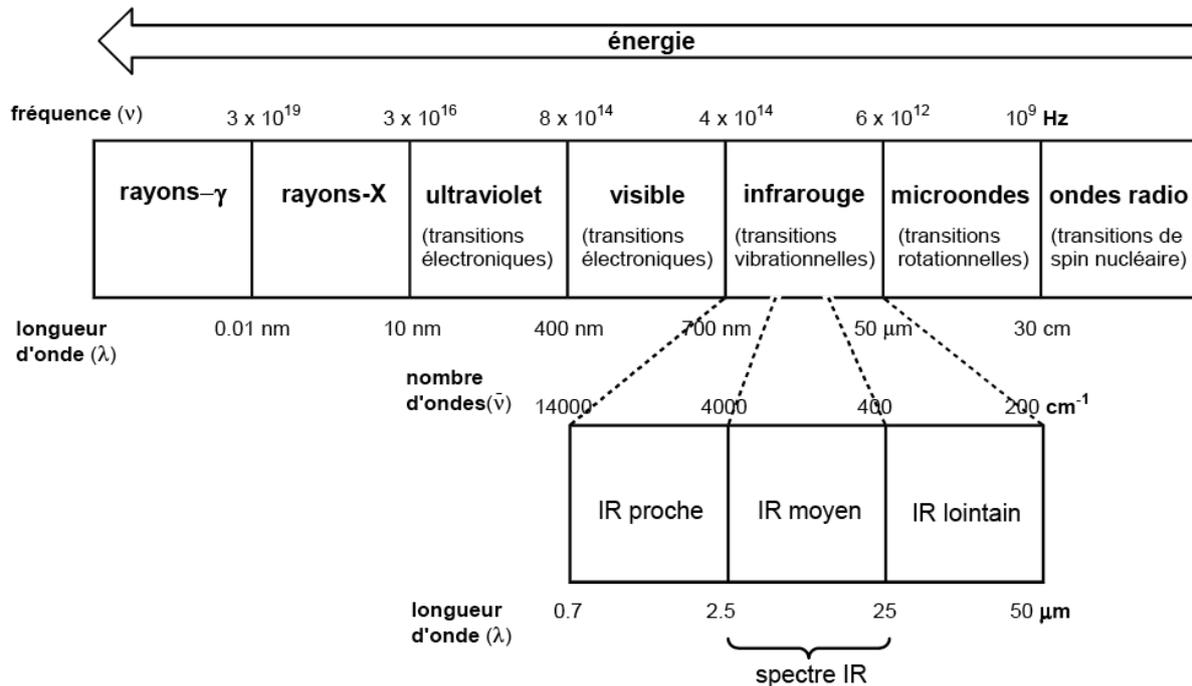


Figure 2.2: Le spectre électromagnétique. - Les principales transitions mises en jeu sont indiquées pour chaque domaine du spectre.

mentales, des couplages entre des fréquences d'absorption fondamentales et des "overtones", et des couplages entre des fréquences d'absorption fondamentales et des harmoniques (résonance de Fermi). Les combinaison et mélange de tous ces facteurs créent un spectre IR unique pour chaque molécule. Les principaux types de rotation-vibration moléculaire sont les rotation-vibrations d'élongation et les rotation-vibrations de déformation angulaire (Figure 2.3). Lorsque la radiation IR est absorbée par la molécule, l'énergie associée - discrète et quantifiée - est convertie en l'une de ces rotation-vibrations : on parle alors de transition de rotation-vibration [White, 1990].

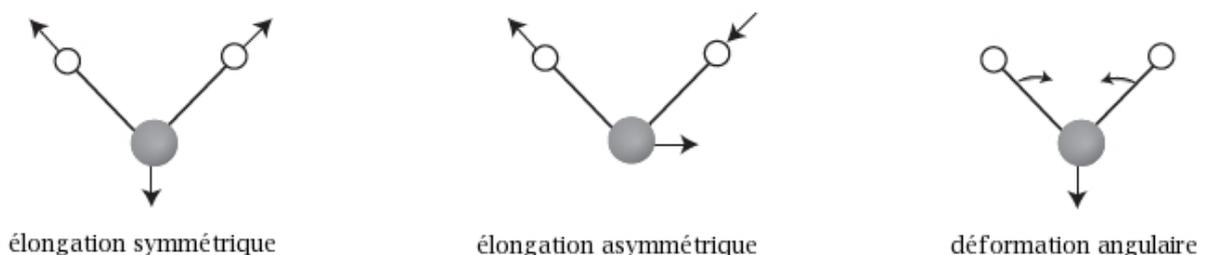


Figure 2.3: Modes de vibration d'élongation et de déformation angulaire pour la molécule d'H₂O. -

Une raie d'absorption associée à une telle transition est caractérisée par trois propriétés

2. LA SPECTROMÉTRIE INFRAROUGE À TRANSFORMÉE DE FOURIER

principales : sa position centrale (ie. la fréquence ou nombre d'onde central), son intensité, et son profil. L'intensité d'une raie d'absorption dépend de la température, et son profil dépend à la fois de la température et de la pression. Chaque raie possède une largeur caractéristique : elles occupent un domaine spectral autour de la fréquence de résonance centrale du à la durée de vie limitée des deux niveaux de la transition. Dans l'atmosphère, cette largeur peut être modifiée par plusieurs facteurs : la collision entre les molécules (élargissement par pression) ; l'agitation thermique des molécules (élargissement par effet Doppler) ; et la combinaison de ces deux précédents facteurs.

Aux pressions atmosphériques correspondant à la troposphère et à la basse et moyenne stratosphère, il est nécessaire de tenir compte des collisions entre les molécules. Les collisions agissent en particulier sur les états internes des molécules et entraînent un élargissement des raies par la diminution de la durée de vie des niveaux de la transition. Le profil dit "de Lorentz" d'une raie d'absorption est utilisé pour caractériser l'élargissement par pression et s'exprime ainsi :

$$\Phi_L(\sigma) = \frac{1}{\pi} \frac{\gamma_L}{(\sigma - \sigma_{fi} - \delta_L)^2 + \gamma_L^2} \quad (2.1)$$

où σ est le nombre d'onde, σ_{fi} le nombre d'onde central de la raie, γ_L la demi-largeur à mi-hauteur (HWHM pour Half Width at Half Maximum) et δ_L le déplacement collisionnel qui s'exprime en fonction de la pression atmosphérique P :

$$\gamma_L = \gamma_{air}P, \quad \delta_L = \delta_{air}P \quad (2.2)$$

où γ_{air} est le coefficient d'élargissement et δ_{air} le coefficient de déplacement du gaz absorbant par l'air à la pression de référence P_{ref} (1 atm). Ces coefficients dépendent également de la température T de la manière suivante :

$$\gamma_{air}(T) = \gamma_{air}(T_{ref}) \left(\frac{T_{ref}}{T}\right)^{n_\gamma}, \quad \delta_{air}(T) = \delta_{air}(T_{ref}) \left(\frac{T_{ref}}{T}\right)^{n_\delta} \quad (2.3)$$

en supposant connus γ_{air} et δ_{air} à la température de référence T_{ref} (296 K). Les exposants n_γ et n_δ sont déterminées expérimentalement et dépendent de la molécule considérée et des caractéristiques quantiques de la transition de vibration et/ou de rotation.

Aux faibles pressions correspondant à la haute stratosphère et à la mésosphère, les collisions entre les molécules peuvent être négligées et l'élargissement des raies est principalement due à l'effet Doppler : la fréquence d'absorption d'une radiation par une molécule dépend de sa vitesse. Le profil dit "Doppler" d'une raie d'absorption est utilisé pour caractériser cet élargissement et s'exprime ainsi :

$$\Phi_D(\sigma) = \frac{1}{\gamma_D} \sqrt{\frac{\log 2}{\pi}} \exp\left(-\log 2 \left(\frac{\sigma - \sigma_{fi}}{\gamma_D}\right)^2\right) \quad (2.4)$$

où γ_D est la demi-largeur à mi-hauteur du profil Doppler donné par :

$$\gamma_D = \sigma_{fi} \sqrt{2 \log 2 \frac{kT}{mc^2}} \quad (2.5)$$

où k est la constante de Boltzmann, m la masse de la molécule, et c la vitesse de la lumière dans le vide.

Aux pressions stratosphériques, les collisions entre molécules et l'effet Doppler du à leur vitesse doivent être tous les deux considérés. Pour caractériser les raies d'absorption, on utilise alors le profil dit "de Voigt" qui s'exprime ainsi :

$$\Phi_V(\sigma) = \frac{1}{\gamma_D} \sqrt{\frac{\log 2}{\pi}} K(x, y) \quad (2.6)$$

avec

$$K(x, y) = \frac{y}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{e^{-t^2}}{y^2 + (x - t)^2} dt \quad (2.7)$$

et

$$x = \frac{(\sigma - \sigma_{fi} - \delta_L)}{\gamma_D} \sqrt{\log 2}, \quad y = \frac{\gamma_L}{\gamma_D} \sqrt{\log 2} \quad (2.8)$$

Le profil de Voigt est valide à des pressions modérées. Dans ces conditions, les raies peuvent être considérées isolées les unes des autres et l'effet des collisions se traduit principalement par un élargissement et un déplacement.

En guise d'illustration, la Figure 2.4 montre ces trois types de profil simulés (et normalisés) pour une demi-largeur à mi-hauteur de 0.01 cm^{-1} centrés en 0.

L'absorption de la radiation infrarouge varie le long de la colonne atmosphérique en fonction de la température, de la pression et de la concentration en espèces absorbantes. Ces différentes dépendances doivent être prises en compte dans le modèle direct décrivant comment sont obtenues les observations spectrométriques à partir de l'état de l'atmosphère. Pour cela, le modèle doit comporter un modèle de transfert radiatif, reposant lui-même sur l'équation de transfert radiatif. C'est l'objet de la section suivante.

2. LA SPECTROMÉTRIE INFRAROUGE À TRANSFORMÉE DE FOURIER

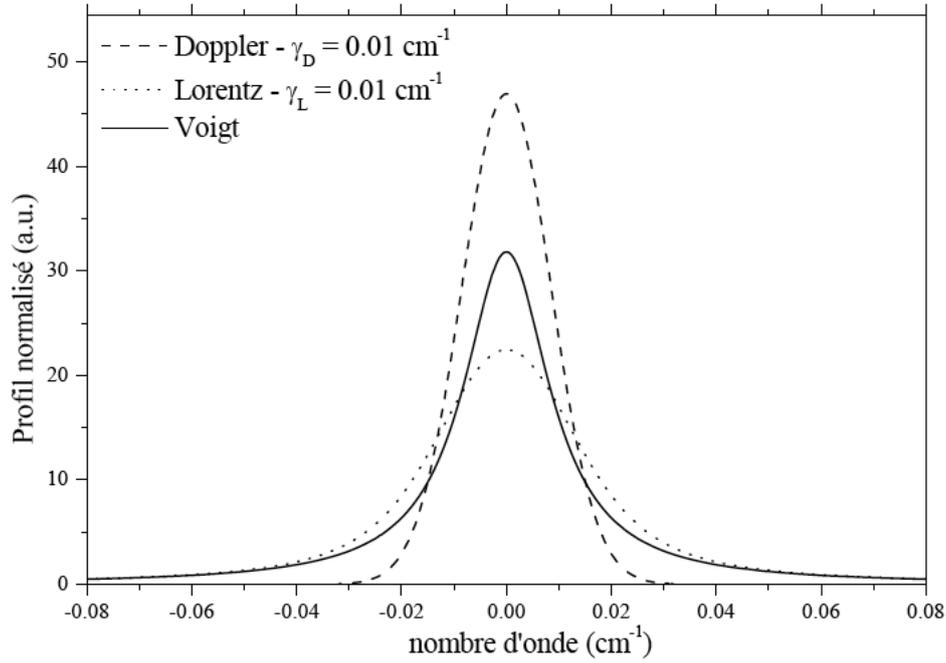


Figure 2.4: Profils de raie simulés et normalisés pour une demi-largeur à mi-hauteur de 0.01 cm^{-1} centrés en 0. - Le profil Doppler est en ligne tiretée, le profil de Lorentz en ligne pointillée, et le profil de Voigt en ligne continue [Xianglei et al., 2004].

2.2.2.3 L'équation de transfert radiatif

En négligeant l'extinction de la lumière par la diffusion - ce qui est le cas dans l'IR [Lenoble, 1993] - et en supposant l'atmosphère placée en équilibre thermodynamique local - ce qui peut être considéré dans la troposphère et dans la stratosphère - l'équation de transfert radiatif s'écrit [Flaud, 1991] :

$$L_{\sigma}(M_1, M_2) = B_{\sigma}[T(M_1)] \exp[-\tau_{\sigma}(M_1, M_2)] + \int_{M_1}^{M_2} B_{\sigma}[T(M)] \frac{\partial(\exp[-\tau_{\sigma}(M_1, M_2)])}{\partial M} dM \quad (2.9)$$

avec L_{σ} la luminance au nombre d'onde σ mesurée en M_2 pour un rayonnement lumineux qui se propage depuis M_1 , B_{σ} la luminance du corps noir au point M à la température T et au nombre d'onde σ donné par la fonction de Planck :

$$B_{\sigma}[T(M)] = \frac{2hc^2\sigma^2}{\exp(\frac{hc\sigma}{kT}) - 1} \quad (2.10)$$

avec h la constante de Planck, et

$$\tau_\sigma(M_1, M_2) = \sum_i \sum_j \int_{M_1}^{M_2} N_i(M) S_{\sigma_j}^i [T(M)] \Phi[(\sigma - \sigma_j), T(M), P(M)] dM \quad (2.11)$$

l'épaisseur optique d'absorption entre les points M_1 et M_2 , N_i étant la concentration en gaz i et $S_{\sigma_j}^i$ étant l'intensité de la raie d'absorption centrée à la position σ_j de l'espèce i . Dans les banques de données spectroscopiques, $S_{\sigma_j}^i$ est donnée de façon standard en $\text{cm}^{-1}/(\text{molécule cm}^{-2})$ à la température de référence T_{ref} . A l'équilibre thermodynamique local, on peut, connaissant l'énergie du niveau inférieur de la transition E , convertir cette intensité à la température T voulue par la formule [Flaud, 1991] :

$$S_{\sigma_j}^i(T) = S_{\sigma_j}^i(T_{\text{ref}}) \frac{Z(T_{\text{ref}})}{Z(T)} \frac{\exp(-\frac{E}{kT})}{\exp(-\frac{E}{kT_{\text{ref}}})} \frac{1 - \exp(-\frac{hc\sigma_j}{kT})}{1 - \exp(-\frac{hc\sigma_j}{kT_{\text{ref}}})} \quad (2.12)$$

où

$$Z(T) = \sum_j g_j \exp(-\frac{E_j}{kT}) \quad (2.13)$$

est la fonction de partition totale avec g_j la dégénérescence de l'état j .

L'équation de transfert radiatif (2.9) explicitée ci-dessus comporte deux termes : le premier terme correspond à l'absorption du rayonnement émis par la source lumineuse en M_1 ; le second terme traduit la contribution par émission de l'atmosphère elle-même. Dans le cas de la mesure du rayonnement solaire IR proche et moyen transmis à travers l'atmosphère, on peut négliger ce second terme.

Par suite des processus d'absorption, le faisceau est atténué d'un facteur :

$$t_\sigma(M_1, M_2) = \exp[-m_{\text{air}} \tau_\sigma(M_1, M_2)] \quad (2.14)$$

appelé transmission (ou transmittance) du milieu de M_1 à M_2 , avec m_{air} la masse d'air traversée par le faisceau lumineux. $t_\sigma(M_1, M_2)$ est donc fonction de l'épaisseur optique et de l'angle zénithal par l'intermédiaire de m_{air} .

Le programme d'inversion de spectres d'absorption solaire FTIR SFIT2 a été développé par le NASA Langley Research Center, le National Center for Atmospheric Research (NCAR) et le National Institute of Water and Atmosphere Research (NIWA) de Nouvelle-Zélande. Les spectres y sont simulés par un modèle direct raie par raie multicouche, qui permet de prendre en compte les absorptions de plusieurs espèces [Rinsland *et al.*, 1982, 1984]. La transmittance monochromatique est calculée pour chaque couche et pour chaque raie d'absorption sur une grille spectrale fixe avec un espacement de 0.0004 cm^{-1} dans l'approximation du profil de Voigt [Drayson, 1976]. Dans le calcul de l'épaisseur optique on doit à la fois considérer la dépendance

2. LA SPECTROMÉTRIE INFRAROUGE À TRANSFORMÉE DE FOURIER

rapide de τ_σ comme fonction de σ (d'où le terme de calcul raie par raie) et on doit, pour l'intégration le long de la ligne de visée, réaliser un découpage de l'atmosphère en couches d'épaisseur suffisamment fine pour que les variations rapides des intensités $S_{\sigma_j}^i$ et des profils $\Phi_\sigma(P(M), T(M))$ soient bien prises en compte lors de l'intégration sur la variable d'espace M . On comprend ainsi que, puisque les concentrations $N_i(M)$ interviennent dans l'expression de la transmittance, on puisse en principe par un processus mathématique décrit sous le terme général de méthode d'inversion remonter de la transmission $\tau_\sigma(M, 0)$ (autrement dit du spectre d'absorption) aux profils de concentration $N_i(M)$. Cette méthode d'inversion est décrite Section 2.3.

2.2.2.4 Conclusion

Cette section a permis de présenter les notions de base qui permettent de comprendre l'origine du spectre d'absorption des molécules atmosphériques. Il a ensuite été mis en évidence la forte dépendance de la largeur des raies d'absorption en fonction de la pression et de la température. L'inversion de profils verticaux de gaz atmosphériques - dont la théorie est présentée Section 2.3 - est basée sur cette dépendance. Près du centre des raies d'absorption, la lumière a essentiellement été absorbée par des molécules à faible pression, ce qui permet d'obtenir de l'information sur les couches atmosphériques élevées alors que dans les ailes des raies, l'absorption est due à des molécules à plus forte pression et les points mesurés procurent de l'information dans les basses couches de l'atmosphère. La limite supérieure au delà de laquelle il n'est plus possible d'obtenir une information résolue en altitude peut être estimée grossièrement comme l'altitude à laquelle l'élargissement par pression est égal à l'élargissement Doppler.

L'équation de transfert radiatif, sur lequel se base le modèle direct et qui permet de calculer l'absorption intégrée pour un rayon lumineux qui traverse toute l'atmosphère, a ensuite été présentée, ainsi que son intégration dans le programme d'inversion SFIT2.

2.2.3 Principes du spectromètre à transformée de Fourier (FTS)

2.2.3.1 Introduction

Cette section a pour but de décrire le spectromètre à transformée de Fourier (FTS) qui est l'instrument permettant d'enregistrer la transformée de Fourier du spectre d'absorption solaire, appelée interférogramme (Section 2.2.3.2). Lorsque le FTS enregistre le spectre d'absorption solaire infrarouge, il est appelé spectromètre infrarouge à transformée de Fourier (FTIR). Ses limitations physiques sont prises en compte dans l'établissement de son profil instrumental (Section 2.2.3.3), qui est intégré dans le modèle direct. Le FTS permet d'enregistrer des spectres avec

un rapport signal sur bruit très élevés (Section 2.2.3.4) et possède des avantages par rapport au spectromètre à réseaux qui sont décrits Section 2.2.3.5.

Le lecteur est invité à se référer aux travaux de *Davis et al.* [2001] pour plus de détails sur la description du FTS.

2.2.3.2 L'interféromètre de Michelson et l'obtention du spectre à partir de l'interférogramme

La pièce principale d'un spectromètre à transformée de Fourier est un interféromètre de Michelson (Figure 2.5). Il est formé d'une lame séparatrice semi-transparente qui divise le faisceau issu de la source en deux faisceaux, l'un réfléchi vers un miroir fixe, l'autre transmis vers un miroir mobile. Le miroir mobile, perpendiculaire au miroir fixe, se déplace à une vitesse constante le long de son axe. Ainsi, des faisceaux parcourent un chemin optique fixe, l'autre un chemin optique différent de $\Delta = 2d$ par rapport au chemin optique fixe (d étant le déplacement du miroir mobile); la différence entre les deux chemins optiques est appelée "retard optique" ou "différence de chemin optique".

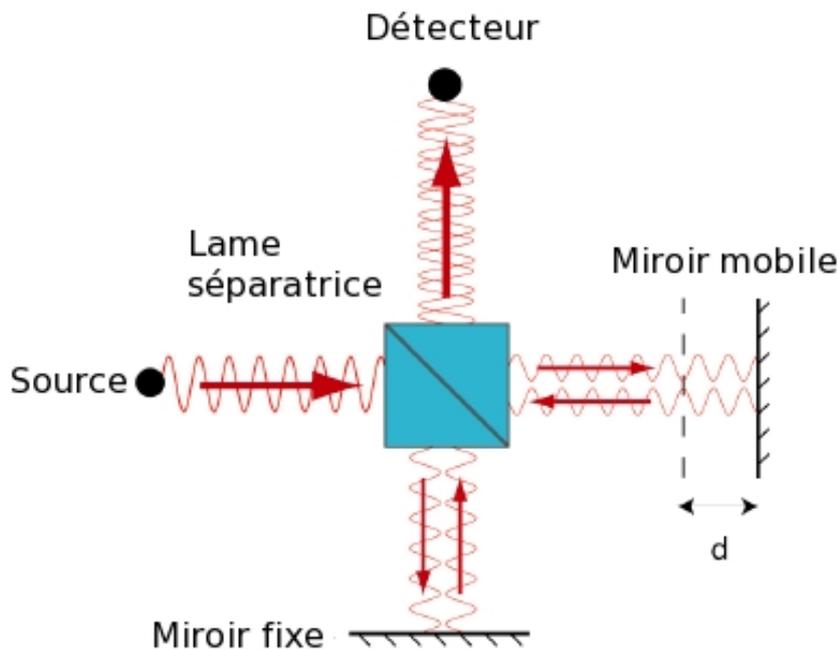


Figure 2.5: Interféromètre de Michelson. -

Considérons tout d'abord une source lumineuse parfaitement monochromatique (une seule longueur d'onde). La phase des ondes sur les deux trajets optiques (le fixe et le variable) est donc modifiée en déplaçant le miroir mobile. Ces deux faisceaux se recombinaient alors sur la

2. LA SPECTROMÉTRIE INFRAROUGE À TRANSFORMÉE DE FOURIER

séparatrice. Le signal sortant de l'interféromètre résulte en ces 2 faisceaux interférant entre eux : quand la différence de chemin optique entre les faisceaux correspond à un multiple entier de la longueur d'onde d'une bande ($x = n\lambda$, avec n entier), on obtient une interférence constructive, et l'intensité lumineuse détectée est égale à l'intensité de la source. Une interférence destructive est obtenue lorsque la différence correspond à un multiple entier impair de la moitié de longueur d'onde ($x = (n + 1)\lambda/2$), et l'intensité lumineuse détectée est nulle. L'ensemble des interférences positives et négatives produit un interférogramme. De manière générale, lorsqu'on fait varier d on observe alternativement des maxima et des minima au niveau de l'intensité du faisceau résultant (Figure 2.6). Pour des retards optiques intermédiaires, l'intensité mesurée sur le détecteur vaut :

$$I(x) = \frac{I_0}{2} [1 + \cos(\frac{2\pi}{\lambda}x)] \quad (2.15)$$

où I_0 est l'intensité de la source.

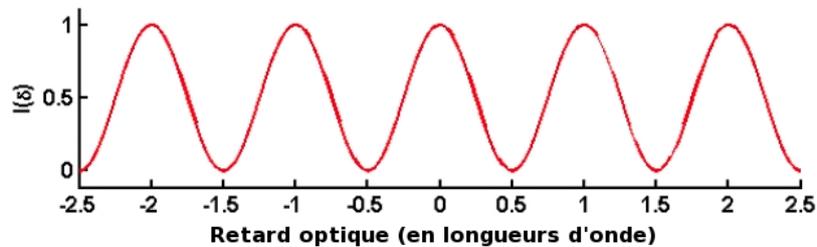


Figure 2.6: Interférogramme d'une source lumineuse monochromatique. -

Pour une source continue, c'est à dire formée d'un ensemble continu de longueurs d'onde, chaque composante spectrale de la source produit un interférogramme de période caractéristique, dont l'amplitude est fonction de l'intensité spectrale (Figure 2.7). L'interférogramme total s'exprime par :

$$I(x) = \int_0^{+\infty} S(\sigma) \cos(2\pi\sigma x) d\sigma \quad (2.16)$$

où $S(\sigma)$ est le spectre de la source lumineuse exprimée en nombre d'onde. Cet interférogramme possède la propriété que chaque point (fonction de la position du miroir mobile) qui constitue le signal possède une information sur chaque fréquence infrarouge provenant de la source. L'interféromètre produit ainsi un signal unique contenant toutes les informations requises pour produire un spectre : l'interférogramme est la transformée de Fourier (FT pour "Fourier transform") du spectre de la source lumineuse. Afin de travailler avec une FT complexe de $-\infty$ à $+\infty$, on introduit la fonction $S_e(\sigma)$ définie par : $S_e(\sigma) = [S(\sigma) + S(-\sigma)]/2$.

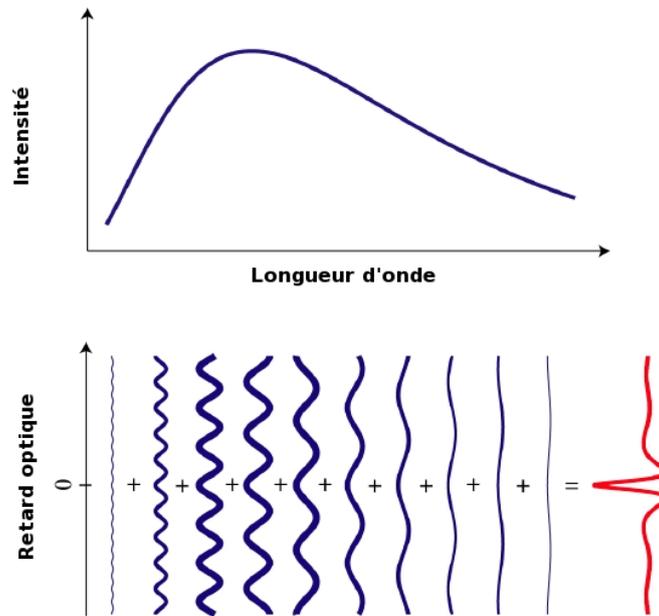


Figure 2.7: Représentation schématique de la formation d'un interférogramme à partir d'une source lumineuse à spectre continu. -

On a alors :

$$I(x) = \int_{-\infty}^{+\infty} S_e(\sigma) \exp(2i\pi\sigma x) d\sigma \quad (2.17)$$

Le cosinus a été remplacé par l'exponentielle complexe car $S_e(\sigma)$ est une fonction réelle paire et la contribution imaginaire de l'équation 2.17 est nulle. Afin d'obtenir le spectre de la source lumineuse, il est nécessaire d'appliquer à l'interférogramme la FT inverse :

$$S_e(\sigma) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(x) \exp(-2i\pi\sigma x) dx \quad (2.18)$$

Cependant, lorsque les grandeurs ne sont pas mesurées de façon continue mais échantillonnées discrètement (ce qui est le cas ici), il est nécessaire d'introduire la transformée de Fourier discrète (DFT). Pour cela, il faut vérifier que la fréquence maximale du spectre soit inférieure à la moitié de la fréquence d'échantillonnage (Théorème de Nyquist) :

$$\sigma_{\max} < \frac{1}{2\delta x} \quad (2.19)$$

avec δ le pic de Dirac.

On obtient ainsi les expressions de la transformation par DFT du spectre en interférogramme :

2. LA SPECTROMÉTRIE INFRAROUGE À TRANSFORMÉE DE FOURIER

$$I(n\delta x) = \delta\sigma \sum_{k=0}^{N-1} S_e(k\delta\sigma) \exp\left(\frac{2i\pi nk}{N}\right) \quad (2.20)$$

et de l'interférogramme en spectre :

$$S_e(k\delta\sigma) = \delta x \sum_{k=0}^{N-1} I(n\delta x) \exp\left(-\frac{2i\pi nk}{N}\right) \quad (2.21)$$

2.2.3.3 Le profil instrumental

Le profil instrumental du spectromètre est le spectre obtenu par l'instrument à partir d'une raie monochromatique en tenant compte de ses limitations physiques.

La différence finie de chemin optique - due au déplacement fini du miroir mobile - entraîne la convolution du spectre théoriquement obtenu à l'équation 2.18 par une fonction sinus cardinal. Le spectre observé s'exprime ainsi :

$$S_{\text{obs}}(\sigma) = S_e(\sigma) * 2L \text{sinc}(2L\sigma) \quad (2.22)$$

pour une différence de chemin optique comprise entre $-L$ et L .

L'ouverture d'entrée finie - due à l'extension finie de la source lumineuse arrivant au spectromètre par une ouverture circulaire - a pour effet de rendre dépendantes les interférences se produisant dans l'interféromètre non seulement à la différence de chemin optique, mais aussi à l'angle que font les faisceaux lumineux avec l'axe optique. Soit σ_0 le nombre d'onde central d'un faisceau de lumière monochromatique et Ω_m l'angle solide intégré dans lequel se propage le faisceau lumineux, alors son spectre - et donc le profil instrumental - est donné par :

$$S(\sigma_0) = \left[\Omega_m \frac{2\pi}{\sigma_0 \Omega_m} \prod \left(\frac{2\pi(\sigma - \sigma_0(1 - \frac{\Omega_m}{4\pi}))}{\sigma_0 \Omega_m} \right) \right] * [2L \text{sinc}(2L\sigma)] \quad (2.23)$$

2.2.3.4 Le rapport signal sur bruit

L'interférogramme est le résultat d'une chaîne complexe de traitement électrique et électronique du flux de photons qui arrive sur le détecteur. Il est par conséquent sujet à de nombreuses sources de bruit. Certains bruits sont additifs (bruit de photon, bruit thermique) et s'ajoutent au signal alors que d'autres bruits sont multiplicatifs (bruit de source). Chaque type de bruit est caractérisé par la manière dont il dépend de l'intensité du signal. Ainsi, le bruit thermique est indépendant de l'intensité du signal alors que le bruit de source est proportionnel à celle-ci. Dans le cas de l'enregistrement des spectres d'absorption solaires par FTIR, le bruit prépondérant est le bruit de photon du à la statistique du comptage des photons qui atteignent le détecteur.

Cette section se focalisera donc sur la caractérisation de ce bruit en fonction des conditions d'enregistrement des spectres. Pour cela, il est nécessaire de définir les grandeurs suivantes :

- σ_{\min} et σ_{\max} : fréquences minimale et maximale du spectre enregistré, respectivement ;
- η : efficacité optique de l'instrument qui s'obtient en multipliant l'efficacité des miroirs par l'efficacité de la lame séparatrice ;
- η_m : efficacité de modulation de l'instrument qui dépend de la qualité de l'alignement du spectromètre ;
- η_q : efficacité quantique du détecteur qui se définit comme le rapport entre le nombre de photons détectés par seconde et par nombre d'onde et le nombre de photons incidents par seconde et par nombre d'onde ;
- Φ : surface du faisceau parallèle à l'intérieur du spectromètre ;
- Γ : excitation du corps noir liée à la radiance du corps noir (équation 2.10) par la relation :

$$\Gamma_{\sigma}(\mathbb{T}) = \frac{\pi}{hc\sigma} B_{\sigma}(\mathbb{T}) \quad (2.24)$$

On obtient alors l'expression du rapport signal sur bruit du spectre SN_s [Birk et Brault, 1988] :

$$\text{SN}_s = \eta_m \frac{S_e(\sigma)}{\bar{S}_e} \sqrt{\frac{\Phi \eta \eta_q \Gamma_{\bar{\sigma}}(\mathbb{T})}{2\sigma_{\max}(2L)^3} \frac{t}{\sigma_{\max} - \sigma_{\min}}} \quad (2.25)$$

Dans le cas des spectres d'absorption solaire, la durée d'enregistrement des spectres est le facteur limitant si l'on veut que les masses d'air échantillonnées ainsi que l'intensité du signal ne varient pas trop lors de l'enregistrement d'un spectre. Pour un instrument donné, une fois que l'alignement est optimisé (η_m maximum), pour obtenir un rapport signal sur bruit élevé, il faut donc [Barret, 2003] :

- enregistrer les spectres séquentiellement dans les différents domaines d'intérêt en utilisant des filtres optiques pour limiter la bande spectrale ($\sigma_{\max} - \sigma_{\min}$) ;
- limiter la résolution ($2L$) et la réduire à grand angle solaire zénithal lorsque la durée d'enregistrement est elle-même réduite.

2.2.3.5 Les avantages de la spectrométrie à transformée de Fourier

L'avantage essentiel de la spectroscopie par transformée de Fourier s'appelle l'avantage de Fellgett [Fellgett, 1951]. Dans un instrument dispersif conventionnel, chaque élément de résolution est observé seulement pendant la fraction du temps total d'enregistrement. La rapport signal sur bruit est alors proportionnel à $\sqrt{t/n}$ où t est le temps total d'enregistrement et n le nombre d'éléments spectraux résolus pendant ce temps t (c'est-à-dire la largeur totale du spectre

2. LA SPECTROMÉTRIE INFRAROUGE À TRANSFORMÉE DE FOURIER

à enregistrer divisé par la résolution utilisée). Dans un spectromètre à transformée de Fourier, chacun des éléments résolus est observé pendant tout le temps d'enregistrement, puisque toutes les fréquences atteignent le détecteur en continu. Ici, $n = 1$ et le rapport signal sur bruit est proportionnel à \sqrt{t} . L'avantage théorique entre les deux types de spectromètre est donc de \sqrt{n} .

Un autre avantage est dénommé l'avantage de Jacquinot [*Jacquinot et Dufour, 1948*]. Puisqu'il n'y a pas de fente dans un spectromètre à transformée de Fourier (contrairement à un spectromètre à réseau), Jacquinot a montré qu'il est théoriquement possible de laisser entrer plus de lumière dans un spectromètre à transformée de Fourier que dans un spectromètre classique.

2.2.4 Conclusion

Cette section a présenté les bases théoriques nécessaires à la compréhension du modèle direct permettant le calcul du spectre d'absorption à partir de l'état de l'atmosphère et des spécificités instrumentales. Les caractéristiques du spectre d'absorption infrarouge atmosphérique ont été décrites. En particulier, l'absorption des radiations infrarouges par les molécules atmosphériques et sa dépendance aux conditions de pression et de température ont été explicitées, ainsi que l'équation de transfert radiatif. Les principes de fonctionnement de l'instrument utilisé pour le calcul du spectre d'absorption infrarouge d'une source lumineuse - le FTS - ont été détaillés, ainsi que ses limitations physiques - différence de chemin optique et ouverture d'entrée finies - conditionnant son profil instrumental.

Le modèle direct du programme d'inversion SFIT2 est basé sur ces considérations théoriques et pratiques. Il simule les spectres d'absorption de plusieurs molécules atmosphériques grâce à un modèle raie par raie multicouche et à des sous-routines de calcul de transfert radiatif. De plus, il prend en compte le profil instrumental : le spectre est d'abord simulé par le modèle raie par raie et une transformation de Fourier lui est appliquée afin d'obtenir un interférogramme ; le profil instrumental est ensuite appliqué sur ce dernier, avant d'être à nouveau converti en spectre par transformée de Fourier.

2.3 La méthode d'inversion

2.3.1 Introduction

La méthode d'inversion exposée ici repose sur la méthode d'estimation optimale (OEM pour Optimal Estimation Method). Cette méthode est un algorithme générique qui a été développée par *Rodgers* [1976, 2000] pour la résolution de problèmes d'inversion atmosphériques. Elle permet d'inverser une équation connue (le modèle direct décrit à la section précédente) qui exprime un

état radiatif - dans notre cas : le spectre d'absorption infrarouge atmosphérique - à partir de la connaissance de l'état de l'atmosphère. Ce type de problème est généralement sous contraint, ou "mal posé", ce qui entraîne la multiplicité des solutions possibles. Afin de contraindre et de limiter ce nombre de solutions, l'OEM utilise un profil a priori de concentration de l'espèce considérée qui consiste en la meilleure connaissance que l'on possède du profil du gaz cible (valeurs moyennes et matrice de covariance) avant la mesure. L'un des avantages principaux de cette technique est qu'aucune hypothèse n'est faite sur la nature du vecteur d'état : il peut contenir à la fois des profils de différents constituants atmosphériques et des caractéristiques instrumentales. Les formalismes propres à cette méthode permettent en outre de quantifier la sensibilité de la mesure et son contenu en information et de séparer les composantes du profil qui sont contenues dans la mesure de celles qui proviennent de l'état a priori. D'autre part, ils permettent de calculer les erreurs résultantes du bruit sur la mesure et du lissage du profil réel par le système d'observation (instrument de mesure et algorithme d'inversion).

Dans le cas de l'inversion de profils atmosphériques à partir de spectres FTIR, la méthode d'inversion est une adaptation semi-empirique de la méthode d'estimation optimale. Dans l'algorithme SFIT2, les inversions sont effectuées sur une grille de 47 niveaux d'altitudes, allant de 50m a.s.l. à 100km.

Dans cette partie, les bases théoriques de la méthode d'estimation optimale sont d'abord détaillées (Section 2.3.2), puis les différentes sources d'erreur de l'inversion sont décrites (Section 2.3.3), enfin les paramètres de régularisation de la version semi-empirique de la méthode d'estimation optimale sont présentés (Section 2.3.4). Pour plus de détails sur les aspects théoriques, le lecteur est invité à se référer aux travaux de *Rodgers* [1990, 2000].

2.3.2 La méthode d'estimation optimale : bases théoriques

Soit \mathbf{x} le vecteur d'état de l'atmosphère, \mathbf{b} le vecteur contenant l'ensemble des autres paramètres du modèle (instrumentaux par exemple) et \mathbf{y} le vecteur de mesure, alors la relation entre \mathbf{x} et \mathbf{y} peut s'exprimer ainsi :

$$\mathbf{y} = \mathbf{F}(\mathbf{x}, \mathbf{b}) + \epsilon \quad (2.26)$$

\mathbf{F} étant la fonction correspondant au modèle direct et ϵ le vecteur correspondant au bruit sur la mesure. L'équation 2.26 peut être reformulée dans une forme simplifiée en linéarisant le modèle direct en fonction d'un état de référence $\mathbf{x}_0, \mathbf{b}_0$:

$$\mathbf{y} - \mathbf{F}(\mathbf{x}_0, \mathbf{b}_0) = \mathbf{K}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_0) + \mathbf{K}_b(\mathbf{b} - \mathbf{b}_0) + \epsilon \quad (2.27)$$

2. LA SPECTROMÉTRIE INFRAROUGE À TRANSFORMÉE DE FOURIER

K est la matrice des fonctions de poids dans laquelle chaque élément est la dérivée partielle d'un élément du modèle direct par rapport à un élément du vecteur d'état, et K_b est la matrice de sensibilité de la mesure aux paramètres du modèle :

$$K = \frac{\partial F}{\partial x}(x - x_0), \quad K_b = \frac{\partial F}{\partial b}(b - b_0) \quad (2.28)$$

Chaque ligne de la matrice K correspond à une mesure différente et les éléments le long des lignes représentent la sensibilité de chaque élément mesuré aux différents éléments du vecteur d'état.

Les matrices K et K_b n'étant pas nécessairement carrées et leurs vecteurs lignes étant interdépendants, l'équation 2.27 ne possède pas une unique solution. De plus, la présence de bruit sur la mesure ϵ induit une non unicité de l'observation conduisant à une non unicité de la solution. C'est la raison pour laquelle des informations a priori sur la solution sont nécessaire. L'approche utilisée par l'OEM est de combiner le vecteur de mesure et l'information a priori, pondérés de leurs covariances inverse respective. En pratique, chaque information a priori peut être considérée comme une "mesure virtuelle", fournissant une estimation x_a du vecteur d'état, de matrice de covariance S_a . Si le vecteur de mesure y est associé à une matrice de covariance S_ϵ , alors la covariance inverse de ce deuxième estimateur de x est donnée par $K^T S_\epsilon^{-1} K$. Ainsi, en combinant ces informations indépendantes provenant des mesures "virtuelle" (x_a) et "réelle" (y), on obtient l'estimateur de suivant :

$$\hat{x} = \frac{S_a^{-1} x_a + K^T S_\epsilon^{-1} y}{S_a^{-1} + K^T S_\epsilon^{-1} K} \quad (2.29)$$

de covariance :

$$\hat{S} = (S_a^{-1} + K^T S_\epsilon^{-1} K)^{-1} \quad (2.30)$$

Les éléments diagonaux de S_a et S_ϵ sont les variances des éléments du profil a priori et du vecteur de mesure, respectivement. Les éléments hors diagonaux contiennent les informations sur les inter-corrélations entre les différents éléments du vecteur. L'équation 2.29 permet d'exprimer la sensibilité du profil estimé \hat{x} aux variations du vecteur de mesure y :

$$\frac{\partial \hat{x}}{\partial y} = D = S_a K^T (K S_a K^T + S_\epsilon)^{-1} \quad (2.31)$$

Ce qui définit la matrice des fonctions de contribution D : chaque colonne de D est la contribution au profil inversé provenant d'un changement unité dans l'élément correspondant de y .

On obtient ainsi la sensibilité du profil estimé \hat{x} aux variations du vrai profil x :

$$\frac{\partial \hat{x}}{\partial x} = DK = A \quad (2.32)$$

La matrice A est appelée matrice des fonctions de moyennage. Elle est essentielle pour la caractérisation de la méthode d'inversion : elle fournit des informations sur la résolution et la gamme d'altitude pour laquelle le profil résultant de l'inversion est sensible au vrai profil. Les fonctions de moyennage elles-mêmes sont les lignes de la matrice A . Chaque élément du profil inversé est le résultat du produit du profil réel par la fonction de moyennage correspondante. Ainsi :

$$\hat{x} = x_a + A(x - x_a) \quad (2.33)$$

Cette expression montre que le profil résultant de l'inversion à une altitude donnée peut être exprimé comme la somme du profil a priori à l'altitude correspondante et de la déviation du vrai profil par rapport au profil a priori pondérée par la fonction de moyennage associée (ie. la ligne de A correspondante). La matrice des fonctions de moyennage d'un système d'observation idéal serait la matrice identité. Chaque fonction de moyennage est une fonction en forme de cloche dont la demi-largeur à mi-hauteur donne une indication sur la résolution verticale du profil résultant de l'inversion. Néanmoins, cette définition de la résolution a un sens seulement si la fonction de moyennage présente un maximum remarquable et raisonnablement proche de son altitude nominale ; dans le cas contraire, l'inversion n'est plus sensible aux variations du vrai profil et la majeure partie de l'information provient de l'a priori plutôt que de la mesure.

Il est également possible de caractériser les performances de la méthode d'inversion en effectuant une analyse de la quantité d'information. On définit ainsi le degré de liberté (DOF, pour "Degree Of Freedom") qui représente le nombre de quantités inconnues qui peuvent être déterminées de manière indépendante à partir de la mesure et de l'inversion, et qui est égal à la trace de la matrice A :

$$\text{DOF} = \text{Tr}(A) \quad (2.34)$$

2.3.3 Les erreurs d'inversion

La différence entre le profil estimé \hat{x} et le vrai profil x peut s'exprimer de la manière suivante :

$$\hat{x} - x = (A - I)(x - x_a) + DK_b(b - \hat{b}) + D(y - \hat{y}) \quad (2.35)$$

2. LA SPECTROMÉTRIE INFRAROUGE À TRANSFORMÉE DE FOURIER

où I est la matrice identité, \hat{b} le vecteur contenant les paramètres du modèle estimés et \hat{y} le spectre calculé correspondant au vecteur d'état estimé. L'équation sépare l'erreur totale sur le profil inversé en trois sources d'erreur différentes :

- L'erreur de lissage : l'erreur de lissage est la plus importante affectant les profils inversés ; elle provient du fait que, le problème étant mal posé, l'inversion a un nombre de DOF limité et ne permet pas de résoudre l'information à mieux que quelques km près (la résolution verticale effective) ;
- L'erreur sur les paramètres du modèle direct ;
- L'erreur sur la mesure : l'erreur sur la mesure est due à la présence de bruit sur le signal mesuré ;

On peut déterminer de plus les erreurs dues aux incertitudes sur le profil de température (influençant le profil des raies d'absorption - Section 2.2.2.2) et sur les espèces interférentes. Les erreurs systématiques doivent également être prises en comptes : erreur sur l'intensité des raies d'absorption, et erreurs sur l'élargissement par pression de ces raies.

2.3.4 La version semi-empirique de l'OEM et les paramètres de régularisation

La méthode utilisée dans ce travail pour l'inversion de profils à partir de spectres FTIR est une version semi-empirique de la méthode d'estimation optimale : on utilise une matrice de covariance a priori S_a ad hoc et une matrice de covariance de la mesure S_e diagonales. L'utilisation d'une matrice de covariance a priori S_a ad hoc diagonale est due au fait que les corrélations ou anti-corrélations réelles entre les concentrations de gaz cible dans les différentes couches atmosphériques ne sont pas connues. Les colonnes de la matrice de corrélation sont souvent modélisées par des fonctions gaussiennes ou exponentielles qui traduisent une décroissance rapide de la corrélation entre les différentes couches atmosphériques. Dans le cas de la matrice de covariance de la mesure, l'utilisation d'une matrice diagonale suppose que les bruits, par nature aléatoire, ne sont pas corrélés. Le choix des matrices S_a et S_e doit être soigneusement réalisé car il détermine les caractéristiques des profils inversés en terme de contenu en information (DOF) et en terme d'erreur. Pour effectuer ce choix, on doit déterminer la variabilité du profil a priori à l'aide de mesures effectuées par d'autres instruments afin de déterminer les éléments diagonaux de S_a (variances). Il est également nécessaire de fixer une longueur de corrélation entre les différentes tranches d'atmosphère, représentant les interdépendances entre les concentrations à différentes altitudes le long de la colonne atmosphérique. Enfin, on fixe la matrice de covariance de la mesure S_e déterminée par le rapport signal sur bruit d'inversion effectif SN_{inv} . Lorsque SN_{inv} augmente, la contrainte sur la mesure augmente et le système va reproduire plus préférentiellement la mesure (diminution de l'erreur de lissage) ; lorsque dépasse un seuil à déterminer, le système est poussé

à rechercher de l'information dans des composantes du signal correspondant essentiellement à l'erreur sur la mesure, ce qui conduit à l'obtention de profils inversés éloignés de la réalité (augmentation de l'erreur de mesure).

Les paramètres de régularisation (S_a et SN_{inv}) utilisés pour l'obtention de profils de CO sont présentés Section 2.4.

2.3.5 Conclusion

La méthode d'inversion permettant d'obtenir des profils de gaz traces à partir de la mesure de spectre d'absorption IR a été présentée dans cette section. Elle repose sur une version semi-empirique de la méthode d'estimation optimale développée par *Rodgers* [1976] implémentée dans le programme d'inversion SFIT2. Cette méthode est basée sur la combinaison de la mesure et d'informations a priori sur le profil du gaz cible, informations nécessaires afin de compléter l'information limitée contenue dans la mesure. La mesure consiste non seulement en un vecteur des quantités mesurées mais aussi en une matrice de covariance qui représente l'erreur sur ces mesures. L'état a priori consiste quant à lui en un vecteur d'état a priori et en une matrice de covariance a priori qui représente idéalement la variabilité réelle de l'état mesuré. Cette variabilité réelle n'étant pas connue, on utilise des matrices de covariance a priori et de mesure ad hoc (ou semi-empiriques). La valeur des variabilités pour chaque niveau d'altitude indiquées sur la matrice de covariance a priori ad hoc, ainsi que la valeur du rapport signal sur bruit effectif, conditionnent l'importance du signal mesuré relativement à l'a priori, et influent directement sur le DOF moyen et les erreurs des profils inversés obtenus.

Une partie des travaux effectués dans le cadre de cette thèse repose sur le calcul de profils de concentration de CO à la verticale de la Réunion. Ils ont pu être obtenus par l'organisation de campagnes FTIR à la Réunion en collaboration avec l'IASB. La section suivante se propose de présenter les différentes campagnes menées dans le cadre de cette collaboration, le FTIR utilisé, les paramètres retenus pour l'inversion des spectres d'absorption IR ainsi que la caractérisation des profils de CO résultant.

2.4 Les campagnes FTIR à la Réunion

2.4.1 Introduction

Les sections précédentes ont permis de présenter les principes de fonctionnement du FTIR ainsi que les théories relatives à l'établissement des modèles direct et inverse permettant l'obtention de profils de concentration de gaz atmosphériques. La présente section se focalise sur les aspects concrets et les paramètres qui ont permis de mettre en œuvre des campagnes de mesure

2. LA SPECTROMÉTRIE INFRAROUGE À TRANSFORMÉE DE FOURIER

FTIR à la Réunion et d'inverser les spectres obtenus afin de calculer des profils de concentration de CO.

En 2004, 2007 et de 2009 à 2011, trois campagnes FTIR ont été réalisées à la Réunion en collaboration avec l'équipe de Martine de Mazière de l'IASB. Après une période de formation instrumentale à l'IASB auprès de Christian Hermans (IASB), j'ai pu prendre part à cette dernière campagne (2009-2011) en participant à l'installation, l'alignement et la maintenance du FTIR utilisé. Un document a été rédigé avec Jean-Marc Metzger (OPAR) afin de permettre à de futurs intervenants de procéder à l'alignement du FTIR.

La section 2.4.2 présente les caractéristiques techniques du FTIR utilisé lors des trois campagnes réunionnaises. La section 2.4.3 se focalise sur la stratégie d'inversion, le profil a priori et les paramètres de régularisation retenus dans le cadre de l'obtention de profil de CO à la verticale de la Réunion. La section 2.4.4 expose les résultats de l'étude de la sensibilité des inversions ainsi réalisées, et les bilans d'erreur résultant.

2.4.2 Le FTIR utilisé

Le FTIR utilisé lors des campagnes menées à la Réunion est un Bruker 120M (Figure 2.8). Lors des campagnes 2004 et 2007, il était installé sur le toit de l'Université de Saint Denis de la Réunion entre le 7 août et le 26 octobre 2004 et entre le 11 mai et le 13 décembre 2007, dans un container à air conditionné. Lors de la campagne 2009-2011, il était installé (et l'est encore à l'heure où j'écris ces lignes) dans un local de l'un des bâtiments du LACy ; ses mesures ont débuté le 2 Juin 2009 et se poursuivent encore.

Le FTIR est équipé d'un solar tracker - permettant de suivre le mouvement du soleil et de focaliser la lumière solaire sur les optiques de l'instrument - et est monitoré et commandé par le système BARCOS (Bruker Automation and Remote COntrol System) développé à l'IASB afin de contrôler l'instrument à distance (ce qui est rendu possible via Internet et l'utilisation de VNC par tunnel VPN). Deux webcams ont été installées, une à l'extérieur pour vérifier l'état d'ouverture ou de fermeture du panneau de protection, et l'autre à l'intérieur du local (Figure 2.9).

Le système BARCOS exécute un script journalier qui lance la mesure. Il interrompt le programme d'observation et ferme la protection du solar tracker lorsque ce dernier n'est plus capable de suivre le soleil à cause de la présence de nuages ou de pluie, et il relance la mesure lorsque le soleil réapparaît. Il est également équipé d'une petite station météorologique permettant de monitorer et d'enregistrer les conditions météo, ainsi que d'autres paramètres d'état de l'instrument. Ces données météorologiques sont archivées afin de caractériser la qualité des spectres. Par exemple, si les conditions météo ont changé fortement au cours de l'enregistrement

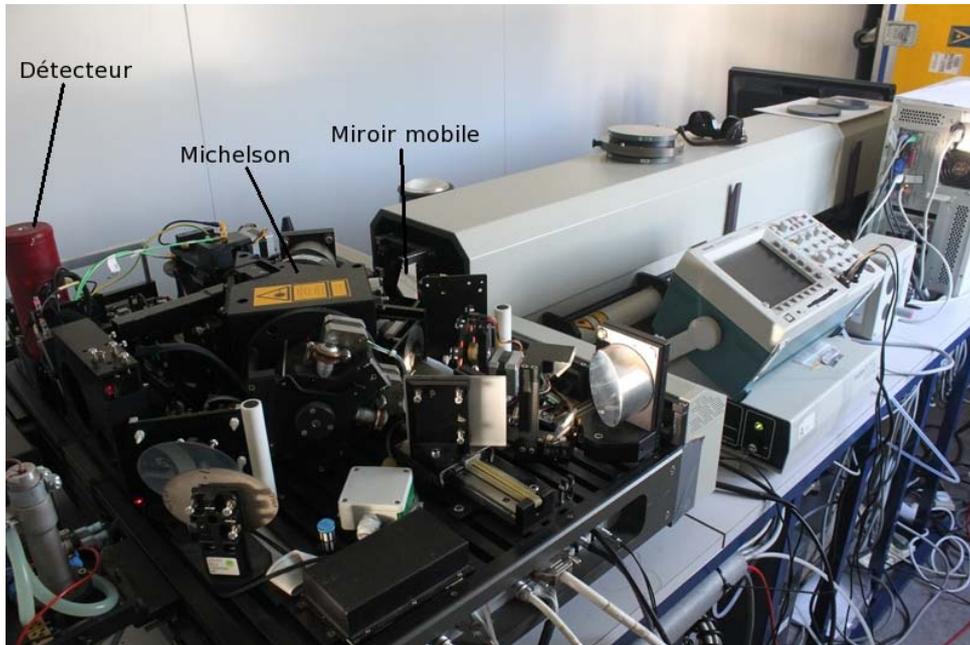


Figure 2.8: Photo du FTIR Bruker 120M en cours d'alignement à la Réunion. -



Figure 2.9: Photo du Sun Tracker et de la station météo à la Réunion -

2. LA SPECTROMÉTRIE INFRAROUGE À TRANSFORMÉE DE FOURIER

d'un interférogramme, le spectre qui en est dérivé sera de mauvaise qualité et devra probablement être rejeté au cours de l'analyse (inversion) des spectres. Les mesures nécessitent en effet un ciel clair et dégagé, ce qui limite le nombre de jours d'observation.

Les campagnes de mesures nécessitent plusieurs interventions humaines. En effet, les détecteurs du FTIR sont refroidis à l'azote liquide, ce qui implique le remplacement et le remplissage des bombes régulièrement. De plus, certains dépannages se sont avérés nécessaires au cours des campagnes afin d'assurer le bon fonctionnement de l'appareil et la qualité des mesures : fermeture manuelle du panneau de protection extérieur du solar tracker, dépannage du moteur permettant la rotation du solar tracker, relance du PC de pilotage et de l'instrument, vérification de l'état du réseau informatique, réparation du compresseur d'air sec, rétablissement du vide dans les détecteurs, remplacement des détecteurs, réaligement du spectromètre. Lors de la campagne 2007, une panne sur les cartes électroniques causée par une défaillance sévère du réseau électrique de l'université n'a pu être réparée ; c'est la raison pour laquelle les mesures lors de cette campagne s'étalent du 24/05/2007 au 15/10/2007.

Le domaine spectral couvert par les mesures FTIR s'étale de 600 cm^{-1} à 4300 cm^{-1} (2300 à 1700 nm) avec une résolution maximale de 0.0036 cm^{-1} (0.0143 nm). La différence de chemin optique maximale est de 250 cm.

2.4.3 La stratégie d'inversion, le profil a priori et les paramètres de régularisation

Dans ce travail, la stratégie d'inversion pour la molécule de CO a été légèrement améliorée en comparaison de celle décrite dans *Senten et al.* [2008] afin d'augmenter le DOF (Section 2.3.2) et d'améliorer le bilan d'erreur. Le Tableau 2.1 liste les paramètres d'inversion principaux : les micro fenêtres dans lesquelles les spectres ont été analysés, les profils de concentration des molécules interférentes simultanément simulés ainsi que la résolution spectrale et le rapport signal sur bruit effectif SN_{inv} (Section 2.3.4). Sont également listés les éléments diagonaux et les demi largeurs à mi-hauteur (HWHM) définissant les longueurs de corrélation inter-couches de la matrice de covariance a priori \mathbf{S}_a adoptée pour l'inversion (Section 2.3.4).

Le profil a priori élaboré pour le CO (Figure 2.10) est basé sur les données MOPITT : c'est une moyenne des profils verticaux MOPITT de 2000 à 2004 entre 15 de longitude et 10 de latitude autour de la Réunion. Le profil obtenu entre 0 et 14km a ensuite été complété par les données U.S. Standard Atmosphere (1976) de 14 à 100km.

2.4.4 Contenu en information, sensibilité et bilan d'erreurs

Les degrés de liberté moyens obtenus sont 2,96, 3,06 et 3,14 pour les campagnes 2004, 2007 et 2009-2011, respectivement, ce qui indique qu'il y a approximativement trois informations

Molécule	CO
Microfenêtres [cm^{-1}]	2057,70 - 2057,91
	2069,55 - 2069,72
	2157,40 - 2159,20
	2140,40 - 2141,40
	2165,37 - 2165,85
	2168,84 - 2169,02
Variabilité [%]	20
SN_{inv}	150
HWHM [km]	4
Résolution spectrale [cm^{-1}]	0,0036
Espèces interférantes	$\text{O}_3, \text{OCS}, \text{CO}_2, \text{N}_2\text{O}, \text{H}_2\text{O}, \text{CO}$ solaire
DOF moyens (année)	2,96 (2004) ; 3,06 (2007) ; 3,14 (2009-2011)

Table 2.1: Paramètres d'inversion - Résumé des paramètres d'inversion utilisés pour l'obtention de profils de CO par FTIR à la Réunion en 2004, 2007 et 2009-2011. La variabilité représente les éléments diagonaux de la matrice de covariance a priori ad hoc S_a et HWHM est la longueur de corrélation entre les couches spécifiée dans la matrice S_a .

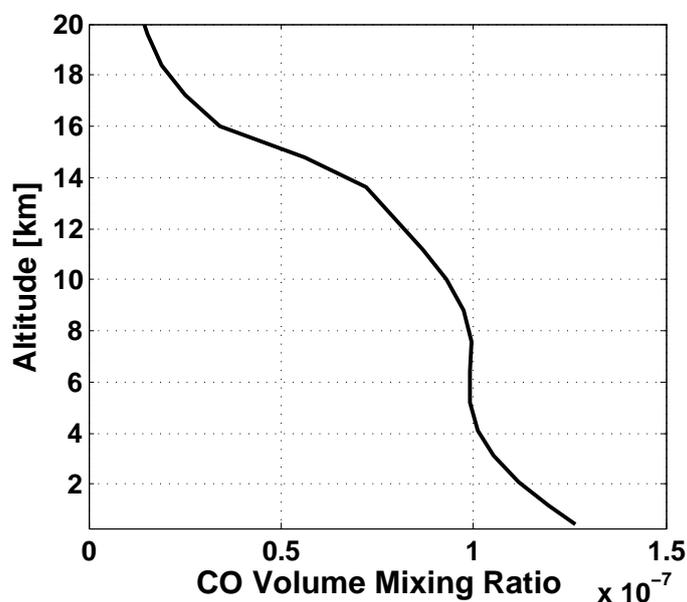


Figure 2.10: Profil a priori de CO utilisé pour l'inversion. -

2. LA SPECTROMÉTRIE INFRAROUGE À TRANSFORMÉE DE FOURIER

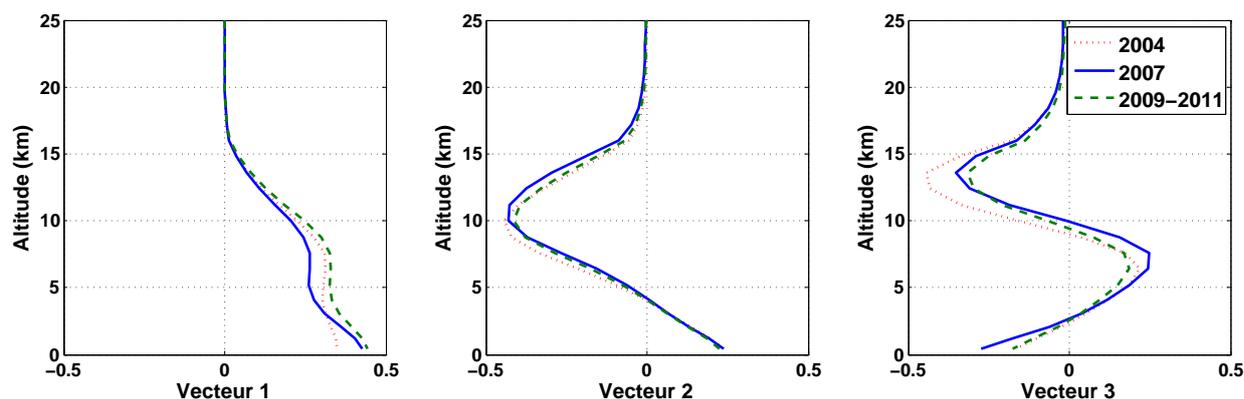


Figure 2.11: Vecteurs propres de la fonction de moyennage - Les trois vecteurs propres les plus représentatifs de la matrice des fonctions de moyennage pour les campagnes 2004, 2007 et 2009-2011, associés aux valeurs propres les plus élevées.

indépendantes contenues dans la mesure. Afin d'exploiter les profils FTIR, il est nécessaire de déterminer dans quelle mesure les inversions pour chaque couche d'altitude résulte de la mesure - c'est à dire non pas du profil a priori - et sont décorréées des autres couches. Les trois vecteurs propres les plus significatifs de la matrice des fonctions de moyennage, ainsi que les valeurs propres associées, fournissent cette information : les structures des profils correspondants à ces vecteurs peuvent être considérés comme étant mesurés indépendamment (Section 2.3.2). La Figure 2.11 montre les trois vecteurs propres les plus représentatifs de la matrice des fonctions de moyennage pour les campagnes 2004, 2007 et 2009-2011, associés aux valeurs propres les plus élevées. Les formes des vecteurs décrivent les couches des profils de CO qui peuvent être considérées comme indépendantes : 0-5 km, 5-11 km et 11-17 km.

La Figure 2.12 présente les fonctions de moyennage correspondantes à chacune de ces trois couches pour les trois campagnes. Les mesures FTIR sont particulièrement sensibles aux couches 0-3 km, 7-11 km et 13-17 km. La Figure 2.13 montre la courbe de sensibilité qui, pour chaque altitude, correspond à la somme des éléments des fonctions de moyennage pour cette altitude. On peut voir sur cette figure que la mesure contribue pour plus de 90% au profil inversé jusqu'à environ 17 km. C'est la raison pour laquelle dans la suite de cette étude les mesures FTIR ne sont prises en compte que jusque 17 km.

Le Tableau 2.2 résume le bilan d'erreur pour les données des trois campagnes FTIR. Sont présentées pour chaque colonne partielle 0-5 km, 5-11 km et 11-17 km ainsi que pour la colonne totale l'erreur due aux incertitudes sur le profil de température, l'erreur sur les espèces interférentes, l'erreur sur le modèle direct, l'erreur de mesure, l'erreur de lissage, l'erreur sur l'angle solaire zénithal, l'erreur sur l'intensité des raies d'absorption, l'erreur sur l'élargissement

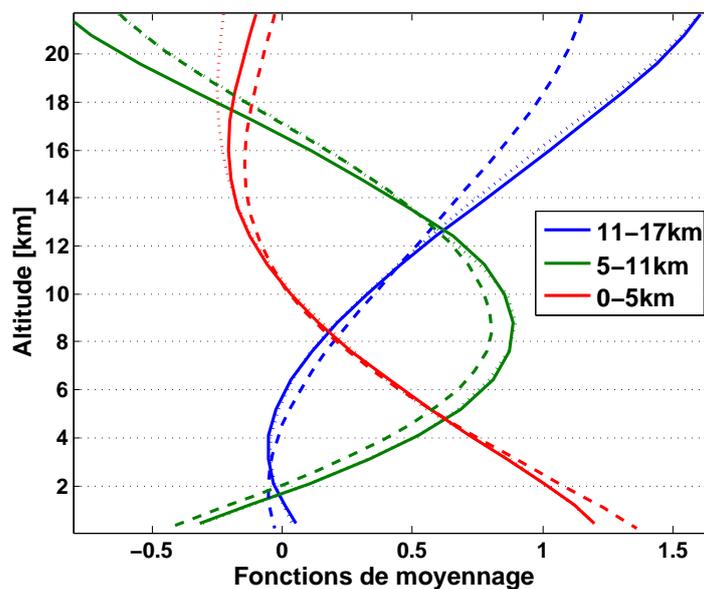


Figure 2.12: Fonctions de moyennage - Fonctions de moyennage des colonnes partielles FTIR (en $\text{mol.cm}^{-2}/\text{mol.cm}^{-2}$, sans dimension) pour les campagnes 2004 (lignes pointillés), 2007 (lignes continues) et 2009-2011 (lignes tiretées).

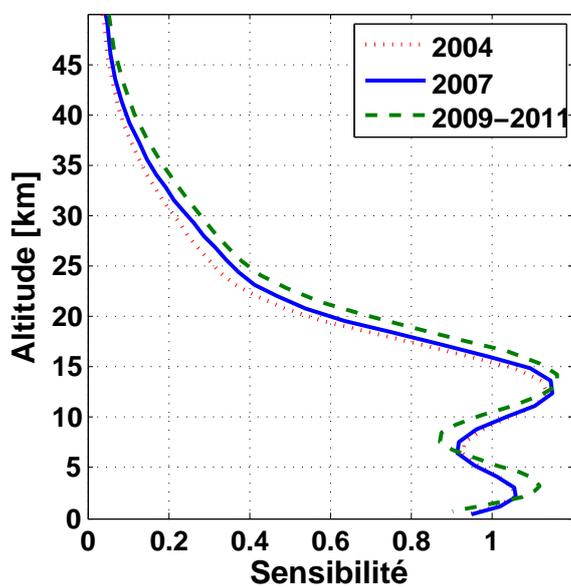


Figure 2.13: Sensibilité de l'inversion - Courbe de sensibilité de l'inversion (somme des fonctions de moyennage) pour les campagnes FTIR 2004, 2007 et 2009-2011.

2. LA SPECTROMÉTRIE INFRAROUGE À TRANSFORMÉE DE FOURIER

des raies du à la pression (Section 2.3.3).

2.4.5 Conclusion

Les caractéristiques techniques du FTIR utilisé lors des trois campagnes FTIR menées à la Réunion ont été présentées, ainsi que les paramètres utilisés pour mener à bien l'inversion des spectres mesurés. Ces campagnes et le choix de ces paramètres d'inversion ont permis de caractériser l'évolution de la distribution verticale du CO dans trois colonnes partielles. Enfin, le bilan d'erreur sur les concentrations de CO calculé a été présenté pour chacune des campagnes.

2.5 Conclusions du chapitre 2

Ce chapitre a présenté les théories et techniques permettant de déterminer la concentration de gaz atmosphériques absorbant les radiations IR. Le modèle direct, décrivant le lien de l'état de l'atmosphère vers le spectre d'absorption mesuré a été détaillé au travers de la description des raies d'absorption IR - résultant des transitions de vibration-rotation des molécules atmosphériques - et de la dépendance de leur largeur en fonction de la pression, ainsi que des principes et limitations de l'instrument permettant ces mesures : le FTS. La méthode d'inversion, permettant de passer du spectre d'absorption mesuré au profil de concentration de gaz cibles, a ensuite été détaillée, ainsi que les outils permettant de caractériser les inversions (sensibilité, contenu en information et bilan d'erreur). Enfin, les campagnes FTIR menées à la Réunion en 2004, 2007 et de 2009 à 2011 ont été présentées, ainsi que les spécificités de l'instrument utilisé, les paramètres choisis pour le calcul de profils de CO et les éléments permettant de caractériser les résultats de l'inversion.

2004										
Colonne Partielle [km]	Erreur Temp. [%]	Erreur espèces interf. [%]	Erreur modèle direct [%]	Erreur mesure [%]	Erreur lissage [%]	Erreur angle solaire [%]	Erreur aléatoire totale [%]	Erreur intensité rate [%]	Erreur élargis. pression [%]	Erreur systém. totale [%]
0-5	1.92	0.34	0.92	1.15	3.79	0.33	4.52	4.78	1.89	5.14
5-11	0.73	0.39	1.40	1.53	5.42	0.24	5.87	7.01	3.12	7.67
11-17	0.44	0.26	1.53	2.17	5.11	0.39	5.79	12.50	2.29	12.71
17-100	1.10	1.52	0.36	2.08	6.80	0.11	7.36	3.48	2.11	4.07
0-100	0.69	0.05	0.17	0.46	0.37	0.13	0.93	3.05	0.16	3.06

2007										
Colonne Partielle [km]	Erreur Temp. [%]	Erreur espèces interf. [%]	Erreur modèle direct [%]	Erreur mesure [%]	Erreur lissage [%]	Erreur angle solaire [%]	Erreur aléatoire totale [%]	Erreur intensité rate [%]	Erreur élargis. pression [%]	Erreur systém. totale [%]
0-5	2.26	0.31	1.03	0.73	3.81	0.36	4.63	4.29	3.55	5.57
5-11	0.86	0.43	1.62	1.25	5.18	0.32	5.66	5.94	4.23	7.29
11-17	0.45	0.50	1.54	1.79	4.97	0.37	5.55	11.78	3.79	12.37
17-100	1.35	1.74	0.44	1.71	6.51	0.16	7.09	8.26	1.50	8.40
0-100	1.10	0.06	0.27	0.15	0.11	0.34	1.20	2.40	0.42	2.44

2009-2011										
Colonne Partielle [km]	Erreur Temp. [%]	Erreur espèces interf. [%]	Erreur modèle direct [%]	Erreur mesure [%]	Erreur lissage [%]	Erreur angle solaire [%]	Erreur aléatoire totale [%]	Erreur intensité rate [%]	Erreur élargis. pression [%]	Erreur systém. totale [%]
0-5	2.23	0.37	0.96	1.06	3.89	0.40	4.78	4.12	3.25	5.24
5-11	1.08	0.26	1.53	1.26	5.07	0.34	5.57	5.59	3.76	6.74
11-17	0.67	0.43	1.41	2.02	5.11	0.36	5.74	10.02	2.69	10.37
17-100	1.12	2.06	0.39	1.97	6.72	0.19	7.40	7.80	1.22	7.89
0-100	0.82	0.06	0.24	0.24	0.16	0.38	0.98	2.32	0.28	2.34

Table 2.2: Bilan d'erreur de l'inversion - Bilan d'erreur des colonnes totales et partielles de CO pour les campagnes FTIR 2004, 2007 et 2009-2011 à la Réunion.

2. LA SPECTROMÉTRIE INFRAROUGE À TRANSFORMÉE DE FOURIER

3

Téledétection des aérosols par photomètre et lidar

3.1 Introduction

Il a été vu au chapitre précédent que la radiation IR contenue dans le rayonnement solaire interagit avec les molécules atmosphériques par des phénomènes d'absorption énergétique (Section 2.2.2). Le rayonnement solaire traversant l'atmosphère est également diffusé et absorbé dans les régions spectrales de l'ultraviolet et du visible. En atmosphère claire, la diffusion est produite par les molécules d'air et par des particules d'aérosol. L'absorption de l'atmosphère claire est d'abord due à quelques gaz atmosphériques, principalement la vapeur d'eau, l'ozone et le dioxyde de carbone. Les effets absorbants des particules d'aérosol sont souvent moins marqués mais loin d'être négligeables. Dans les régions spectrales qui séparent les diverses bandes d'absorption due aux gaz à grande variabilité (CO_2 , H_2O , O_3 , $\text{CH}_4\dots$), l'extinction due aux particules d'aérosol domine les autres sources atmosphériques d'extinction du rayonnement. Ces régions, appelées fenêtres atmosphériques (Figure 3.1), sont caractérisées par une transmittance atmosphérique élevée.

Des campagnes de téledétection des aérosols ont été menées dans le cadre de cette thèse avec des instruments (photomètre et lidar) et techniques d'exploitation des mesures se basant sur les phénomènes d'extinction se produisant à des longueurs d'onde de l'UV et du visible appartenant à ces fenêtres spectrales où l'extinction due aux aérosols prédomine. La première partie de ce chapitre se propose donc de présenter les bases théoriques nécessaires à la compréhension des phénomènes d'extinction atmosphérique (ie absorption et diffusion) dans l'UV et le visible. La deuxième partie de ce chapitre présente le principe de fonctionnement du photomètre ainsi que les deux types de photomètre qui ont été utilisés (le CIMEL et le MICROTOPS II), les

3. TÉLÉDÉTECTION DES AÉROSOLS PAR PHOTOMÈTRE ET LIDAR

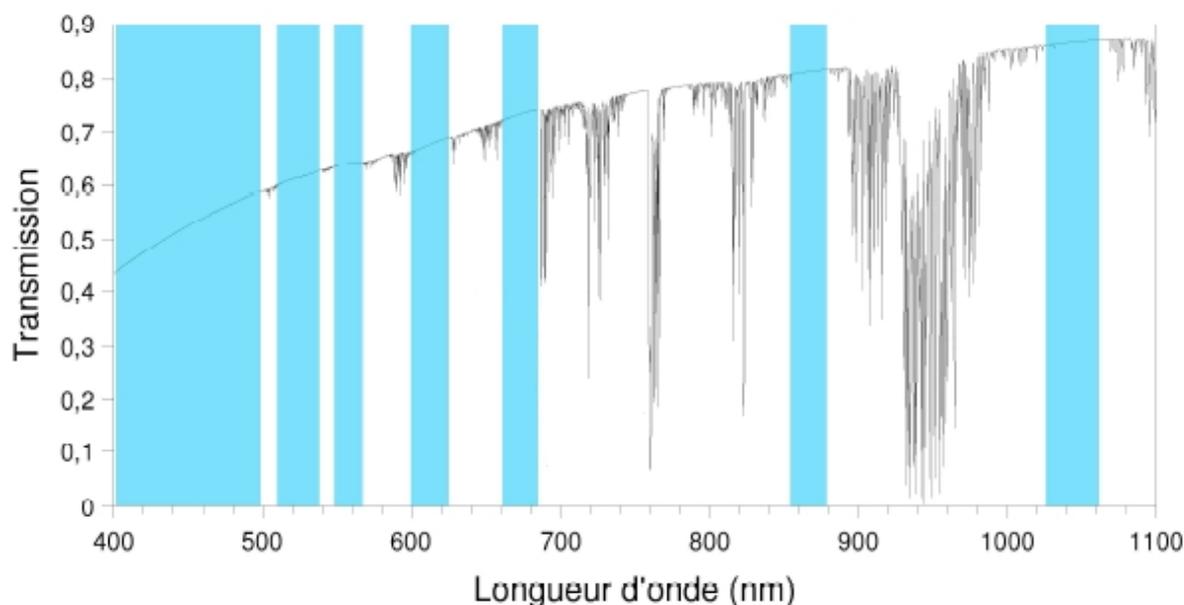


Figure 3.1: Transmission atmosphérique dans le visible - Transmission modélisée par le modèle de transfert radiatif Modtran [Anderson et al., 1995] pour une atmosphère tropicale [McClatchey et al., 1972]. Les zones bleues correspondent aux bandes spectrales peu influencées par les gaz à grande variabilité.

informations optiques sur les aérosols détectés qui peuvent en être tirées et les réseaux de mesures auxquels ils appartiennent. Le principe de fonctionnement du lidar est ensuite détaillé, ainsi que l'équation lidar et son inversion à l'aide de la synergie lidar-photomètre. Enfin, les campagnes de mesure mettant en jeu ces deux instruments (dont les résultats sont détaillés au Chapitre 6) sont présentées.

3.2 L'extinction atmosphérique

3.2.1 Introduction

Dans l'atmosphère, les molécules des différents constituants gazeux ainsi que les différentes particules présentes en suspension (aérosols) sont responsables de l'extinction atmosphérique.

Comme vu dans le chapitre précédent dans le cas de l'absorption IR, une molécule peut absorber un photon de fréquence particulière pour transiter d'un état d'énergie quantifiée à un autre. Dans l'UV et le visible, les transitions mises en jeu sont des transitions électroniques (Figure 2.2).

La diffusion est un phénomène qui dépend fortement du rapport entre le rayon de la particule r (supposée sphérique) et la longueur d'onde λ (on travaillera dans ce chapitre en utilisant la

longueur d'onde λ préférentiellement au nombre d'onde σ ; on rappelle que $\lambda = \frac{2\pi}{\sigma}$) du rayonnement incident ainsi que de la nature de la particule (via son indice de réfraction) et sa taille (Figure 3.2) :

- Quand la taille de la particule diffusante est relativement petite par rapport à la longueur d'onde du rayonnement incident ($r < \frac{\lambda}{10}$), l'intensité du rayonnement diffusée est la même dans les directions arrière (rétrodiffusion) et avant (diffusion avant). Ce type de diffusion est connu sous le nom de diffusion Rayleigh.
- Quand la taille des particules devient plus grande telle que $\frac{\lambda}{10} < r < 10\lambda$, la distribution angulaire de l'intensité de diffusion devient plus complexe avec plus d'énergie diffusée en avant. Ce type de diffusion est décrit par la théorie de la diffusion de Mie.
- Quand la taille des particules est très grande par rapport à la longueur d'onde ($r > 10\lambda$) la diffusion de la lumière est dite non sélective ou géométrique. Ce type de diffusion ne dépend pas de la longueur d'onde incidente.

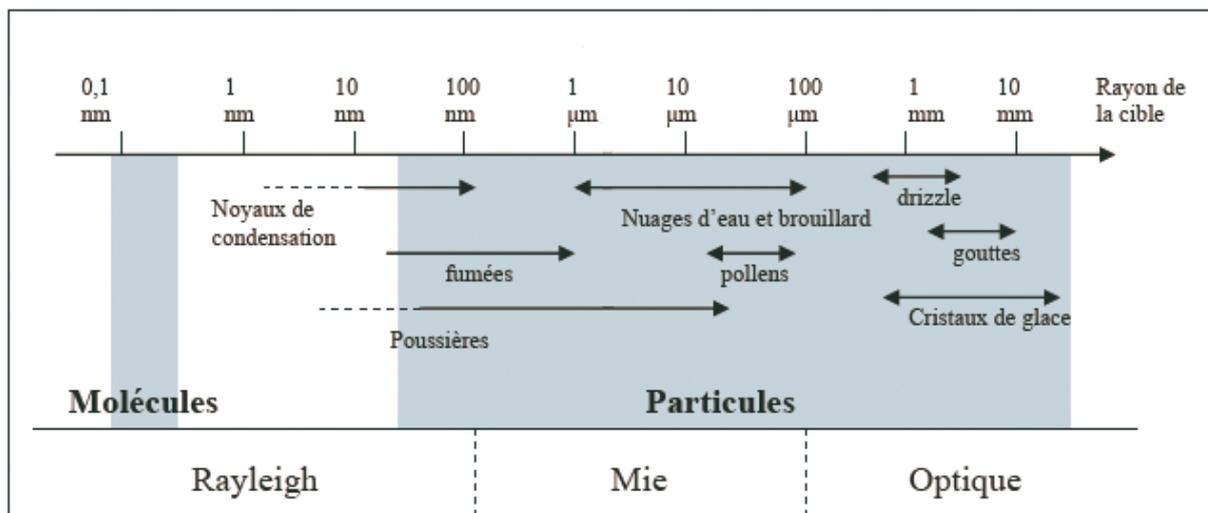


Figure 3.2: Représentation de la taille de particules communes et régime de diffusion correspondant - [Measures, 1984].

Cette section se focalise sur les bases théoriques nécessaires à la compréhension des techniques de télédétection explicitées ci-après ; cependant, avant d'entrer plus avant dans le vif du sujet, il peut être utile de définir quelques grandeurs :

- Section efficace [m^2] : la section efficace représente la surface effective d'interaction couverte par une particule de telle sorte que le rapport de cette surface sur une surface de référence de $1 m^2$ soit égale à la probabilité d'interaction entre la radiation lumineuse et la particule. Il sera par la suite question de section efficace d'extinction (ς), de diffusion (ς_d), et d'absorption (ς_a) (avec $\varsigma = \varsigma_d + \varsigma_a$).

3. TÉLÉDÉTECTION DES AÉROSOLS PAR PHOTOMÈTRE ET LIDAR

- Coefficient [m^{-1}] : le coefficient est l'expression de l'intégration sur la taille des particules de la section efficace multipliée par la concentration par unité de taille de particule. Il sera donc question dans la suite de coefficients d'extinction (α), de diffusion (α_d) et d'absorption (α_a) (avec $\alpha = \alpha_d + \alpha_a$).
- Epaisseur optique : l'épaisseur optique d'une couche atmosphérique entre les altitudes z_1 et z_2 est définie par la fraction de rayonnement électromagnétique diffusée ou absorbée par les composants de la couche traversée. Elle peut s'exprimer en fonction du coefficient correspondant :

$$\tau_i = \int_{z_1}^{z_2} \alpha_i(z) dz \quad (\text{avec } i = [] \text{ ou } d \text{ ou } a) \quad (3.1)$$

Les épaisseurs optiques d'extinction (τ), de diffusion (τ_d), et d'absorption (τ_a) seront utilisées dans la suite (avec $\tau = \tau_d + \tau_a$).

3.2.2 Absorption

L'absorption du rayonnement incident se fait à l'échelle moléculaire. Une molécule absorbe un photon lorsque celui-ci lui permet de passer d'un état d'énergie quantifié à un autre. Le coefficient d'absorption total α_a est lié à la section efficace de la raie d'absorption ς_a par :

$$\alpha_a(\lambda) = \int \varsigma_a(r) N(r) dr \quad (3.2)$$

avec $N(r)dr$ la densité de particules ayant un rayon compris entre r et $r + dr$.

3.2.3 Diffusion

Si la distance entre les particules diffusantes est grande par rapport à la taille des particules, la diffusion par chacune de ces particules prises individuellement n'est pas affectée par la présence des autres particules dans le milieu diffusant. C'est en effet le cas dans l'atmosphère terrestre. Ainsi, la diffusion tout au long d'un trajet atmosphérique peut être approximée en utilisant un modèle de diffusion propre pour chacun des deux types de diffuseurs : la diffusion par les molécules (ou diffusion Rayleigh) et la diffusion par les aérosols (ou diffusion de Mie). Une partie de l'énergie diffusée peut être rediffusée de nouveau une ou plusieurs fois avant de quitter le milieu diffusant, ceci est connu sous le nom de la diffusion multiple. Dans la plupart des cas, l'effet de la diffusion multiple sur l'intensité du faisceau incident est à peine perceptible surtout dans une atmosphère assez claire [McCartney, 1976 ; Minnaert, 1993].

La Figure 3.3 montre l'évolution de l'indicatrice de diffusion pour des particules sphériques de différentes tailles ; elle permet de mettre en évidence la dépendance de la diffusion de la lumière par une particule en fonction de sa taille. En effet, une particule de taille très petite

devant la longueur d'onde ($r < \frac{\lambda}{10}$) aura tendance à diffuser le rayonnement électromagnétique de façon symétrique dans un angle solide 4π . En revanche, si la taille de la particule augmente, l'énergie diffusée sera concentrée en avant dans la direction du rayonnement incident selon un diagramme plus complexe où la rétrodiffusion (diffusion arrière) sera moins importante que dans le premier cas avec l'apparition de maxima et minima secondaires de diffusion dans d'autres directions. C'est la taille de la particule supposée sphérique et caractérisée par son rayon r qui va déterminer le type de diffusion de la lumière.

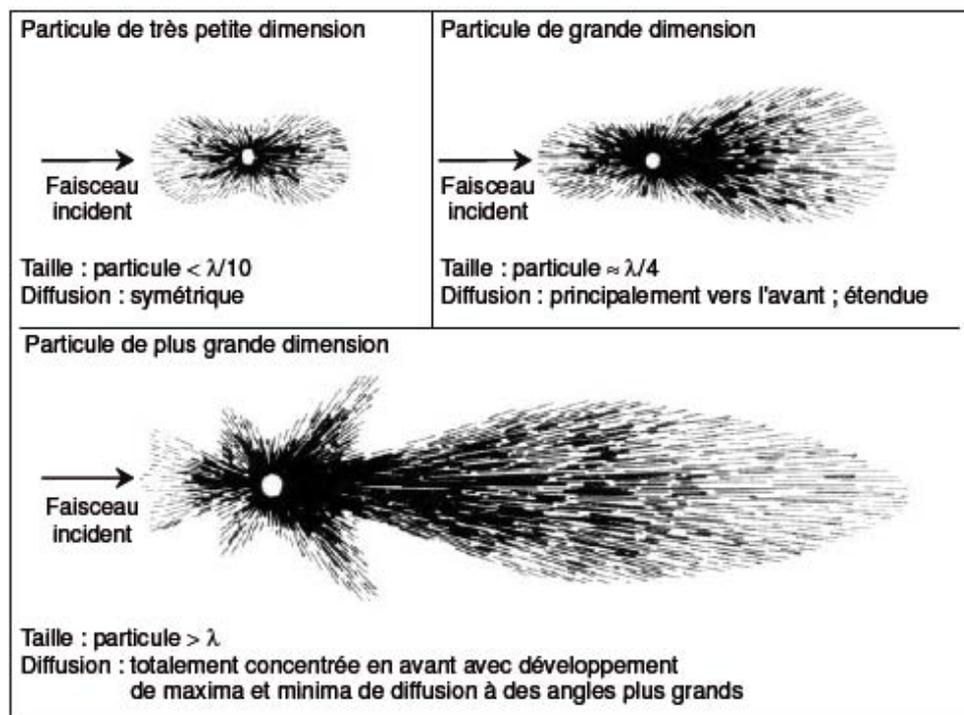


Figure 3.3: Indicatrice de diffusion pour différentes tailles de particules - [McCartney, 1976]

Dans le cadre des travaux réalisés pendant cette thèse, seuls les processus de diffusion élastique (ie. l'onde diffusée a la même longueur d'onde que l'onde incidente) ont été considérés ; cette section présentera donc les bases théoriques de la diffusion de Mie et de la diffusion Rayleigh.

3.2.3.1 La diffusion particulaire ou diffusion de Mie

La diffusion de Mie intervient quand la taille des particules est du même ordre de grandeur que la longueur d'onde du rayonnement incident. Cette théorie peut être appliquée aux aérosols, ces derniers étant considérés comme composés de particules isotropes, sphériques et homogènes.

3. TÉLÉDÉTECTION DES AÉROSOLS PAR PHOTOMÈTRE ET LIDAR

Les fréquences du rayonnement incident et diffusé sont supposés identiques (diffusion élastique). Tous les effets faisant intervenir des transitions quantiques par les centres diffuseurs ne seront pas considérés. De plus, les particules sont supposées indépendantes. Cette hypothèse signifie que les centres diffuseurs ne sont pas positionnés selon une structure ou un ordre précis, ce qui évite les déphasages systématiques qui donnent lieu à de phénomènes d'interférences.

La diffusion de la lumière par une particule sphérique homogène et isotrope est le principal cas particulier dont la solution exacte a été donnée par Gustave Mie en 1908. Cette théorie permet de décrire, entre autre, toutes les gouttelettes liquides présentes dans l'atmosphère ainsi que les différents types d'aérosols considérés comme constitués de particules sphériques.

Soit $\alpha_d^p(\lambda, \theta)$ [$\text{m}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$] le coefficient de diffusion particulaire dans la direction θ ; il s'exprime de la manière suivante pour des particules sphériques [Mie, 1908 ; Measures, 1984] :

$$\alpha_d^p(\lambda, \theta) = \int \frac{\partial \zeta_d^p(r, \theta)}{\partial \Omega_d}(\lambda) N(r) dr \quad (3.3)$$

où la somme est effectuée sur toutes les espèces diffusantes, Ω_d étant l'angle solide de diffusion du rayonnement et $\frac{\partial \zeta_d^p(r, \theta)}{\partial \Omega_d}$ étant la section efficace différentielle de diffusion.

Remarques : dans la suite de ce chapitre, les exposants m et p feront référence aux grandeurs se rapportant aux molécules et aux particules (aérosols), respectivement. Les coefficients de rétrodiffusion ($\theta = \pi$) particulaire et moléculaire seront quant à eux notés β^p et β^m , respectivement.

3.2.3.2 La diffusion moléculaire ou diffusion Rayleigh

La théorie de Rayleigh permet de décrire la diffusion de la lumière par des objets de taille bien inférieure à la longueur d'onde du rayonnement. Elle s'applique donc en particulier dans le cas de la diffusion atomique ou moléculaire. Dans le cadre de cette théorie, chaque atome ou molécule peut être représenté par un nuage d'électrons gravitant autour d'un noyau de charge positive, l'ensemble étant électriquement neutre. L'application d'un champ électromagnétique externe oscillant a pour effet de séparer quasi instantanément ces charges en dipôles électriques oscillants, lesquels deviennent à leur tour sources d'un champ électromagnétique ; de l'énergie est ainsi rayonnée (diffusée) dans tout l'espace.

Habituellement, la caractéristique essentielle de cette diffusion est une dépendance spectrale du processus en λ^{-4} . Cependant, pour les courtes longueurs d'onde (dans notre cas : 355 nm - cf. Section 3.5.2), la loi en λ^{-4} n'est plus adaptée. Il est dès lors nécessaire d'introduire des facteurs correctifs empiriques afin de tenir compte de la variation spectrale de la section efficace de diffusion moléculaire ζ_d^m [Hansen and Travis, 1974 ; Nicolet, 1984] :

$$\varsigma_d^m(\lambda) = 3.90 \cdot 10^{-28} \lambda^{-PL} \quad (3.4)$$

avec

$$PL = 3.916 + 0.074\lambda + \frac{0.05}{\lambda} \quad (3.5)$$

De la même manière, pour la section efficace de rétrodiffusion :

$$\frac{\partial \varsigma_d^m}{\partial \Omega_d}(\lambda) = 4.678 \cdot 10^{-29} \lambda^{-PL} \quad (3.6)$$

En utilisant des radiosondages, des capteurs in situ ou des modèles, on peut déterminer la densité atmosphérique et en déduire de la même manière qu'à la section précédente les coefficients de diffusion moléculaire α_d^m et de rétrodiffusion moléculaire β^m :

$$\alpha_d^m(\lambda) = \int \varsigma_d^m(\lambda) N(r) dr \quad (3.7)$$

$$\beta^m(\lambda) = \int \frac{\partial \varsigma_d^m}{\partial \Omega_d}(\lambda) N(r) dr \quad (3.8)$$

L'épaisseur optique de diffusion moléculaire τ_d^m est donnée par l'équation 3.1.

Le coefficient de rétrodiffusion totale atmosphérique, qui sera par la suite noté simplement β , est la somme des contributions particulaire et moléculaire :

$$\beta(\lambda) = \beta^m(\lambda) + \beta^p(\lambda) \quad (3.9)$$

3.2.4 Conclusion

Cette section a présenté les bases théoriques permettant de comprendre les phénomènes d'extinction atmosphériques dans l'UV et le visible. Les processus d'absorption et de diffusion ont été explicités. L'absorption intervient au niveau moléculaire et met en jeu des absorptions d'énergie par transition électronique. La diffusion dépend fortement de la taille du diffuseur par rapport à la longueur d'onde du rayonnement incident. Ainsi, pour des diffuseurs très petits devant cette longueur d'onde, typiquement des molécules, la diffusion peut être modélisée suivant la diffusion Rayleigh, caractérisée par une diffusion symétrique autour du diffuseur. Lorsque ce dernier est d'une taille proche de celle de la longueur d'onde du rayonnement incident, les mécanismes de diffusion obéissent au modèle de diffusion de Mie, caractérisée par une diffusion prépondérante vers l'avant.

3. TÉLÉDÉTECTION DES AÉROSOLS PAR PHOTOMÈTRE ET LIDAR

Les instruments de télédétection des aérosols décrits dans la suite de ce chapitre utilisent ces phénomènes d'extinction pour la caractérisation de la quantité d'aérosols, de leur taille, et éventuellement de leur distribution verticale (dans le cas du lidar). Les sections suivantes se proposent de les décrire.

3.3 Télédétection photométrique

3.3.1 Introduction

Les fenêtres atmosphériques évoquée à la section précédente permettent d'effectuer des mesures direct du rayonnement solaire afin d'évaluer l'extinction due aux aérosols, ceux-ci étant les principaux atténuateurs du rayonnement dans ces gammes de longueurs d'onde. L'instrument permettant ces mesures est appelé photomètre solaire. Cette section présente le principe de fonctionnement de cet instrument ainsi que les informations pouvant être tirées de ses mesures.

3.3.2 Principe

Le photomètre est un instrument de télédétection passif dont le principe de base est d'analyser le rayonnement solaire ayant traversé l'atmosphère à des longueurs d'onde appartenant à des fenêtres spectrales de manière à pouvoir négliger autant que faire se peut l'extinction due aux gaz atmosphériques.

Les mesures photométriques sont faites dans l'ultraviolet, le visible et le proche infrarouge en utilisant des radiomètres à faible ouverture de champ optique ($1^\circ - 2^\circ$) et à canaux spectraux étroits (de l'ordre de 10 nm). Dans ce domaine spectral on peut considérer la fonction source d'émission atmosphérique négligeable.

3.3.2.1 L'épaisseur optique des aérosols mesurée par photomètre

L'épaisseur optique des aérosols (encore appelée AOT pour Aerosol Optical Thickness) peut être déterminée à partir des mesures photométriques d'extinction du rayonnement solaire direct à travers l'atmosphère. La mesure faite depuis le sol par un photomètre visant directement le Soleil contient le terme prédominant du rayonnement solaire direct, auquel il faut ajouter un terme de rayonnement diffus. La luminance diffuse, très faible par rapport à la luminance directe en atmosphère claire, constitue tout au plus un facteur correctif qui est négligé en pratique. Le signal délivré par le photomètre est proportionnel à l'intensité lumineuse incidente au détecteur qui s'exprime ainsi :

$$I(\lambda) = I_0(\lambda)e^{-m_{\text{air}}\tau(\lambda)} = I_0(\lambda)t(\lambda) \quad (3.10)$$

avec λ la longueur d'onde considérée, m_{air} la masse d'air traversée par le rayonnement, τ l'épaisseur optique atmosphérique totale, et t la transmittance atmosphérique totale.

I_0 représente le signal qui serait enregistré en l'absence d'atmosphère. Pour l'évaluer, on doit d'abord déterminer la constante d'étalonnage de l'instrument, par exemple par la méthode de Bouguer-Langley [Lenoble, 1993], et en ajustant le résultat avec un terme de correction dépendant de la distance Terre-Soleil [Iqbal, 1983].

Les phénomènes qui contribuent à l'extinction du rayonnement solaire en atmosphère claire sont l'extinction due aux aérosols (diffusion+absorption), la diffusion moléculaire (ou Rayleigh) et l'absorption moléculaire. Ainsi, l'épaisseur optique totale τ est la somme des termes caractérisant ces processus :

$$\tau(\lambda) = \tau^p(\lambda) + \tau_d^m(\lambda) + \tau_a^m(\lambda) \quad (3.11)$$

Les canaux du photomètre sont choisis autant que possible en dehors des bandes d'absorption gazeuse ; ainsi, le terme τ_a^m (équation 2.11) est faible, mais pas toujours négligeable selon le domaine spectral. Une valeur précise de l'épaisseur optique de diffusion moléculaire τ_d^m peut être obtenue à partir de la formule [Hansen and Travis, 1974] :

$$\tau_d^m(\lambda) = \frac{P}{P_0} [0.008569\lambda^{-4}(1 + 0.0113\lambda^{-2} + 0.00013\lambda^{-4})] \quad (3.12)$$

où la longueur d'onde λ est exprimée en μm , et P et P_0 représentent respectivement la pression atmosphérique dans les conditions de la mesure et la pression atmosphérique standard au niveau de la mer.

Dans ces conditions, l'épaisseur optique des aérosols déterminée à partir des mesures photométriques est :

$$\tau^p(\lambda) = \frac{1}{m_{\text{air}}} \ln \left(\frac{I_0(\lambda)}{I(\lambda)} \right) - \tau_d^m(\lambda) - \tau_a^m(\lambda) \quad (3.13)$$

Cette valeur de l'épaisseur optique mesurée englobe la totalité des aérosols dans la colonne atmosphérique, mais elle est généralement due en grande partie aux aérosols troposphériques concentrés dans les basses couches. C'est le cas des aérosols marins et de feu, souvent localisés dans les basse et moyenne troposphères. Les aérosols stratosphériques cessent d'être négligeables dans le cas de mesures faites dans des stations d'altitude, ou lorsque leur concentration est particulièrement importante (après une éruption volcanique majeure par exemple).

3. TÉLÉDÉTECTION DES AÉROSOLS PAR PHOTOMÈTRE ET LIDAR

3.3.2.2 Le coefficient d'Ångström

L'épaisseur optique totale des aérosols τ^p est le résultat de l'extinction due aux aérosols sur toute la colonne atmosphérique. Dans le spectre visible, τ^p varie en λ^{-a} où a est le coefficient d'Ångström. a avoisine l'unité pour une distribution de taille log-normale centrée sur une taille moyenne de quelques centièmes de microns. Plus la taille des aérosols est petite, plus a est grand. Une valeur limite supérieure est toutefois atteinte lorsque $a \approx 4$ alors que la limite inférieure est 0. La limite supérieure correspond au comportement spectral de l'épaisseur optique associée aux particules beaucoup plus petites que la longueur d'onde telles que les molécules gazeuses de l'atmosphère (diffusion Rayleigh). La limite inférieure correspond au cas où la taille des particules est hautement supérieure à la longueur d'onde. Les micro-gouttelettes d'eau contenues dans les nuages correspondent à cette condition (ce qui, soit dit en passant, explique la couleur blanche des nuages, toutes les longueurs d'ondes visibles étant essentiellement diffusées de la même façon).

Le comportement spectral de l'épaisseur optique peut donc être décrit à l'aide du coefficient d'Ångström [*Ångström*, 1964] :

$$a = \frac{\ln\left(\frac{\tau_{\lambda_1}^p}{\tau_{\lambda_2}^p}\right)}{\ln\left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right)}, \text{ ou encore } \tau_{\lambda_1}^p = \tau_{\lambda_2}^p \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right)^a \quad (3.14)$$

$\tau_{\lambda_1}^p$ et $\tau_{\lambda_2}^p$ étant respectivement les mesures de l'épaisseur optique réalisées aux longueurs d'ondes λ_1 et λ_2 . Le coefficient d'Ångström peut donc être considéré comme un indicateur de la taille moyenne de la distribution en taille des aérosols.

3.3.3 Les photomètres utilisés dans cette étude

Le photomètre permet ainsi de fournir des informations sur la quantité d'aérosols présent sur toute la colonne atmosphérique (par l'intermédiaire de l'épaisseur optique) et sur la taille moyenne des aérosols (par l'intermédiaire du coefficient d'Ångström). Les travaux réalisés dans le cadre de cette thèse ont fait appel à deux photomètres : le CIMEL, photomètre fixe installé à la Réunion ainsi que dans diverses stations autour du globe, et le MICROTOPS II, utilisé lors des campagnes avec lidar embarqué sur le navire de recherche Marion Dufresne (Section 3.5). Ces instruments et les réseaux de mesure auxquels ils sont rattachés sont décrits ci-dessous.

3.3.3.1 Le photomètre CIMEL et le réseau AERONET

Le CIMEL est un photomètre automatique à visée solaire fabriqué par CIMEL Electronique (<http://www.cimel.fr/>) (Figure 3.4) qui permet d'effectuer des mesures directes de l'extinction

dans un faible angle solide (1.2° de champ de vue). Les mesures en visée directe vers le soleil sont réalisées dans 4 bandes spectrales (440, 670, 870, 1020 nm) de largeur 10 nm, mais d'autres sont parfois disponibles (340, 380, 500, 940 nm). Ces bandes spectrales correspondent à des fenêtres atmosphériques où l'absorption due aux composés gazeux est faible (Figure 3.1).



Figure 3.4: Photo du photomètre CIMEL à la Réunion -

Afin d'assurer la surveillance de la planète, un réseau de photomètres est installé sur l'ensemble du globe : le réseau AERONET (AERosol RObotic NETwork) [Holben *et al.*, 1998]. Il est opérationnel depuis 1996 et contient plus de 300 instruments (principalement CIMEL de type CE-318), dont 35 sont gérés par la composante française du réseau, PHOTONS (PHOTométrie pour le Traitement Opérationnel de Normalisation Satellitaire), basée au LOA (Laboratoire d'Optique Atmosphérique). Les instruments sont placés sur des sites choisis en fonction des différents écosystèmes : zones arides, forêts boréale et tropicale, régions tempérées, zones océaniques et côtières, montagnes (Figure 3.5). L'acquisition, la transmission et, en partie, le traitement des données se font automatiquement, ce qui facilite la caractérisation de l'aérosol sur les plans local, régional et global.

Outre l'épaisseur optique aux quatre longueurs d'onde 440, 676, 870 et 1020 nm mesurée par visée directe du soleil, les instruments du réseau délivrent également une série de résultats de différents algorithmes d'inversion (ceux de Nakajima *et al.* [1983 et 1996], Dubovik *et al.* [2000] et Dubovik *et King* [2000]) qui, à partir d'une exploration complète du ciel par mesure d'almucantar (cercle parallèle à l'horizon), fournissent la distribution en taille, l'indice de réfraction, la fonction

3. TÉLÉDÉTECTION DES AÉROSOLS PAR PHOTOMÈTRE ET LIDAR

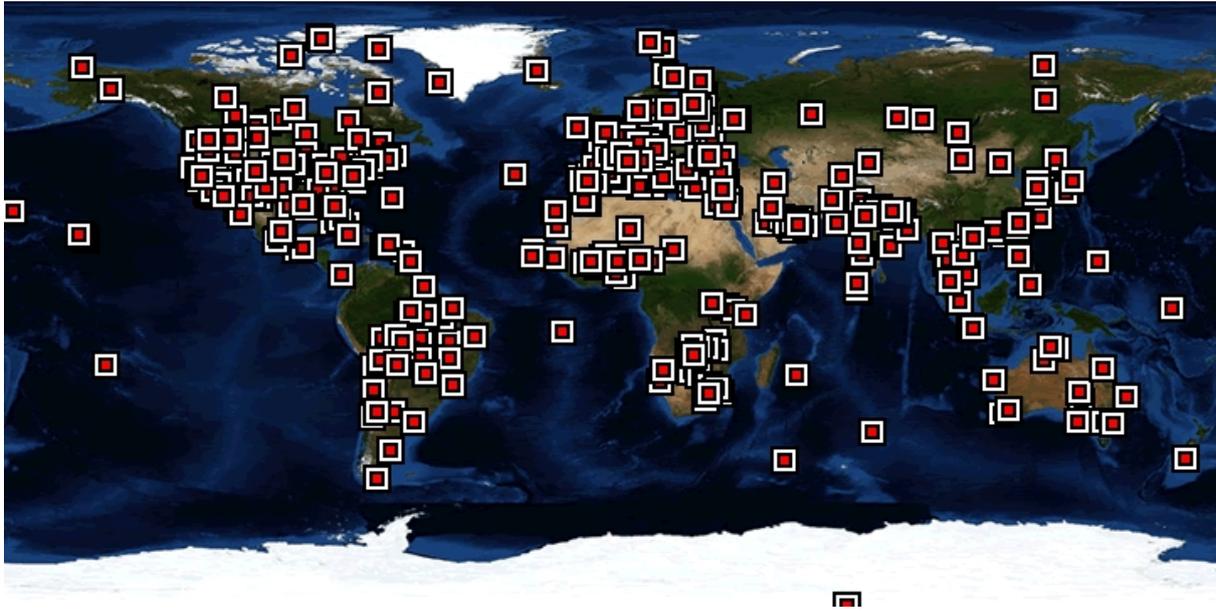


Figure 3.5: Carte des sites AERONET - Source : <http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>

de phase et le facteur d'asymétrie de l'aérosol. Les résultats issus des traitements des données acquises sont mis à la disposition de la communauté scientifique (<http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>).

Dans les travaux exposés dans la suite de ce manuscrit, seuls les données de niveau 2 AERONET (application du masque de nuage et inspection manuelle des données) donnant l'épaisseur optique, le coefficient d'Ångström et la distribution en taille des aérosols sont utilisées. L'incertitude absolue maximale sur l'épaisseur optique est de 0.02 selon *Dubovik et al.* [2000]. La distribution en taille des aérosols n'est exploitée que pour des mesures effectuées avec un angle solaire zénithal supérieur à 65° comme recommandé par *Dubovik et al.* [2000]; ainsi, la distribution volumique en taille peut être obtenue avec une incertitude de 15 à 35% pour $0.1\mu\text{m} < r < 7\mu\text{m}$, et de 15 à 100 % dans les autres cas [*Dubovik et al.*, 2000].

3.3.3.2 Le photomètre MICROTOPS II et le réseau MAN

Le MICROTOPS II est un photomètre solaire fabriqué par Solar Light, Inc. (<http://www.solarlight.com>). Il nécessite la visée manuelle du soleil (Figure 3.6). Son champ de vue est de 1° et il mesure l'épaisseur optique à cinq bandes spectrales du visible (380, 500, 675, 870 and 1020 nm) de largeur 10 nm [*Morys et al.*, 2001]. Il est connecté à un GPS afin de connaître l'heure et la position de la mesure.

Les mesures réalisées avec ce type de photomètre lors des quatre campagnes décrites ci-après (Section 3.5) sont intégrées au réseau MAN (Maritime Aerosol Network) [*Smirnov et al.*, 2009], qui fait lui-même partie du réseau AERONET. MAN a été mis en place en 2006 avec pour



Figure 3.6: Mesure manuelle de l'épaisseur optique avec le MICROTOPS II - Cette photo a été prise à Crozet (52° E ; 46.4° S) en Août 2009. Le navire de recherche Marion Dufresne se trouve à l'arrière plan (Photo : Yann Courcoux).

vocation de combler le manque de données au sol dans les zones océaniques (Figure 3.7). Les photomètres manuels MICROTOPS II utilisés sont calibrés avec le photomètre de référence CIMEL du réseau AERONET (installé au NASA Goddard Space Flight Center, Maryland), et les données acquises sont inspectées et filtrées (masque de nuage et élimination des mesures vraisemblablement incohérentes du à une mauvaise visée manuelle du soleil par exemple) suivant les méthodes décrites par *Smirnov et al.* [2004] et *Knobelspiesse et al.* [2003, 2004]. Etant manuel, le photomètre MICROTOPS II ne permet pas d'effectuer des mesures d'almucantar, il fournit donc uniquement l'épaisseur optique. L'incertitude absolue moyenne sur les mesures d'épaisseur optique ainsi acquises est de 0.015 [*Pietras et al.*, 2002].

3.3.4 Conclusion

La télédétection par photomètre repose sur l'analyse du rayonnement solaire dans des gammes de longueurs d'onde peu influencées par l'extinction due au gaz atmosphériques. C'est une technique de télédétection passive qui permet d'obtenir des informations notamment sur la quantité d'aérosols présente sur toute la colonne atmosphérique (épaisseur optique), sur leur taille moyenne (coefficient d'Ångstrom) et sur leur distribution en taille. Les travaux réalisés dans le cadre de cette thèse ont fait appel aux photomètres fixes CIMEL du réseau AERONET, ainsi qu'au photomètre manuelle MICROTOPS II lors des campagnes embarquées (Section 3.5) en participant aux mesures du réseau MAN.

3. TÉLÉDÉTECTION DES AÉROSOLS PAR PHOTOMÈTRE ET LIDAR

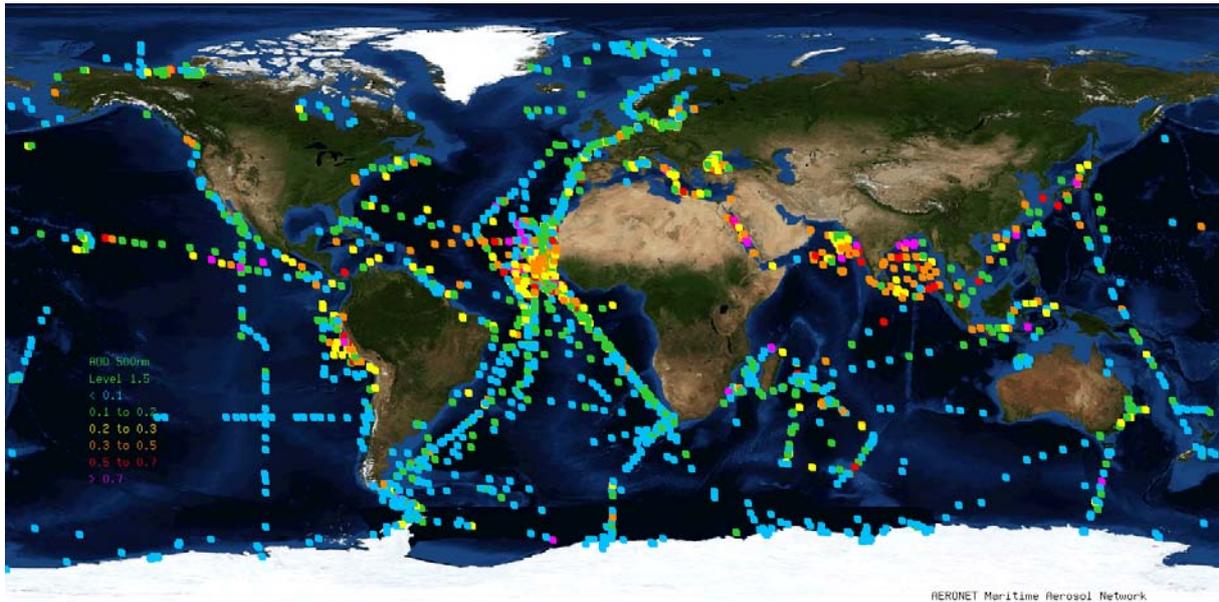


Figure 3.7: Mesures photométriques (2004-2011) réalisées dans le cadre du réseau MAN
- L'échelle de couleur indique l'épaisseur optique mesurée (Source : <http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>)

Ces campagnes avec le MICROTOPS II incluait également un instrument de télédétection active - le lidar - dont les mesures, employées en synergie avec les mesures photométriques, permettent une caractérisation plus complète des propriétés optiques des aérosols rencontrés. La section suivante se propose de décrire les principes théoriques de fonctionnement du lidar, et de son emploi en association avec le photomètre.

3.4 La télédétection par lidar et la synergie lidar-photomètre

3.4.1 Introduction

Alors que le photomètre décrit à la section précédente ne permet que d'obtenir des informations intégrées sur toute la colonne atmosphérique, le lidar donne accès à des profils de distribution verticale des particules. Le lidar est l'acronyme du terme anglais Light Detection And Ranging), et son fonctionnement se rapproche de celui du radar (RADio Detection And Ranging) par exemple : celui-ci envoie des ondes radio dans l'atmosphère et analyse les ondes réfléchies ; le lidar quant à lui utilise des impulsion laser et réceptionne et analyse les photons rétrodiffusés.

Cette section décrit le principe de fonctionnement du lidar à rétrodiffusion Mie (qui est le type de lidar utilisé dans le cadre de cette thèse - Section 3.5.2) et les bases théoriques du traitement du signal lidar. L'inversion de ce signal et l'utilisation conjointe lidar-photomètre

pour déterminer les propriétés optiques des aérosols sont également explicitées.

3.4.2 Principe du lidar

Le principe du lidar consiste à envoyer des impulsions laser dans l'atmosphère et à mesurer leur rétrodiffusion en fonction du temps (Figure 3.8). Le faisceau laser est à la fois diffusé et absorbé par les molécules (gaz) et par les aérosols contenus dans l'atmosphère. La fraction de la lumière émise et rétrodiffusée est collectée à l'aide d'un télescope et le signal est détecté à l'aide d'un photomultiplicateur (ou d'une diode à avalanche) et numérisé pour pouvoir être exploité. Le fait que le laser soit pulsé permet une détection en fonction du temps t et donc de la distance z entre le laser et le point de mesure ($z = c_{\text{air}}t/2$, c_{air} étant la vitesse de la lumière dans l'air). Le lidar peut fonctionner à des longueurs d'onde allant de l'UV à l'IR en passant par le visible, la longueur d'onde du faisceau laser émis étant déterminée par les caractéristiques d'absorption et de diffusion de l'espèce que l'on désire étudier. Outre l'obtention de profils de distribution verticale, un des intérêts principaux du lidar est qu'il s'agit d'une méthode de télédétection non intrusive : le faisceau laser interagit avec les molécules ou particules, mais ne modifie en rien leurs propriétés ou leur nature.

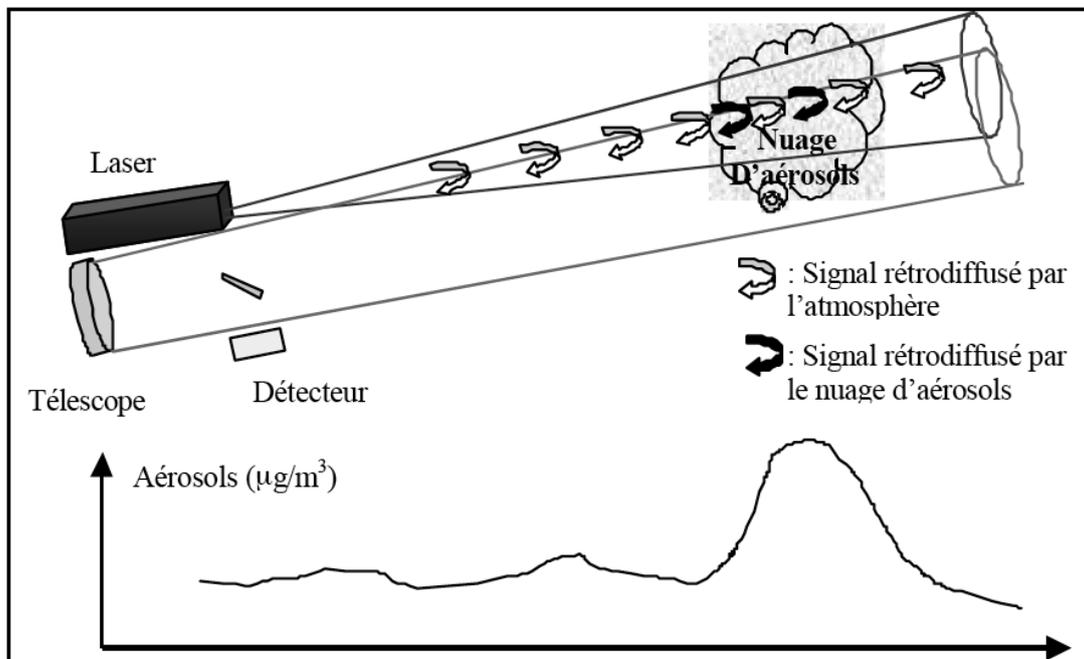


Figure 3.8: Schéma de principe du lidar à rétrodiffusion -

3. TÉLÉDÉTECTION DES AÉROSOLS PAR PHOTOMÈTRE ET LIDAR

3.4.3 Théorie du signal lidar

3.4.3.1 L'équation lidar (diffusion élastique)

Les travaux réalisés dans le cadre de cette thèse ont fait appel à un lidar à rétrodiffusion Mie fonctionnant dans l'UV (355 nm) (cf. Section 3.5.2). Les phénomènes d'interaction se produisant entre le faisceau laser et l'atmosphère ont été décrits à la Section 3.2. Cette section s'appuie sur ces considérations théoriques afin d'expliquer la théorie du signal lidar. Le signal reçu $S(z, \lambda)$ à la longueur d'onde λ et à la distance z à un instant donné est caractéristique du coefficient de rétrodiffusion β_λ à la distance correspondante ainsi que du coefficient d'extinction α_λ sur le chemin de la lumière à l'aller comme au retour. Plus précisément, si l'on néglige la diffusion multiple, le retour lidar linéaire est donné dans le cas général par l'équation lidar [Measures, 1984] :

$$S(z, \lambda) = \frac{C_\lambda}{(z_0 - z)^2} F(z) \beta_\lambda(z) \exp\left(-\frac{2}{\cos\theta} \int_{z_0}^z \alpha_\lambda(z') dz'\right) + FC \quad (3.15)$$

où C_λ est la constante système (ou constante de calibration) qui contient tous les termes de l'équation lidar indépendants de l'altitude z , F est le facteur géométrique de recouvrement, z_0 l'altitude du lidar, θ l'angle de visé et FC le signal de fond de ciel. En mode analogique (qui est le mode qui a été utilisé - cf. Section 3.5.2), C_λ dépend de l'efficacité optique, de la surface de réception (télescope), de l'énergie du laser, de l'amplification du signal et du gain du photomultiplicateur.

Le facteur de recouvrement F traduit le fait que le signal reçu dans les premiers mètres sondés ne correspond pas à la totalité du signal que devrait recevoir le lidar du fait d'un recouvrement partiel. Ce facteur de recouvrement dépend de la géométrie du système (Figure 3.9). Ce facteur est égal à 1 lorsque le recouvrement entre l'émission et la réception est parfait, et inférieur à 1 dans le cas contraire. A proximité de l'émission laser, ce facteur est même nul, entraînant également la nullité du signal lidar : aucune information sur l'atmosphère n'est fournie par le lidar dans cette "zone aveugle" [Raut, 2008].

Le fond de ciel FC correspond à la contribution du rayonnement solaire direct réceptionné par le détecteur du lidar. Pour le déterminer, la technique utilisée a été le "pre-trigger" qui consiste à mesurer le rayonnement en l'absence d'émission laser et à le retrancher par la suite au signal reçu.

Le terme $\frac{1}{(z_0 - z)^2}$ permet de corriger le signal reçu de l'angle solide de réception.

Dans la suite, on travaillera avec le signal corrigé du fond de ciel et de la distance, et en supposant une visée verticale ; le signal lidar ainsi obtenu sera appelé S_2 :

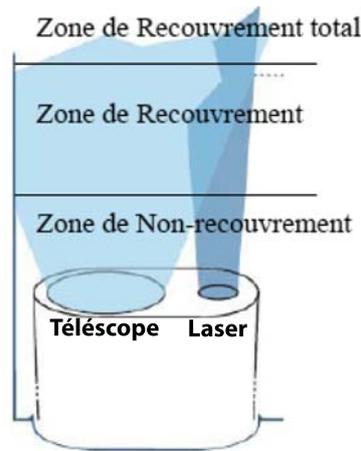


Figure 3.9: Représentation schématique de la zone de recouvrement - [Raut, 2008]

$$S_2(z, \lambda) = C_\lambda F(z) \beta_\lambda(z) \exp\left(-2 \int_{z_0}^z \alpha_\lambda(z') dz'\right) \quad (3.16)$$

L'équation lidar 3.16 peut se décomposer en la somme des contributions moléculaire et particulaire :

$$S_2(z, \lambda) = C_\lambda F(z) (\beta_\lambda^m(z) + \beta_\lambda^p(z)) \exp\left(-2 \int_{z_0}^z (\alpha_\lambda^m(z') + \alpha_\lambda^p(z')) dz'\right) \quad (3.17)$$

Les coefficients de rétrodiffusion et d'extinction moléculaires (β^m et α^m) peuvent être déterminés comme indiqué Section 3.2.3.2. Cette équation possède donc 4 inconnues : F , C_λ , β_λ^p et α_λ^p .

3.4.3.2 Calcul du facteur de recouvrement

On peut déterminer théoriquement le facteur de recouvrement par la connaissance précise du champ de vue du télescope, de la distance télescope-faisceau et de la divergence du faisceau laser [Measures, 1984; Chazette, 2003]. Il est cependant possible de le déterminer à partir des signaux lidar acquis. Pour cela, on considère que la couche atmosphérique située juste au dessus du lidar est homogènement mélangée par la convection, et que les profils de rétrodiffusion et d'extinction sont constants avec l'altitude à l'intérieur de cette fine couche. On prolonge ainsi par une droite le signal lidar sous la zone de recouvrement, et le facteur de recouvrement peut être obtenu par la différence entre cette droite d'extrapolation et le signal S_2 [Raut, 2008].

3.4.3.3 Calcul de la constante de calibration

Dans des conditions de ciel clair, et en se plaçant dans une zone atmosphérique d'altitude z_r ne contenant pas d'aérosols - et où donc seuls les phénomènes d'extinction moléculaire ont lieu

3. TÉLÉDÉTECTION DES AÉROSOLS PAR PHOTOMÈTRE ET LIDAR

- l'équation lidar 3.17 peut s'écrire :

$$S_2(z_r, \lambda) = C_\lambda \beta_\lambda^m(z_r) \exp \left(-2 \int_{z_0}^{z_r} (\alpha_\lambda^p(z') + \alpha_\lambda^m(z')) dz' \right) \quad (3.18)$$

et C_λ peut s'exprimer de la façon suivante :

$$C_\lambda = \frac{S_2(z_r, \lambda)}{\beta_\lambda^m(z_r)} \exp \left(2 \int_{z_0}^{z_r} (\alpha_\lambda^p(z') + \alpha_\lambda^m(z')) dz' \right) \quad (3.19)$$

On reconnaît les expressions des épaisseurs optiques moléculaires et particulaires (équation 3.1), ce qui amène à écrire cette équation sous la forme :

$$C_\lambda = \frac{S_2(z_r, \lambda)}{\beta_\lambda^m(z_r)} \exp [2 (\tau_\lambda^p + \tau_\lambda^m)] \quad (3.20)$$

τ_λ^m et β_λ^m étant connus (Section 3.2.3.2), la connaissance de τ_λ^p permet ainsi de déterminer C_λ . Pour cela, l'utilisation simultanée d'un photomètre (Section 3.3) donne accès à une mesure indépendante de l'épaisseur optique des aérosols τ_λ^p et permet le calcul de C_λ .

3.4.3.4 Inversion de Fernald et Klett

Il vient d'être vu comment déterminer le facteur de recouvrement ainsi que la constante instrumentale, il reste à présenter comment calculer β_λ^p et α_λ^p . Pour cela, il est nécessaire d'inverser le signal lidar reçu (et, comme on le verra par la suite, de contraindre cette inversion avec une mesure indépendante).

Plusieurs méthodes d'inversion du signal lidar existent, mais la plus communément utilisée est celle établie par *Fernald et al.* [1972, 1984] et *Klett* [1981, 1985]. La détermination de β_λ^p et α_λ^p passe par la définition du rapport de rétrodiffusion particulaire sur l'extinction particulaire, noté BER (pour "Backscatter-to-Extinction Ratio"). Certains préfèrent utiliser le rapport lidar, noté LR (pour "Lidar Ratio"), qui est l'inverse du BER :

$$\text{BER}_\lambda = \frac{1}{\text{LR}_\lambda} = \frac{\beta_\lambda^p}{\alpha_\lambda^p} \quad (3.21)$$

Le BER ne dépend pas de la concentration, mais de la microphysique des diffuseurs (distribution en taille, indice de réfraction et forme). En considérant une seule couche d'aérosols dont seule la concentration varie avec l'altitude, on peut supposer le BER constant et indépendant de l'altitude [*Fernald*, 1972 ; *Klett*, 1981].

En 1979, Fernald établit que l'équation 3.16 peut se mettre sous la forme d'une équation différentielle de Bernoulli du 1er ordre :

3.4 La télédétection par lidar et la synergie lidar-photomètre

$$\frac{\partial S_2}{\partial z}(\lambda, z) = \left(\frac{1}{\beta_\lambda} \frac{\partial \beta_\lambda}{\partial z} \right) (z) - \frac{2}{\text{BER}_\lambda} \beta_\lambda(z) \quad (3.22)$$

à laquelle *Klett et al.* [1981, 1985] ont apporté la solution :

$$\beta_\lambda(z) = \frac{S_2(\lambda, z) Q_\lambda(z)}{\frac{S_2(\lambda, z_r)}{\beta_\lambda(z_r)} + \frac{2}{\text{BER}_\lambda} \int_z^{z_r} S_2(\lambda, z') Q_\lambda(z') dz'} \quad \text{avec} \quad Q_\lambda(z) = \exp \left[2 \left(\frac{3}{8\pi \text{BER}_\lambda} - 1 \right) \int_z^{z_r} \alpha_\lambda^m(z') dz' \right] \quad (3.23)$$

z_r correspondant à l'altitude d'une zone Rayleigh, c'est à dire supposée ne contenant que des molécules ; le terme $\beta_\lambda(z_r)$ est donc supposé connu. Néanmoins, l'équation 3.23 reste sous déterminée, sa résolution passant par la connaissance du BER. Il est donc nécessaire de contraindre cette équation par des mesures indépendantes afin d'aboutir à une solution.

3.4.3.5 Contrainte d'inversion : la synergie lidar-photomètre

La méthode choisie afin de contraindre cette inversion est accéder au profil d'extinction des aérosols est d'utiliser un photomètre opérant des mesures simultanées d'épaisseur optique. Un BER hypothétique est alors fixé, le profil d'extinction des aérosols est calculé à partir de ce BER (équation 3.23), puis intégré sur la colonne atmosphérique afin d'obtenir l'épaisseur optique théorique résultante (équation 3.1). Cette épaisseur optique est comparée à l'épaisseur optique mesurée simultanément par le photomètre : si l'écart entre les deux valeurs est inférieur à un seuil (ici, 10^{-4}), il y a alors convergence et la valeur de BER hypothétique est considérée comme correcte ; dans le cas contraire, si l'épaisseur optique dérivée de la valeur supposée de BER est supérieure (inférieure) à celle mesurée par le photomètre, alors la valeur supposée de BER est augmentée (diminuée) [*Chazette*, 2003]. Le procédé est ainsi itératif est s'arrête lorsqu'il y a convergence (des cas de divergence peuvent néanmoins se produire).

3.4.3.6 Le rapport signal sur bruit

Comme il le sera indiqué à la section suivante, le lidar ayant servi aux campagnes de mesure dans le cadre de cette thèse n'a été utilisé qu'en mode analogique. Le rapport signal sur bruit (SNR) en mode analogique fait intervenir plusieurs sources de bruit [*Chazette*, 1990] :

- Le bruit de grenaille ζ_G associé aux puissances optiques résulte de la nature statistique du processus de génération des photo-électrons au niveau du détecteur et obéit à une loi de Poisson. ζ_G^2 est proportionnel à $\frac{S+FC}{p\Delta z}$ avec p le nombre de tirs et Δz la résolution verticale du lidar.

3. TÉLÉDÉTECTION DES AÉROSOLS PAR PHOTOMÈTRE ET LIDAR

- Le bruit thermique ou bruit de Nyquist-Johnson ζ_T est dû aux fluctuations du signal électronique produit par l’agitation thermique des porteurs de charges dans le détecteur. ζ_T^2 est proportionnel à $\frac{T}{p\Delta z}$ avec T la température du détecteur.
- Le bruit d’obscurité ζ_O est la conséquence de l’émission par le photodétecteur, en l’absence de tout flux lumineux, d’un courant minimum qui fluctue autour de sa valeur moyenne (appelé courant d’obscurité). ζ_O^2 est proportionnel à $\frac{NEP^2}{p\Delta z}$, NEP (“Noise Equivalent Power” [W.Hz^{-1/2}]) étant la puissance équivalente de bruit du photodétecteur.
- Le bruit d’amplification ζ_A est lié aux fluctuations du gain de l’électronique utilisée dans les préamplificateurs placés en série avec le détecteur. ζ_A^2 est proportionnel à $\frac{NEP_A^2}{p\Delta z}$, NEP_A étant la puissance équivalente de bruit de l’amplificateur.

Les sources de bruit étant indépendantes, le SNR s’exprime ainsi :

$$SNR = \frac{S}{\sqrt{\zeta_G^2 + \zeta_T^2 + \zeta_O^2 + \zeta_A^2}} \quad (3.24)$$

3.4.4 Conclusion

Le lidar à rétrodiffusion Mie est un instrument de télédétection active : il émet des pulses lumineux dans l’atmosphère et mesure le rayonnement rétrodiffusé (diffusion élastique) par les molécules et les aérosols. L’atmosphère peut ainsi être sondée pour restituer les propriétés des aérosols. Pour cela, le signal lidar peut être inversé suivant la méthode de Fernald-Klett. La méthode d’inversion décrite dans cette section fait également appel à une mesure indépendante de l’épaisseur optique des aérosols - obtenue par l’intermédiaire d’un photomètre solaire - et permettant de contraindre l’inversion. Ainsi, le BER et le profil d’extinction des aérosols détectés peuvent être calculés.

Cette synergie lidar-photomètre a été mise en oeuvre dans le cadre de quatre campagnes embarquées sur le navire de recherche Marion Dufresne en 2009 et 2010 dans l’Océan Indien. La section suivante se propose de décrire le lidar utilisé et les campagnes de mesures réalisées.

3.5 Les campagnes lidar-photomètre dans l’Océan Indien

3.5.1 Introduction

Afin d’étudier les propriétés optiques et l’extension spatiale des aérosols dans l’Océan Indien, quatre campagnes de mesure ont été menées en 2009 et 2010. Ces campagnes consistaient en l’installation d’un lidar mobile sur le pont du navire de recherche Marion Dufresne, appartenant au Terres Australes et Antarctiques Françaises (TAAF), et en l’utilisation d’un photomètre

3.5 Les campagnes lidar-photomètre dans l’Océan Indien

manuel MICROTOPS II (Section 3.3.3.2). Le Marion Dufresne effectue en effet des rotations régulières afin de ravitailler et de transporter les personnes travaillant sur les îles de l’Océan Indien faisant partie des TAAF (Figure 3.10) (le transport vers la Terre Adélie est assuré par l’Astrolabe depuis la Tasmanie) :

- les îles Éparses : Europa (22 ° S ; 40 ° E), Bassas da India (21 ° S ; 34 ° E), Juan de Nova (17 ° S ; 42 ° E), Glorieuses (11 ° S ; 47 ° E), Tromelin (16 ° S ; 54 ° E) ;
- les îles Australes : Crozet (46 ° S ; 51 ° E), Kerguelen (49 ° S ; 69 ° E), Saint Paul (38 ° S ; 77 ° E), Amsterdam (37 ° S ; 77 ° E).



Figure 3.10: Le territoire des Terres Australes et Antarctiques Françaises (TAAF) -
Source : <http://www.taaf.fr/>

La première campagne de mesure avec lidar et photomètre embarqués a été réalisée en Avril-Mai 2009 lors de la rotation du Marion Dufresne dans les îles éparses, c’est la campagne MACAMOZ (“Measurement of Aerosols in the CAAnal of MOZambic”). La seconde campagne a eu lieu en Août-Septembre 2009 lors de la rotation du Marion Dufresne dans les îles Australes, c’est la campagne KAMASUTRA (“Kerguelen Aerosols Measurement from African Sources and plUmes Trajectory Reverse Analysis”). La troisième campagne s’est déroulée en Juillet-Août 2010 entre l’Indonésie et la Réunion, c’est la campagne INDOAM (“INDONesian Aerosols Measurement”). Enfin, la quatrième campagne a eu lieu en Août-Septembre 2010 dans les îles Australes, c’est la campagne KAMASUTRA II. Ces quatre campagnes furent financées par le LACy, les TAAF et l’IPEV (Institut Paul Emile Victor).

Cette section présente tout d’abord le lidar utilisé lors de ces campagnes, avant de décrire le parcours et les caractéristiques de chacune d’elles.

3. TÉLÉDÉTECTION DES AÉROSOLS PAR PHOTOMÈTRE ET LIDAR

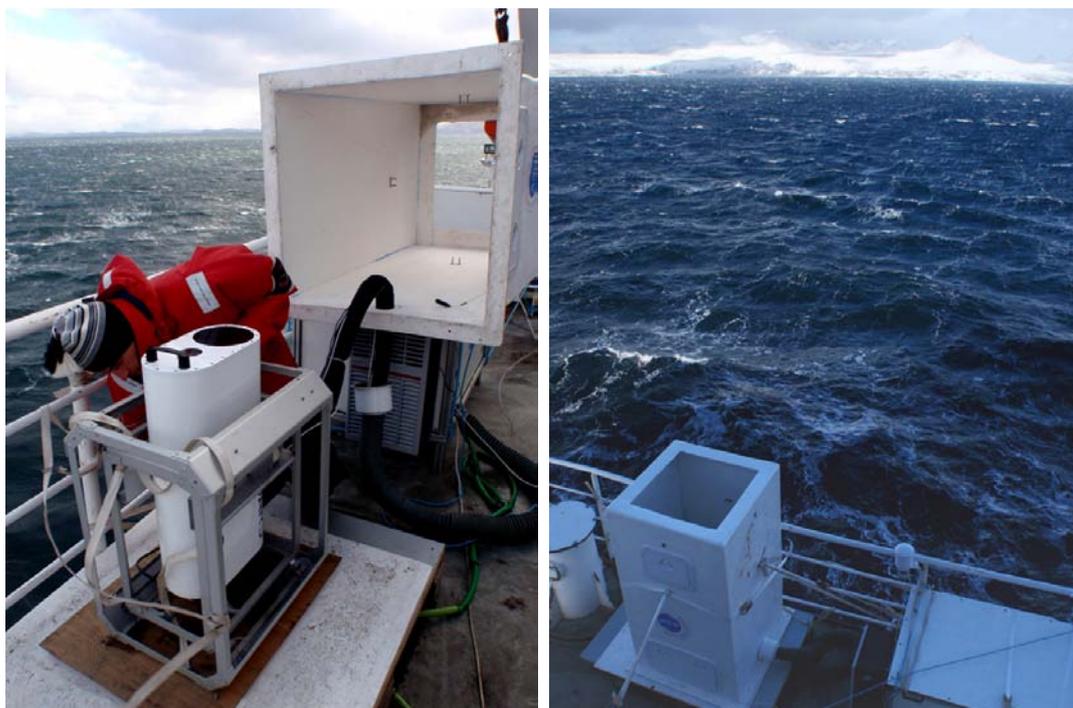


Figure 3.11: L'ALS450 sur le pont du Marion Dufresne - (à gauche) Réinstallation du lidar après changement de la lampe flash ; (à droite) A l'arrière plan : les Kerguelen.

3.5.2 Le lidar utilisé

Le lidar utilisé lors des quatre campagnes citées précédemment est un lidar à rétrodiffusion Mie (Section 3.4) LEOSPHERE ALS 450[®] basé sur un laser Nd :Yag produisant des impulsions laser d'énergie moyenne 16mJ à une longueur d'onde de 355 nm avec une fréquence de 20 Hz. Le système était installé sur le pont du Marion Dufresne dans un caisson à air conditionné adapté à une utilisation dans des conditions extrêmes (Figure 3.11). Son facteur de recouvrement (Section 3.4.3) est représenté sur la Figure 3.12 : le recouvrement est atteint pour une hauteur de ≈ 120 m. Les mesures lidar ont été moyennées sur 2min avec une résolution verticale de 15m.

3.5.3 La campagne MACAMOZ

La campagne MACAMOZ s'est déroulée du 19 Avril au 13 Mai 2009 autour de Madagascar à partir de la Réunion. Le but de cette campagne était double : tester le matériel et son installation à bord du Marion Dufresne, et caractériser les aérosols marins. La campagne s'est en effet déroulée avant la saison des feux australe, les aérosols rencontrés était donc a priori de type marin. La Figure 3.13 montre les épaisseurs optiques (moyennées sur une journée) mesurées pendant cette campagne dans le cadre du réseau MAN. La Figure 3.14 montre le parcours de

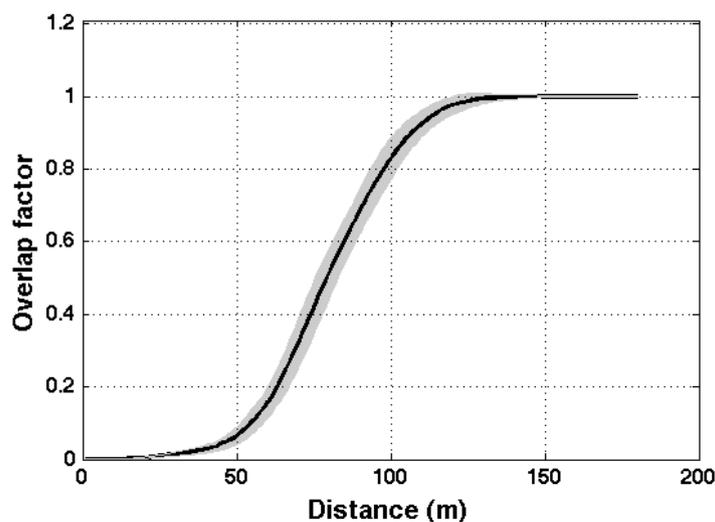


Figure 3.12: Le facteur de recouvrement - Le recouvrement est atteint pour une hauteur de ≈ 120 m. La zone grisée correspond à la déviation standard du facteur de recouvrement déduit des signaux lidar.

cette campagne superposée à l'épaisseur optique à 500nm (AOT_{500}) mesurée par MODIS et moyennée sur les mois d'Avril des années 2002 à 2009, indiquant une climatologie de la charge en aérosols dans la zone pendant cette période. On peut remarquer que la charge en aérosols au mois d'Avril autour de Madagascar est faible ($AOT_{500} < 0.1$) : cela n'est pas la saison des feux australe et la troposphère libre est assez "propre". La charge principale en aérosols dans l'Océan Indien provient d'Asie du Sud-est, surtout d'Indonésie et de Malaisie.

Les résultats tirés des mesures effectuées pendant cette campagne sont détaillés au Chapitre 6.

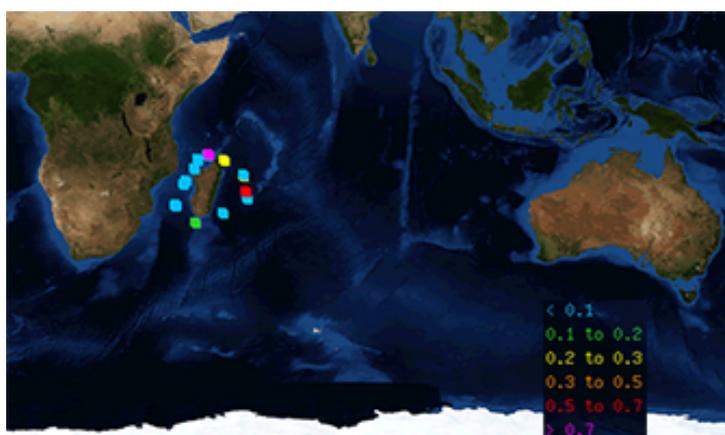


Figure 3.13: Moyenne quotidienne des épaisseurs optiques à 500nm mesurées pendant la campagne MACAMOZ (19 Avril - 13 Mai 2009) - Source : <http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>.

3. TÉLÉDÉTECTION DES AÉROSOLS PAR PHOTOMÈTRE ET LIDAR

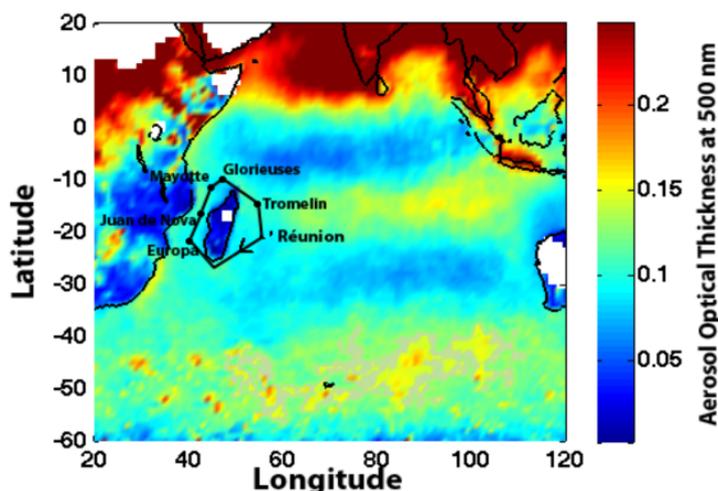


Figure 3.14: Moyenne mensuelle de AOT_{500} mesurée par MODIS pour le mois d'Avril sur les années 2002 à 2009 - Le parcours du Marion Dufresne pendant la campagne MACAMOZ est indiqué en noir.

3.5.4 La campagne KAMASUTRA

La campagne KAMASUTRA s'est déroulée du 21 Août au 17 Septembre 2009 dans les îles Australes à partir de la Réunion. Le but de cette campagne était de détecter un ou plusieurs panaches d'aérosols entre la Réunion et les Kerguelen afin de caractériser leurs propriétés optiques et leur extension spatiale. La campagne s'est en effet déroulée pendant la saison des feux australe. La Figure 3.15 montre les épaisseurs optiques (moyennées sur une journée) mesurées pendant cette campagne dans le cadre du réseau MAN. La Figure 3.16 montre le parcours de cette campagne superposée à l'épaisseur optique à 500nm (AOT_{500}) mesurée par MODIS et moyennée sur les mois de Septembre des années 2002 à 2009, indiquant une climatologie de la charge en aérosols dans la zone pendant cette période. On peut remarquer que la charge en aérosols au mois de Septembre entre la Réunion et les Kerguelen est caractérisée par une $AOT_{500} \approx 0.2$. On peut noter également la voie de transport privilégiée entre 35 et 55° de latitude sud où $AOT_{500} > 0.2$. La contribution indo-malaisienne est également plus importante.

Les résultats tirés des mesures effectuées pendant cette campagne sont détaillés au Chapitre 6.

3.5.5 Les campagnes INDOAM et KAMASUTRA II

La campagne INDOAM (Figure 3.17) a eu lieu du 30 Juillet au 15 Août 2010 entre l'Indonésie et la Réunion. Le but de cette campagne était de détecter les panaches d'aérosols de feu émis par l'Indonésie et se dirigeant vers l'Océan Indien. Malheureusement, seules les mesures

3.5 Les campagnes lidar-photomètre dans l'Océan Indien

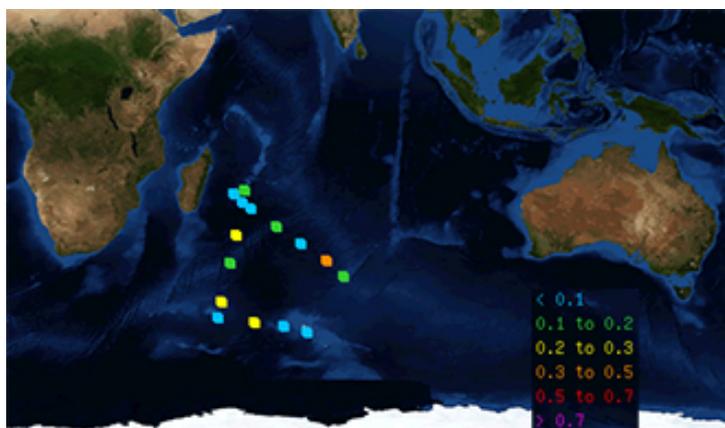


Figure 3.15: Moyenne quotidienne des épaisseurs optiques à 500nm mesurées pendant la campagne KAMASUTRA (21 Août - 17 Septembre 2009) - Source : <http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>.

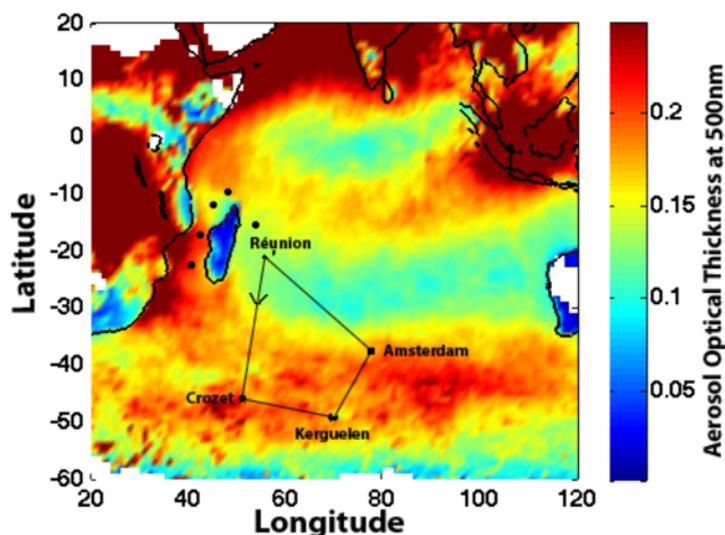


Figure 3.16: Moyenne mensuelle de AOT₅₀₀ mesurée par MODIS pour le mois de Septembre sur les années 2002 à 2009 - Le parcours du Marion Dufresne pendant la campagne KAMASUTRA est indiqué en noir.

3. TÉLÉDÉTECTION DES AÉROSOLS PAR PHOTOMÈTRE ET LIDAR

photométriques ont pu être réalisées : une grave avarie de l'alimentation laser s'est déclarée dès son démarrage en Indonésie ; aucune mesure lidar n'a donc pu être effectuée (décrire la déception que Yann Courcoux et moi-même avons ressentie, après avoir tout installé à bord, serait trop douloureux...).

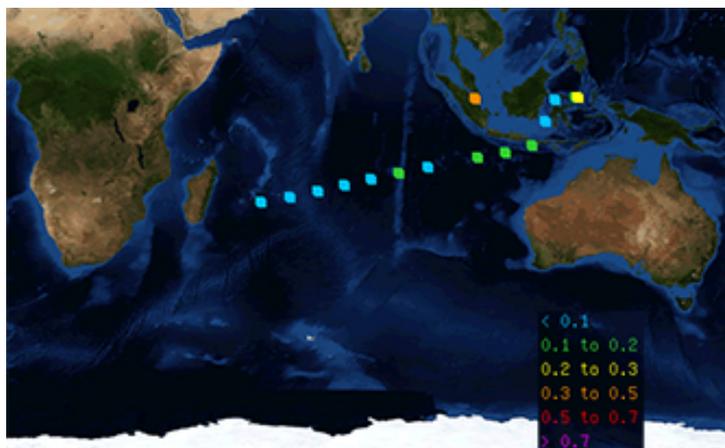


Figure 3.17: Moyenne quotidienne des épaisseurs optiques à 500nm mesurées pendant la campagne INDOAM (30 Juillet - 15 Août 2010) - Source : <http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>.

La campagne KAMASUTRA II a eu lieu du 18 Août au 14 Septembre 2010, en suivant le même parcours que la campagne KAMASUTRA 1ère du nom (Figure 3.18). Les objectifs de cette campagne était les mêmes que la précédente : détecter et caractériser les aérosols transitant entre 35 et 55 ° Sud. Malheureusement, une avarie sur le lidar a empêché toute acquisition ; seules des mesures photométriques ont pu être effectuées.

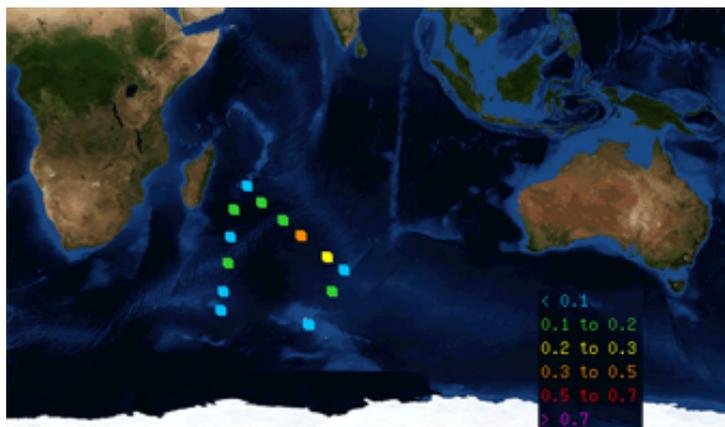


Figure 3.18: Moyenne quotidienne des épaisseurs optiques à 500nm mesurées pendant la campagne KAMASUTRA II (18 Août - 14 Septembre 2010) - Source : <http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>.

3.5.6 Conclusion

L'acquisition d'un lidar mobile aérosols par l'OPAR fin 2008 a permis l'organisation de campagnes de mesures dans l'Océan Indien. Ces campagnes reposaient sur les rotations du Marion Dufresne dans l'Océan Indien, le navire étant en charge du transport et du ravitaillement des personnes présentes sur les différentes bases disséminées sur les îles Éparses et Australes. Les campagnes MACAMAZ et KAMASUTRA furent fructueuses, ayant abouti à une publication dont les résultats sont détaillés au Chapitre 6, tandis que les campagnes INDOAM et KAMASUTRA II furent des échecs en ce qui concerne les mesures lidar, seules des mesures photométriques ayant pu être réalisées.

Plusieurs membres du LACy ont participé à ces campagnes ; j'ai, quant à moi, - outre les installations (parfois périlleuses !) et désinstallations du lidar sur le pont du navire pour les quatre campagnes - eu la chance de participer à l'intégralité des campagnes KAMASUTRA et INDOAM. Je garde un souvenir ému de ces semaines en mer, avec un équipage et des passagers hauts en couleur et des paysages à couper le souffle (au sens propre comme au sens figuré!).

3.6 Conclusions du Chapitre 3

Ce chapitre a présenté les bases théoriques nécessaires à la compréhension des phénomènes d'extinction atmosphériques, l'accent étant mis sur les domaines de longueur d'onde de l'UV et du visible. Les instruments ayant servi à la détection et à la caractérisation des aérosols dans le cadre de cette thèse - le photomètre et le lidar - se basent en effet sur les phénomènes d'absorption et de diffusion du rayonnement dans l'atmosphère.

Le photomètre est un instrument de télédétection passif mesurant le rayonnement solaire à des longueurs d'onde appartenant à des fenêtres spectrales : l'extinction due aux molécules atmosphérique y est très faible tandis que les aérosols y jouent un rôle d'extinction prépondérant. Les mesures photométriques permettent d'avoir accès à la quantité d'aérosols intégrée sur toute la colonne atmosphérique via l'épaisseur optique, ainsi qu'à une évaluation de la distribution en taille des aérosols grâce à des mesures d'almucantar (dans le cas du photomètre fixe). Le coefficient d'Ångström, qu'il est possible de déduire de mesures d'épaisseurs optiques à différentes longueurs d'onde, donne des indications sur la taille moyenne des particules détectées.

Le lidar est un instrument de télédétection actif : il émet des pulses laser dans l'atmosphère et mesure le rayonnement rétrodiffusé en fonction du temps. L'équation lidar fait intervenir plusieurs inconnues : deux sont de nature instrumentale (le facteur de recouvrement et la constante instrumentale), deux concernent l'atmosphère sondée (les coefficients de diffusion et d'absorption

3. TÉLÉDÉTECTION DES AÉROSOLS PAR PHOTOMÈTRE ET LIDAR

particulaires). Les méthodes de calcul du facteur de recouvrement et de la constante instrumentale ont été explicitées. L'inversion du signal lidar grâce à la méthode de Fernald-Klett contrainte par une mesure indépendante de l'épaisseur optique par photomètre donne accès au calcul du BER et au profil d'extinction des aérosols.

Les quatre campagnes avec lidar et photomètre embarqués à bord du navire de recherche Marion Dufresne dans l'Océan Indien ont été décrites. Sur ces quatre campagnes, deux ont été couronnées de succès par la publication d'un article sur les propriétés optiques des aérosols marins et de feu dans le sud-ouest de l'Océan Indien (Chapitre 6), et deux n'ont permis que l'acquisition de mesures photométriques, intégrées aux mesures du réseau MAN.

4

Outils de modélisation

4.1 Introduction

Les travaux menés à bien au cours de cette thèse ont fait appel aux moyens instrumentaux mis en oeuvre dans le cadre de l'OPAR - tels le FTIR (Chapitre 2), le photomètre et le lidar (Chapitre 3) - afin de détecter et quantifier la présence de gaz traces et d'aérosols atmosphériques. Ces techniques instrumentales ne permettent de connaître la distribution verticale des polluants qu'à un instant et à un endroit donnés. L'utilisation conjointe des outils de modélisation présentés dans ce chapitre et des observations provenant des instruments de mesure présentés précédemment permet de pallier les limitations spatio-temporelles de ces derniers, étant eux-mêmes utilisés pour valider les résultats des premiers.

Ce chapitre se propose de décrire les modèles de dispersion de panache FLEXPART (Section 4.2), GIRAFE (Section 4.3) et LACYTRAJ (Section 4.4).

4.2 FLEXPART

Le modèle lagrangien FLEXPART a été originellement créé pour simuler la dispersion à grande échelle de polluants atmosphériques à partir d'un point donné, comme par exemple après un incident dans une centrale nucléaire [Stohl *et al.*, 1998]. Il a depuis évolué pour être aujourd'hui un outil permettant la modélisation et l'analyse de transports atmosphériques tels que les échanges stratosphère-troposphère ou l'analyse de l'origine des masses d'air par rétrotrajectoires [Stohl *et al.*, 2005].

Les modèles de particules lagrangiens calculent les trajectoires d'un grand nombre de particules - qui ne représentent pas nécessairement des particules, mais des masses d'air infiniment petites - pour décrire le transport et la diffusion de traceurs dans l'atmosphère. L'avantage principal des modèles lagrangiens est qu'ils n'induisent pas de diffusion numérique, contrairement

4. OUTILS DE MODÉLISATION

aux modèles eulériens. De plus, dans les modèles eulériens, un traceur émis d'un point source est instantanément mélangé au sein d'une maille de la grille du modèle, alors que les modèles lagrangiens sont indépendants de la grille de calcul et ont, en principe, une résolution infiniment fine.

Le modèle FLEXPART utilise les champs météorologiques (opérationnelles, réanalyses et prévisions) ECMWF au format Gridded Binary (GRIB) avec des résolutions spatiale de 1x1 et temporelle de 3h. Ces champs fournissent des informations sur des variables atmosphériques telles que le tourbillon potentiel (PV), l'humidité relative (RH), la température, les champs de vent horizontaux et verticaux, la couverture nuageuse, les précipitations, le flux de chaleur sensible, ou encore la topographie. La version 6.2 de FLEXPART [Stohl *et al.*, 2005] prend en compte la diffusion, les dépôts secs et humides et la convection.

Il est possible de coupler le modèle FLEXPART avec des bases de données d'émission afin de quantifier le transport de gaz traces à un point donné. En effet, le temps de résidence des masses d'air près du sol peut être calculé à partir des simulations FLEXPART et s'exprime en $\text{s m}^3 \text{ kg}^{-1}$. Connaissant ce temps de résidence et les émissions de gaz trace (exprimées en $\text{kg m}^{-3} \text{ s}^{-1}$) provenant de bases de données d'émission, on obtient un rapport de mélange massique (en kg/kg) au point de réception. Ce procédé est utilisé Section 5.2.3.2.2 avec les bases de données Global Fire Emissions Database version 2 (GFEDv2.1) [Van der Werf *et al.*, 2006] et Emission Database for Global Atmospheric Research (EDGARv3.2-FT2000) [Olivier *et al.*, 2005] dans le cadre de l'étude de la contribution de différentes zones d'émission à la concentration en CO à la verticale de la Réunion. Ce couplage FLEXPART-bases de données d'émission est différent du modèle GIRAFE décrit ci-dessous : le premier utilise les émissions de gaz traces quantifiées tandis que le second utilise la détection des feux par satellite, sans quantification de l'émission de gaz.

4.3 GIRAFE

Le modèle Girafe (reGional ReAl time Fire plumes), dont le développement a été initié par ETHER (Centre de Produits et de Services de Chimie de l'Atmosphère, <http://ether.ipsl.jussieu.fr/>) [Mari *et al.*, 2008], vise à simuler et à visualiser l'évolution des panaches issus des feux de biomasse au cours du temps. GIRAFE v3 combine le modèle lagrangien FLEXPART 6.2 aux détections de feu par l'instrument MODIS (MODerate resolution Imaging Spectroradiometer).

4.3.1 MODIS

Le premier spectroradiomètre MODIS a été placé en orbite terrestre par la NASA en 1999 à bord du satellite Terra, et le deuxième en 2002 à bord du satellite Aqua. Les instruments MODIS capturent des informations dans 36 bandes spectrales allant des longueurs d'onde 0,4 m à 14,4 m à des résolutions spatiales variées (2 bandes à 250 m, 5 bandes à 500 m et 29 bandes à 1 km). Ces instruments scannent l'ensemble de la surface terrestre en un ou deux jours. Ils ont été conçus afin de fournir des mesures à l'échelle globale telles que la couverture nuageuse, le budget radiatif, et différents événements se produisant au niveau des océans, de la terre ferme et de la basse troposphère.

C'est ainsi qu'un programme spécifique d'exploitation des données MODIS (le MODIS Active Fire Detection product, [Morissette et al., 2005]) a été mis en place afin de permettre la détection des foyers d'incendie. La détection des feux par MODIS se fait grâce à l'exploitation de leurs fortes émissions infrarouges [Giglio et al., 2003]. L'algorithme de détection assigne à chaque pixel fourni par MODIS une des classes suivantes : donnée absente, nuage, eau, absence de feu, feu, ou inconnu. Dans le cas de l'identification supposée d'un foyer d'incendie, les températures de brillance des pixels adjacents sont prises en considération afin de vérifier la validité de la détection. De plus, des tests additionnels sont faits afin d'éviter les fausses détections dues au reflet du soleil, frontières des déserts, etc. Les détections ainsi effectuées sont stockées et disponibles en temps quasi réel sur Internet, par exemple via le FIRMS (Fire Information for Resource Management System) développé par l'Université du Maryland (<http://maps.geog.umd.edu/firms/>). FIRMS fournit les spots de feu actif en utilisant le MODIS MOD14 Fire and Thermal Anomalies Product. Chaque localisation d'un feu actif représente le centre d'un pixel de 1x1 km.

4.3.2 GIRAFE v3

Le modèle GIRAFE v3 exploite les détections de foyer d'incendie par MODIS, et, pour chaque feu détecté, émet une quantité prédéfinie de particules dont les trajectoires sont ensuite simulées par le modèle FLEXPART 6.2 (uniquement en mode prévision, c'est à dire que les rétrotrajectoires ne sont pas permises). A partir d'une période et d'une zone de simulation, de la date des données de localisation de feux MODIS à utiliser, du nombre de particules à émettre, de l'altitude d'injection et de la durée d'émission, GIRAFE récupère automatiquement les données ECMWF (opérationnelles) et MODIS, et détermine les trajectoires suivies par les panaches résultants des feux de biomasse.

L'un de mes premiers travaux au sein du LACy fut d'installer et de paramétrer le modèle GIRAFE, avec l'aide précieuse et indispensable de Franck Gabarrot. GIRAFE est aujourd'hui

4. OUTILS DE MODÉLISATION

installé et opérationnel sur les serveurs du LACy. Après avoir rencontré de nombreux problèmes d'ordre technique (GIRAFE s'appuie en effet sur plusieurs interfaces et serveurs informatiques dialoguant entre eux, ce qui multiplie les possibilités de problèmes informatiques dont la description n'est pas le propos du présent manuscrit), le modèle GIRAFE s'est révélé performant dans la description de la dispersion des panaches de gaz traces émis par les feux de biomasse. Des exemples d'utilisation sont fournis aux Sections 5.3.3 et 7.1. La simulation de l'évolution des panaches d'aérosols est cependant un peu plus sujette à caution : les multiples transformations subies par les aérosols au cours de leur transport (réactions chimiques, grossissement par hygroscopicité ou coagulation influençant leur vitesse de déposition) n'étant pas prises en compte dans le modèle, leur distribution verticale semble imparfaitement simulée. La Section 6.3.1 étudie l'accord entre l'altitude de transport observée par lidar d'un panache d'aérosols de feux détecté dans l'Océan Indien et l'altitude du panache simulée par GIRAFE. A noter la prochaine livraison de GIRAFE v4, incluant FLEXPART 8.2, lequel intègre un paramétrage plus détaillé des aérosols, ce qui pourra améliorer la simulation de leur altitude de transport par GIRAFE.

4.4 LACYTRAJ

4.4.1 Description

LACYTRAJ est un code de trajectoire cinétique écrit en C++ au sein du LACy, et utilisant des données (opérationnelles) ECMWF pré-formatées en un format binaire grâce au programme 'wgrib' NCEP. Les données ont une résolution horizontale de 1,125 degrés, 21 ou 23 niveaux de pressions et une résolution temporelle de 6 heures. Il est possible de lancer LACYTRAJ sur des données possédant une meilleure résolution, si ces données sont disponibles. L'utilisateur définit une grille de départ en trois dimensions. Chaque point de la grille est advecté en utilisant une interpolation bilinéaire pour les champs de vent horizontaux et une interpolation temporelle et logarithmique-linéaire pour les champs de vent verticaux. Cette opération est effectuée avec un pas de temps défini par l'utilisateur, typiquement entre 5 et 30 minutes pour un calcul de quelques jours. Le fichier binaire en sortie contient la longitude, la latitude, et la pression pour chaque point de la grille et pour chaque pas de temps.

Le pas de temps utilisé lors des calculs avec LACYTRAJ des rétrotrajectoires présentées et exploitées dans la suite de cette thèse est de 15 minutes. La grille de départ est définie avec des pas de latitude et de longitude de 0,5 autour de la Réunion. De plus amples détails sur ce code peuvent être trouvés dans *Clain et al.* [2010].

4.4.2 Validation

Afin de procéder à la validation des simulations LACYTRAJ, plusieurs études comparatives ont été menées, notamment entre ce code et le modèle MIMOSA (Modèle Isentropique du transport Meso-échelle de l'Ozone Stratosphérique par Advection) [*Hauchecorne et al.*, 2002], et entre ce code et FLEXPART sur un cas de STE ayant eu lieu à proximité du cyclone Guillaume et étudié précédemment par *Leclair de Bellevue et al.* [2006]. Pour cette comparaison LACYTRAJ-FLEXPART, deux ensembles de rétrotrajectoires aboutissant à la Réunion le 15 Février 2002 à une altitude de 9 km et le 19 Février 2002 à une altitude 7 km ont été calculés à la fois avec LACYTRAJ et FLEXPART 6.2 (Figure 4.1). La comparaison des résultats des deux modèles montrent que, bien que ne faisant pas intervenir de paramétrage explicite de la convection et bien qu'ayant une résolution verticale inférieure, LACYTRAJ est en accord avec les simulations FLEXPART dans des cas assez complexes faisant intervenir la convection profonde à proximité d'un système dépressionnaire tropical. LACYTRAJ s'avère donc être un outil adapté à l'étude de la dynamique atmosphérique, particulièrement lorsque le calcul d'un grand nombre de rétrotrajectoires est nécessaire.

4.5 Conclusions du chapitre 4

Ce chapitre a présenté les outils de modélisation numérique utilisés dans le cadre de ces travaux de recherche. FLEXPART est un modèle de dispersion lagrangien prenant en compte notamment la convection et permettant le calcul de l'origine ou de la destination des masses d'air. Le modèle GIRAFE v3 s'appuie sur le modèle FLEXPART 6.2 et la détection de feux par MODIS : de chaque pixel de feu localisé par MODIS, GIRAFE émet un certain nombre de particules numériques dont les trajectoires en avant sont simulées par FLEXPART. Le modèle LACYTRAJ est un code de trajectoire cinétique basé sur l'interpolation des champs de données considérés. Ces trois modèles utilisent les données opérationnelles ECMWF.

4. OUTILS DE MODÉLISATION

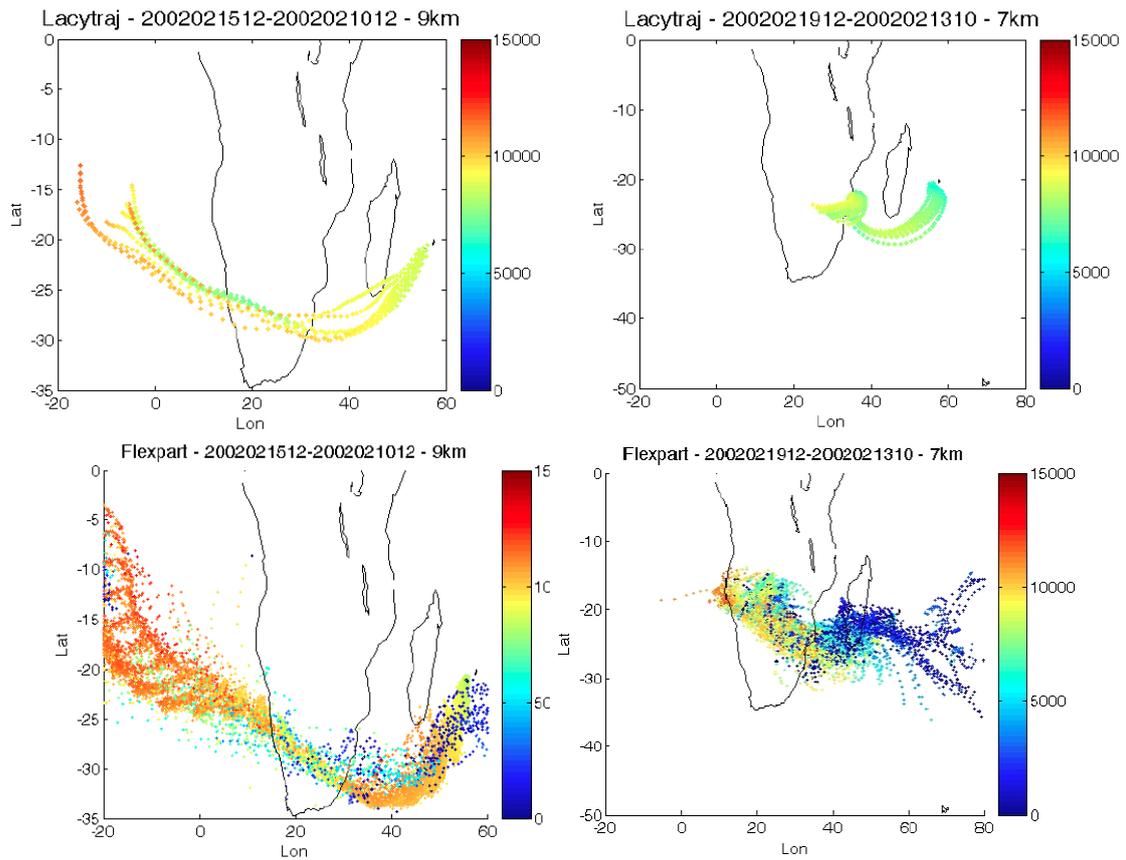


Figure 4.1: Comparaison LACYTRAJ/FLEXPART - Comparaison des rétrotrajectoires calculées par LACYTRAJ (en haut) et des trajectoires calculées par FLEXPART (en bas) pour les cas des 15 (à gauche) et 19 (à droite) février 2002.

5

Transport et distribution de gaz traces dans le sud-ouest de l’Océan Indien

5.1 Introduction

L’introduction générale (Chapitre 1) a permis de mettre en évidence l’intérêt de l’étude du transport et de la distribution de gaz traces dans le sud-ouest de l’Océan Indien, et les Sections 2 à 4 ont présenté les instruments et modèles utilisés dans le cadre de cette étude. Cette Section se propose de présenter les résultats obtenus grâce à ces outils en se focalisant dans un premier temps sur la distribution du CO dans l’Océan Indien, sur ses voies de transport privilégiées et sur les contributions relatives des zones d’émission aux concentrations mesurées (Section 5.2). Pour cela, les mesures acquises durant les campagnes FTIR menées à la Réunion (Section 2.2.5) sont exploitées conjointement à des observations MOPITT (Section 5.2.3.2) et à des simulations LACYTRAJ (Section 4.4) et FLEXPART couplées à des bases de données d’émission (Section 4.2). Dans un deuxième temps, une étude de l’évolution de la distribution verticale d’ozone aux Kerguelen est présentée (Section 5.3). Elle se base sur une campagne de radiosondage menée aux Kerguelen en 2008-2009 et sur une analyse de la provenance de l’ozone par le modèle GIRAFE (Section 4.3).

5.2 Analyse de la distribution de CO dans le sud-ouest de l'Océan Indien tropical

5.2.1 Introduction

En 2004, 2007 et de 2009 à 2011, trois campagnes FTIR ont été menées à la Réunion en collaboration avec l'IASB (Section 2.2.5). Ces campagnes avaient pour objectif de documenter l'évolution de la concentration en gaz traces dans le sud-ouest de l'Océan Indien et ont donné lieu à trois publications : *Senten et al.* [2008], *Vigouroux et al.* [2009] et *Duflot et al.* [2010]. Une attention toute particulière a été portée sur le CO, étant un gaz trace émis à la fois par les feux de biomasse et les activités industrielles anthropiques et possédant une durée de vie suffisamment longue pour permettre d'identifier des transports de polluant à grande échelle (Section 1.4.1).

La présente section se propose de présenter les résultats de ces trois campagnes pour la molécule de CO. La campagne 2007 - couvrant la saison des feux de Juin à Octobre - a fait l'objet d'une étude plus approfondie afin de déterminer les origines préférentielles des masses d'air chargées en CO ainsi que leur contribution sur la distribution verticale du CO observée par FTIR.

5.2.2 Observations FTIR au sol à la Réunion

Les séries temporelles de colonnes totales de CO obtenues grâce aux mesures d'absorption solaire effectuées par FTIR à la Réunion durant les campagnes 2004, 2007 et 2009-2011 sont présentées sur la Figure 5.1. Aucune donnée n'est disponible de fin Mars à mi-Mai. On peut remarquer que l'évolution de la colonne totale de CO est comparable pour les cinq années considérées, ce qui suppose qu'aucune tendance de concentration de CO a la verticale de la Réunion n'est notable. Pour ces années, on observe d'abord un niveau de fond de CO aux alentours de $\approx 1.2 \pm 0.06 \cdot 10^{18}$ molec/cm² de Décembre à Mars, puis une légère augmentation de la colonne totale de CO de Juin à début Août à $\approx 1.4 \pm 0.07 \cdot 10^{18}$ molec/cm², ensuite une nette augmentation avec des pics en Octobre à $\approx 3 \pm 0.15 \cdot 10^{18}$ molec/cm², et enfin une diminution de Octobre à Décembre jusqu'à revenir au niveau de fond ($\approx 1.2 \pm 0.06 \cdot 10^{18}$ molec/cm²). Le cycle annuel de CO à la Réunion est ainsi représenté.

Le puits principal de CO est la réaction avec le radical OH. De forte radiation UV et une humidité élevée favorisent la formation du radical OH par la photolyse de O₃ [*Logan et al.*, 1981; *Thompson*, 1992] pendant l'été tropical (Section 1.4.1). La durée de vie du CO est donc plus élevée en hiver, ce qui provoque son accumulation et peut expliquer la légère augmentation de la quantité de CO entre Mars et Juin. Néanmoins, ceci ne pourrait expliquer l'augmentation de CO observée entre Juillet et Octobre : cette période est une période hivernale, la durée de

5.2 Analyse de la distribution de CO dans le sud-ouest de l’Océan Indien tropical

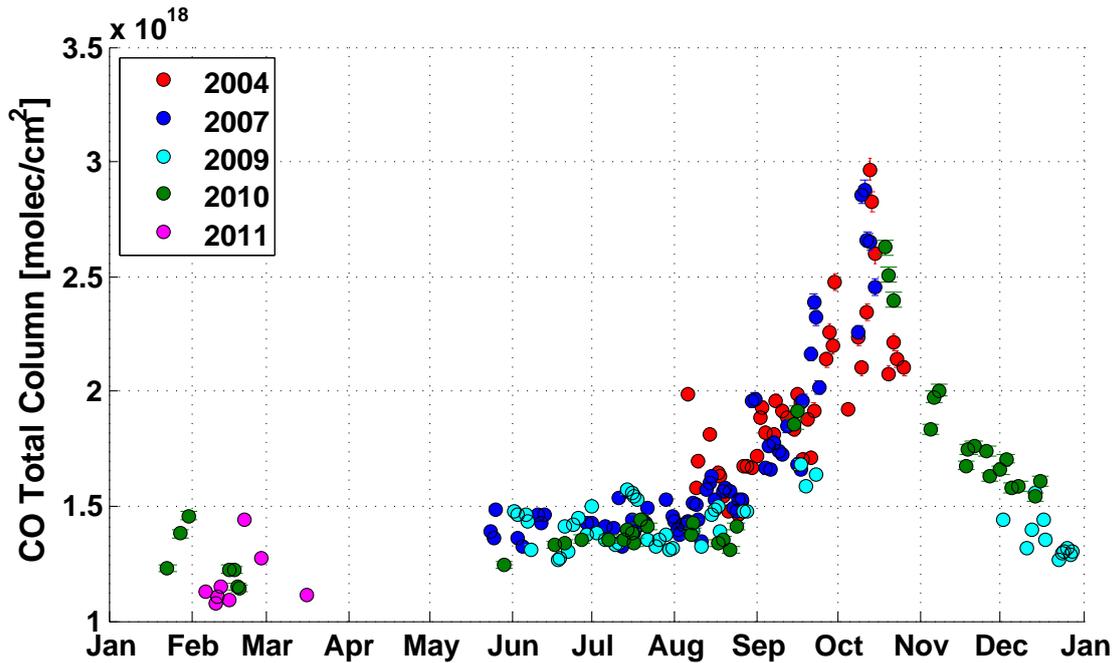


Figure 5.1: Colonnes totales de CO - Colonnes totales de CO mesurées à la verticale de la Réunion par FTIR lors des années 2004, 2007, 2009, 2010 et 2011. Les barres d’erreur (Section 2.2.5.4) sont affichées (mais très peu visibles car incluses dans la taille des disques).

vie du CO a donc déjà été augmentée. L’augmentation de CO observée de Juillet à Octobre concide avec la saisonnalité des feux de biomasse ayant lieu dans l’hémisphère sud : les feux de biomasse se produisent principalement de Août à Octobre [Marenco *et al.*, 1990 ; Cooke *et al.*, 1996 ; Generoso *et al.*, 2003 ; Edwards *et al.*, 2006b].

La Figure 5.2 montre la variabilité des colonnes partielles de CO lors des trois campagnes. Ces colonnes partielles correspondent aux trois couches indépendantes identifiées dans la Section 2.2.5.4 (0-5 km, 5-11 km, 11-17 km). Là encore, aucune tendance n’est décelable sur les cinq années considérées. On remarque que, pour ces cinq années, les trois colonnes partielles suivent à peu près la même évolution que la colonne totale : niveau de fond de décembre à mi-Juillet, puis augmentation jusque mi-October, et diminution jusqu’au niveau de fond. On remarque néanmoins que l’augmentation de la concentration de CO se produisant à partir de Août, ainsi que les quelques pics d’augmentation ayant lieu en Septembre et Octobre, sont surtout visibles dans les deux colonnes partielles les plus basses.

Le Tableau 5.1 donne l’augmentation de la concentration de CO entre le niveau de fond hivernal (calculé comme la moyenne des concentrations de CO entre début Juin et mi-Juillet) et la concentration moyenne de CO au plus fort de la saison des feux (calculée comme la moyenne des concentrations de CO au cours du mois d’October) pour les années 2007 et 2010 (ce sont les

5. TRANSPORT ET DISTRIBUTION DE GAZ TRACES DANS LE SUD-OUEST DE L'OcéAN INDIEN

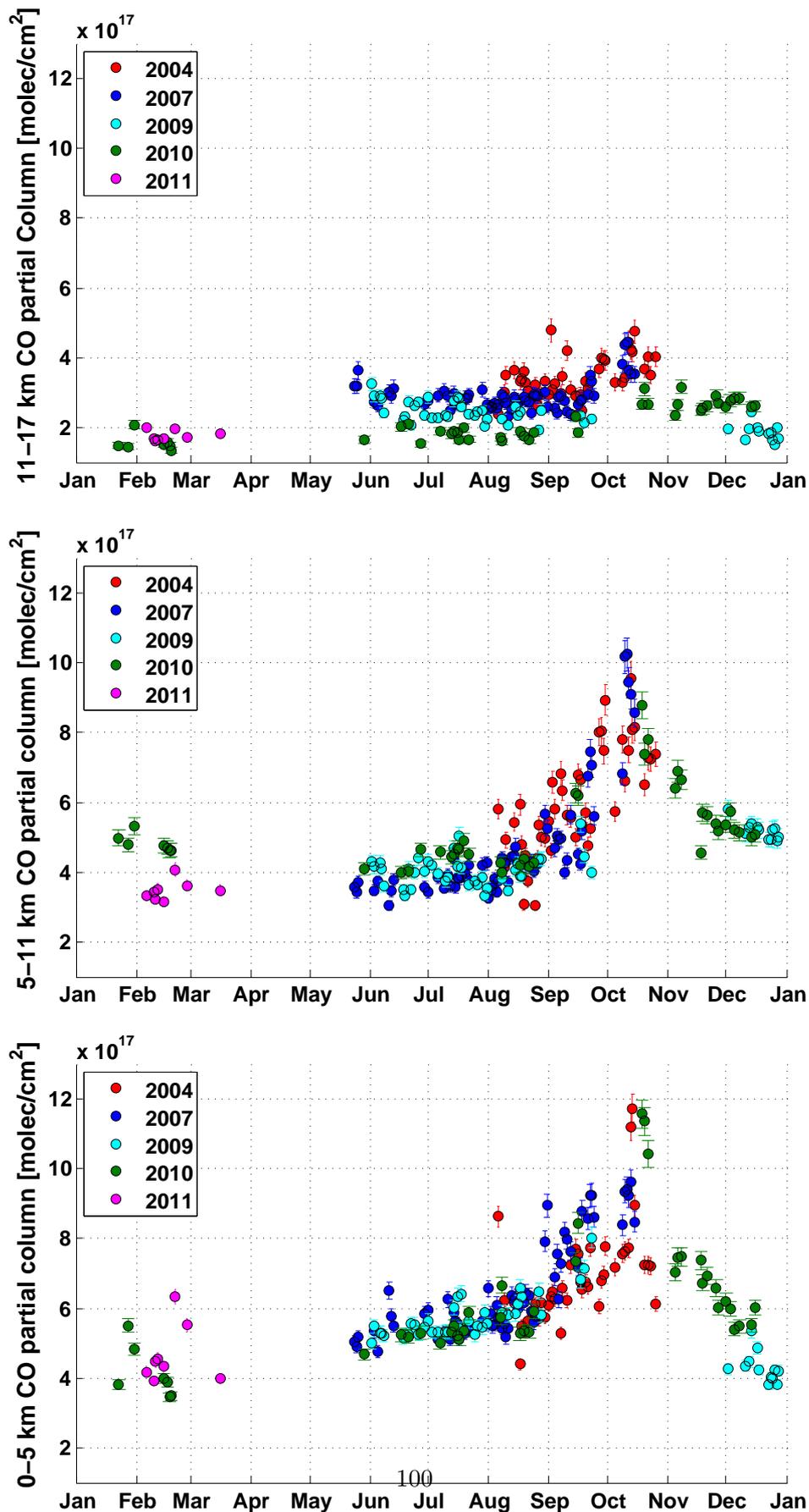


Figure 5.2: Colonnes partielles de CO - Colonnes partielles de CO mesurées à la verticale de la Réunion par FTIR pour les années 2004, 2007, 2009, 2010 et 2011 : 11-17km (en haut) ; 5-11km (au milieu) ; 0-5km (en bas). Les barres d'erreur sont affichées (Section 2.2.5.4).

5.2 Analyse de la distribution de CO dans le sud-ouest de l'Océan Indien tropical

seules séries de données en continue sur la période Juin-Octobre). Alors que le CO est légèrement plus abondant dans la couche 0-5 km que dans les autres couches au début de la campagne, le Tableau 5.1 montre que la couche 5-11 km présente l'augmentation de CO la plus importante ($158.21 \pm 65.77 \%$ et $91.17 \pm 43.77 \%$ pour 2007 et 2010, respectivement). Cette augmentation de CO visible sur la Figure 5.2 et se produisant principalement au dessus de 5 km peut être expliquée par l'inversion des alizés ayant lieu aux alentours de 4 km avec des vents d'est au dessus de 4 km et un flux d'ouest en dessous [Taupin *et al.*, 1999]. Une analyse plus récente basée sur des mesures GPS et UHF au dessus de la Réunion a montré que l'altitude d'inversion des alizés dépend de la saison et varie entre 3 km en hiver austral et 5 km en été austral [Clain *et al.*, 2009; LeSouef, 2010]. Le flux d'ouest au dessus de cette altitude d'inversion permet le transport de masses d'air venant d'Afrique et de Madagascar chargées davantage en CO que celles venant de l'est sous l'altitude d'inversion des alizés.

Colonne partielle [km]	Concentration en CO [10^{17} molec/cm ²]		Augmentation de CO [%]
	Avant la saison des feux	Pendant la saison des feux	
2007			
11-17	2.93 ± 0.53	3.89 ± 0.70	41.61 ± 49.17
5-11	3.63 ± 0.47	9.06 ± 1.17	158.21 ± 65.77
0-5	5.51 ± 0.56	9.08 ± 0.93	68.40 ± 34.00
2010			
11-17	1.86 ± 0.34	2.81 ± 0.51	51.01 ± 46.10
5-11	4.19 ± 0.54	8.01 ± 1.03	91.17 ± 43.77
0-5	5.39 ± 0.55	10.11 ± 1.04	87.57 ± 34.74

Table 5.1: Augmentation de la concentration de CO - Augmentation de la concentration de CO entre Juin-Juillet et Octobre pour chaque colonne partielle pour les années 2007 et 2010 à la Réunion.

Les valeurs de la colonne partielle de CO dans la couche 0-5 km en Juin-Juillet sont relativement élevées ($5.51 \pm 0.56 \cdot 10^{17}$ molec.cm⁻² et $5.39 \pm 0.55 \cdot 10^{17}$ molec.cm⁻² ce qui représente 67.78 ± 6.91 ppbv et 66.30 ± 6.77 ppbv en unité vmr moyennée sur toute la colonne partielle pour 2007 et 2010, respectivement). L'Observatoire Réunionnais de l'Air (ORA - <http://www.atmo-reunion.net/>) indique un niveau moyen de CO au sol à Saint Denis de 110 ppbv. Cette concentration, mesurée proche du sol, est plus impactée par la pollution locale que la concentration de CO déduite des mesures FTIR qui est moyennée sur l'ensemble de la colonne partielle 0-5 km. L'augmentation en CO visible dans la couche 0-5 km (atteignant en Octobre $9.08 \pm 0.93 \cdot 10^{17}$ molec.cm⁻² et $10.11 \pm 1.04 \cdot 10^{17}$ molec.cm⁻² ce qui représente 125.72 ± 12.82 ppbv et

5. TRANSPORT ET DISTRIBUTION DE GAZ TRACES DANS LE SUD-OUEST DE L’OCÉAN INDIEN

139.98 ± 14.40 ppbv en unité vmr moyennée sur toute la colonne partielle pour 2007 et 2010, respectivement) pourrait venir d’échanges dynamiques entre les couches de la basse (0-5 km) et de la moyenne (5-11 km) troposphère. Ce phénomène a déjà été explicité dans le cas de l’O₃ à la Réunion [Clain *et al.*, 2009].

Nous venons de voir l’évolution des séries temporelles de colonnes totale et partielles de CO mesurées par FTIR à la verticale de la Réunion. La compréhension des processus gouvernant cette distribution verticale et son évolution nécessite à la fois l’étude des mécanismes de transport des polluants et la prise en compte des émissions de CO dans les différentes régions du monde contribuant potentiellement à la concentration observée à la Réunion. C’est ce que se propose de faire la section suivante pour la saison des feux australe 2007.

5.2.3 Analyse de la saison des feux 2007

Les objectifs de cette section sont de documenter l’évolution temporelle de la distribution verticale de la concentration de CO au dessus de la Réunion en 2007, de déterminer les sources qui gouvernent cette évolution temporelle et d’examiner si des masses d’air venant d’Asie du sud-est peuvent être identifiées et dans quelle mesure elles affectent la distribution du CO dans la région de l’Océan Indien subtropical de l’hémisphère sud. Pour cela, les mesures de concentration de CO acquises lors de la campagne de 2007 (Section 2.4) sont exploitées conjointement avec les mesures de pixels de feux par MODIS (Section 4.3) ainsi que les mesures satellitaires de CO par MOPITT. Un ensemble de rétro-trajectoires a également été calculé afin d’étudier l’origine des masses d’air passant au dessus de la Réunion, ainsi qu’un ensemble de simulations combinant le modèle lagrangien FLEXPART (Section 4.2), le Global Fire Emissions Database (GFEDv2.1) et le Emission Database for Global Atmospheric Research (EDGARv3.2-FT2000) afin d’évaluer les contributions relatives de différentes zones sources.

5.2.3.1 Données et bases de données utilisées dans cette étude

MOPITT

MOPITT (Measurements Of Pollution In The Troposphere, <http://www.acd.ucar.edu/mopitt/>) [Drummond and Mand, 1996] est un instrument pointant au nadir installé sur le satellite EOS Terra de la NASA et opérationnel depuis Mars 2000. Il permet la mesure de la concentration en CO à l’échelle globale. L’empreinte de l’instrument est de 22 km x 22 km et les profils verticaux sont obtenus pour 7 niveaux de pression (surface, 850, 700, 500, 350, 250 et 150 hPa). La technique d’inversion pour l’obtention des profils de CO par MOPITT est basée sur la méthode

5.2 Analyse de la distribution de CO dans le sud-ouest de l’Océan Indien tropical

d’estimation optimale développé par *Rodgers* [2000]. Dans cette étude, sont considérées les inversions des signaux MOPITT CO version 3 uniquement obtenus de jour, car ils présentent un DOF plus élevé que les inversions des signaux mesurés de nuit [*Deeter et al.*, 2004a]. De plus, seules les inversions présentant un taux de contribution de l’a priori inférieur à 50% sont exploitées afin d’assurer la qualité des données.

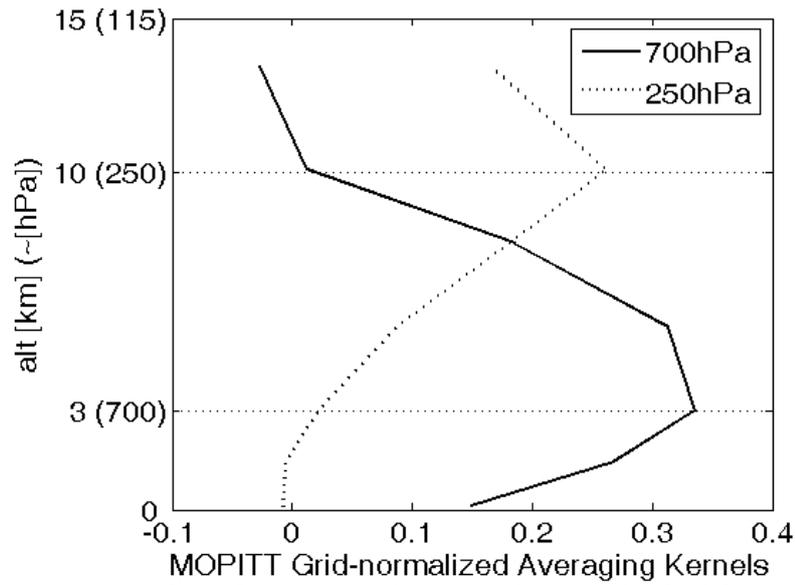


Figure 5.3: Fonctions de moyennage de MOPITT - Fonctions de moyennage MOPITT normalisées sur la grille de pression (en vmr/vmr, unité sans dimension) au dessus de la Réunion pour les niveaux 700hPa et 250hPa.

Les inversions MOPITT fournissent des valeurs moyennes de CO dans deux couches relativement épaisses de l’atmosphère : dans la basse troposphère de 850 à 500 hPa, et dans la haute troposphère de 300 à 200 hPa [*Deeter et al.*, 2004a; *Kar et al.*, 2004]. Des rapports détaillés sur les tests de validation et de sensibilité peuvent être trouvés dans *Deeter et al.* [2004b] et *Emmons et al.* [2004, 2007, 2009]. La Figure 5.3 montre les fonctions de moyennage (Section 2.3) de MOPITT aux niveaux 700 et 250 hPa au dessus d’une surface de 300 km de diamètre autour de la Réunion. Les fonctions de moyennage ont été normalisées suivant les considérations indiquées dans *Deeter et al.* [2007]. Les inversions MOPITT au dessus de la Réunion - celle-ci pouvant être assimilée à un disque de diamètre d’environ 72 km - sont principalement des inversions de signaux obtenus au dessus de la mer, ce qui réduit la sensibilité de MOPITT dans la basse troposphère [*Deeter et al.*, 2007]. On peut remarquer sur la Figure 5.3 que les inversions à 700 hPa sont essentiellement impactées par la concentration de CO dans la couche 2-8 km (850-350 hPa) alors que les inversions à 250 hPa sont représentatives de la concentration en CO dans la couche 8-13 km (350-150 hPa).

5. TRANSPORT ET DISTRIBUTION DE GAZ TRACES DANS LE SUD-OUEST DE L'Océan Indien

FLEXPART, GFED et EDGAR

Le modèle de transport lagrangien FLEXPART 6.2 (Section 4.2) est utilisé dans cette étude. La période de calcul des rétrotrajectoires a été fixée à 50 jours. Cette période peut paraître trop longue au regard de la durée de vie plus faible du CO en zone tropicale, mais elle est adaptée à la plus grande durée de vie du CO dans la haute troposphère. La base de donnée Global Fire Emissions Database version 2 (GFEDv2.1) [Van der Werf *et al.*, 2006] contient les émissions de CO avec des résolutions temporelle de 8 jours et spatiale de $1^\circ \times 1^\circ$. La base de données a été constituée en utilisant des données satellite et le modèle biogéochimique CASA (Carnegie-Ames-Stanford Approach). Elle est utilisée dans la suite pour prendre en compte les émissions dues aux feux de biomasse. La base de donnée Emission Database for Global Atmospheric Research (EDGAR) contient un inventaire des émissions des gaz à effet de serre et autres polluants d'origine anthropique. La base utilisée ici est la EDGARv3.2-FT2000 (année 2000) [Olivier *et al.*, 2005], disponible avec une résolution spatiale de $1^\circ \times 1^\circ$.

5.2.3.2 Observations MOPITT

Afin d'analyser les variations dans la distribution verticale du CO pendant la saison des feux de l'hémisphère sud, la Figure 5.4 (réalisée par Jean-Luc Attié du Laboratoire d'Aérodynamique) présente les moyennes mensuelles du ratio entre les mesures MOPITT de concentration de CO aux niveaux de restitution 250 et 700 hPa de Juin à Octobre 2007. Une valeur du ratio supérieure (inférieure) à 1 correspond à davantage de CO au niveau de restitution 250 hPa qu'au niveau de restitution 700 hPa (davantage de CO au niveau de restitution 700 hPa qu'au niveau de restitution 250 hPa). Les données correspondantes à des pixels nuageux ne sont pas utilisées. Pour les mois de Juillet à Octobre, la valeur du ratio est faible (≈ 0.5) proche des zones sources (Afrique australe et Amérique du Sud). Des valeurs de ratio aux alentours de 0.7 peuvent être observées sur la zone de transport privilégié de masses d'air de l'Amérique du Sud et de l'Afrique australe vers l'Australie (sud de l'Océan Atlantique et sud de l'Océan Indien subtropical) pendant toute la période d'étude [Edwards *et al.*, 2006a]. Tandis que l'activité des feux de biomasse augmente au cours de la période, les valeurs de ratio au sein de cette zone de transport à grande échelle de CO diminuent de 0.8 en Juin à 0.6 en Août, Septembre et Octobre. La même observation peut être effectuée autour de la Réunion, où les valeurs de ratio diminuent de 0.9 à 0.7 pendant la période. En prenant en compte les fonctions de moyennage de MOPITT (Figure 5.3), cela montre que les masses d'air enrichies en CO au sein de cette route de transport intercontinentale voyagent préférentiellement au niveau de restitution 700 hPa, soit dans la couche $\approx 2-8$ km. Au dessus du sud de l'Océan Indien équatorial, les valeurs du ratio sont beaucoup plus élevées que 1 (≈ 1.4) pendant toute la période d'étude et particulièrement en Juin, Juillet et Août, ce qui indique probablement une injection de CO de la couche limite vers les hautes altitudes troposphériques par convection profonde au dessus des zones d'émissions et

5.2 Analyse de la distribution de CO dans le sud-ouest de l'Océan Indien tropical

de transport. Ces résultats sont commentés à la section suivante.

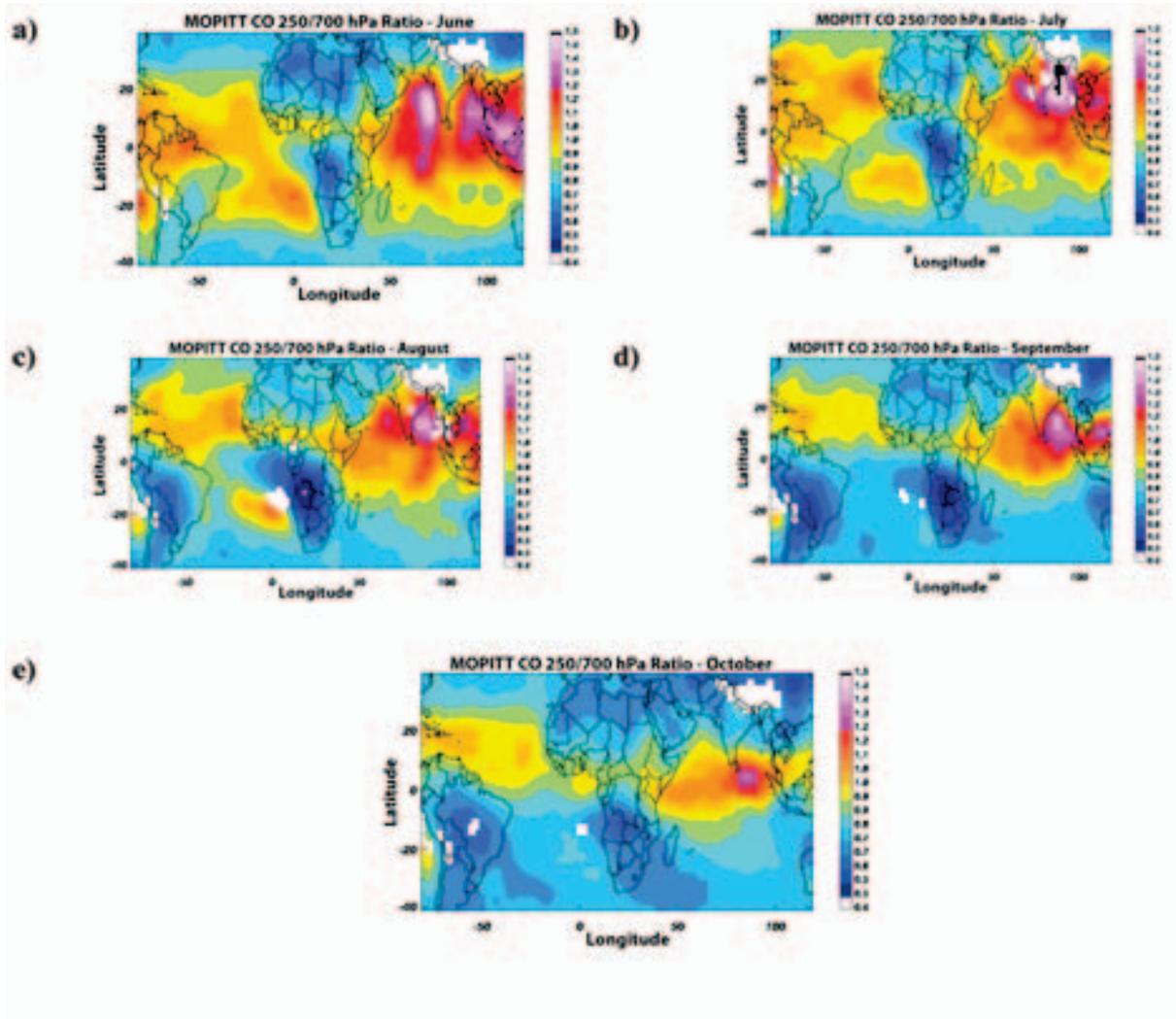


Figure 5.4: Observations MOPITT - Moyennes mensuelles du ratio entre les concentrations de CO aux niveaux 250 et 700hPa mesurées par MOPITT pour les mois de (a) Juin, (b) Juillet, (c) Août, (d) Septembre and (e) Octobre 2007 (*Jean-Luc Attié, L.A.*).

5.2.3.3 Origines des masses d'air passant à la verticale de la Réunion

Le but de cette section est de mettre en évidence les processus dynamiques qui gouvernent le transport des masses d'air vers les abords de la Réunion, et d'identifier les principales zones sources potentielles affectant la concentration en CO à la Réunion lors de la campagne 2007. La Figure 5.5 montre les zones définies et utilisées par la suite dans l'analyse : la zone SAM correspond à l'Amérique Latine, la zone AFM à l'Afrique Australe et Madagascar, la zone SEA à l'Asie du sud-est, la zone I-M à l'Indonésie-Malaysia, et la zone AUS à l'Australie.

5. TRANSPORT ET DISTRIBUTION DE GAZ TRACES DANS LE SUD-OUEST DE L'OcéAN INDIEN

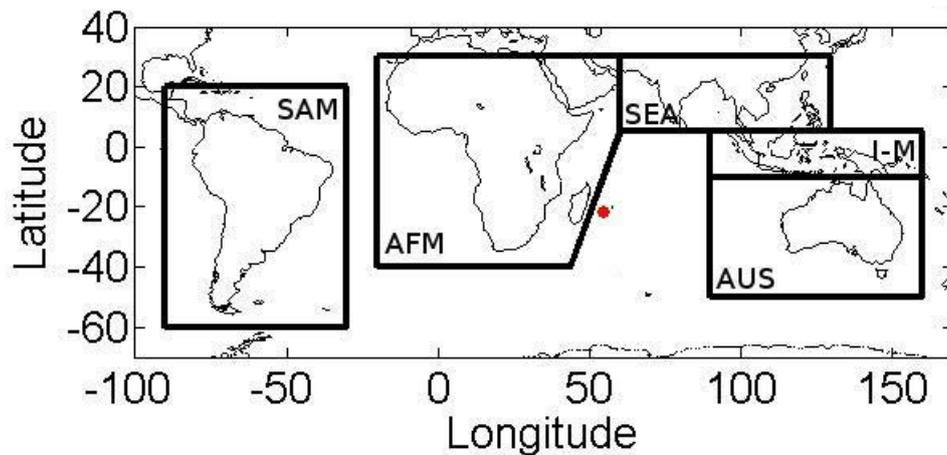


Figure 5.5: Zones définies pour l'étude des contributions à la concentration en CO à la verticale de la Réunion. -

Les rétropanaches ont été calculés en utilisant le modèle de dispersion langrangien FLEX-PART, version 6.2 (Section 2.4). Ces calculs fournissent des informations sur l'origine des masses d'air et donne une estimation du temps passé par les masses d'air près du sol (temps de résidence). La connaissance de ce temps de résidence permet d'identifier la contribution potentielle de chaque zone à la concentration de CO à la verticale de la Réunion. Pour ce calcul, 200 000 particules ont été lâchées dans chacune des 3 couches identifiées dans la Section 2.4 - et correspondant aux colonnes partielles FTIR (0-5 km, 5-11 km et 11-17 km) - au dessus de la Réunion pour chaque jour de mesure de la période d'étude (du 1er Juin au 31 Octobre 2007). Chaque émission a duré 602 s et chaque rétropanache a été calculé 50 jours en arrière. La Figure 5.6 montre la distribution géographique du temps de résidence moyen près de la surface (± 1000 m) en secondes pour les particules arrivant au dessus de la Réunion dans les couches 0-5 km, 5-11 km et 11-17 km. Les temps de résidence sont moyennés par unité de surface et par jour. Pour la couche 0-5, les zones les plus potentiellement contributives sont les zones SAM et AFM durant toute la période. On peut aussi clairement voir la trajectoire des masses d'air venant d'Amérique Latine : elles quittent la zone SAM, gagnent de l'altitude près de l'Antarctique, descendent au dessus du sud de l'Océan Indien d'où elles arrivent finalement à la Réunion par le sud-est. Pour la couche 5-11 km, bien que les contributions des zones SEA et I-M gagnent de l'importance, les zones SAM et AFM restent celles avec les potentiels de contribution le plus élevés pour toute la période. La zone AFM prédomine sur la zone SAM, et ses régions les plus contributives se déplacent vers l'Afrique Centrale. Il n'y a plus d'indication claire d'un passage de l'Amérique Latine au sud-ouest de l'Océan Indien via l'Antarctique et, en effet, les simulations LACYTRAJ (voir section suivante) confirment que la contribution latino-américaine emprunte un chemin direct Ouest-Est. Pour la couche 11-17 km, les contributions potentielles des zones SEA et I-M deviennent clairement prédominantes de Juin à Septembre.

5.2 Analyse de la distribution de CO dans le sud-ouest de l'Océan Indien tropical

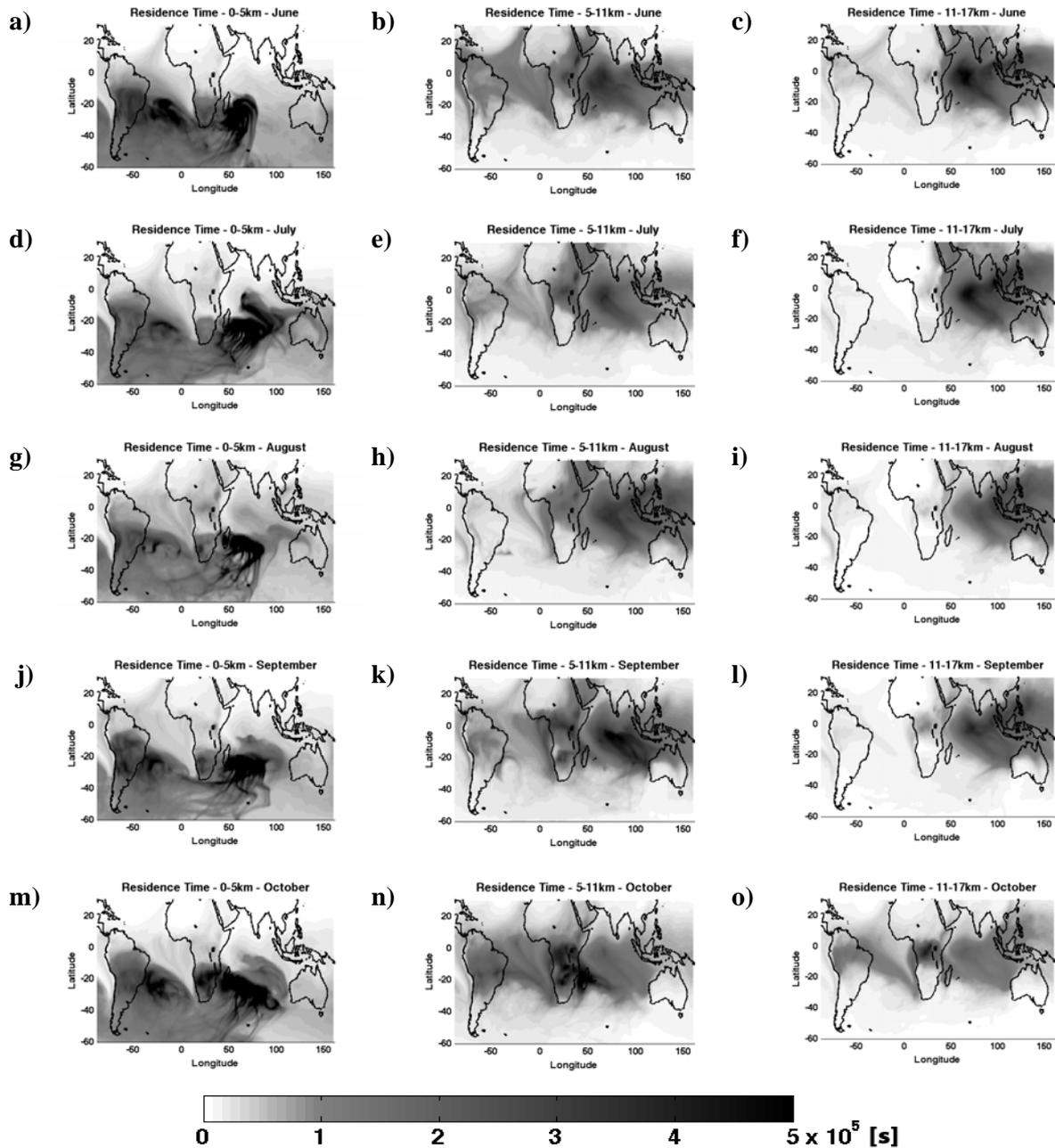


Figure 5.6: Répartition géographique des temps de résidence moyen - Colonne de gauche : temps de résidence moyen des particules arrivant au dessus de la Réunion dans la couche 0-5km pendant les mois de Juin (a), Juillet (d), Août (g), Septembre (j) et Octobre (m) 2007. Colonne du milieu : temps de résidence moyen des particules arrivant au dessus de la Réunion dans la couche 5-11km pendant les mois de Juin (b), Juillet (e), Août (h), Septembre (k) et Octobre (n) 2007. Colonne de droite : temps de résidence moyen des particules arrivant au dessus de la Réunion dans la couche 11-17km pendant les mois de Juin (c), Juillet (f), Août (i), Septembre (l) et Octobre (o) 2007. La colorbar est limitée à 5×10^5 s par souci de clarté.

5. TRANSPORT ET DISTRIBUTION DE GAZ TRACES DANS LE SUD-OUEST DE L'OcéAN INDIEN

La Figure 5.7 montre l'estimation quantitative de ces temps de résidence par zone, pour chaque mois, et pour chacune des trois colonnes partielles. La prédominance des zones SAM et AFM pour les couches 0-5 km et 5-11 km est confirmée pour toute la période. Néanmoins, les zones SEA et I-M présentent des temps de résidence moyens supérieurs à ceux de la zone SAM en Août pour la couche 5-11 km. Pour la couche 11-17 km de Juin à Septembre, les contributions potentielles des zones SEA et I-M sont plus importantes que celle de la zone SAM ainsi que celle de la zone AFM en Août. La contribution potentielle de la zone SEA est également supérieure à celle de la zone AFM en Juillet.

La Figure 5.8 montre l'évolution mensuelle des temps de résidence au dessus des zones SEA et I-M des particules arrivant au dessus de la Réunion dans les couches 0-5 km, 5-11 km et 11-17 km. Le temps de résidence cumulé des trois colonnes partielles augmente jusqu'à son maximum en Juillet-Août, et diminue ensuite jusqu'à son minimum en Octobre. On peut aussi remarquer que les temps de résidence sont les plus élevés pour les particules arrivant dans la couche 11-17 km, sauf pour le mois d'Août, lorsque le temps de résidence pour la couche 5-11 km est similaire à celui de la couche 11-17 km. Cela peut être dû au fait que les particules provenant des zones SEA et I-M restent proches de la surface plus longtemps.

Afin d'approfondir la compréhension des processus prenant place dans la haute troposphère, nous avons utilisé LACYTRAJ (Section 4.4) pour simuler un ensemble de rétrotrajectoires aboutissant au dessus de la Réunion aux niveaux de pression 400 hPa (7 km), 300 hPa (9 km) et 200 hPa (12 km) (Figure 5.9). Chacune des rétrotrajectoires a été calculée sur une durée de 10 jours pendant les mois de Juin, Juillet, Août, Septembre et Octobre 2007. La durée de 10 jours est largement suffisante pour atteindre des zones aussi éloignées de la Réunion que l'Amérique Latine. Chaque rétrotrajectoire a été superposée aux autres avec une transparence fixe : les régions les plus sombres sont donc celles au dessus desquelles passent le plus grand nombre de rétrotrajectoires.

Aux niveaux 300 et 400 hPa, les zones principalement parcourues sont clairement les zones AFM et SAM, sauf en Août pour le niveau 300 hPa lorsque qu'un large faisceau de rétrotrajectoires provient des zones SEA et I-M. Les courants d'ouest venant d'Afrique et d'Amérique Latine sont visibles aux niveaux 400 et 300 hPa, et sont en accord avec les couloirs de transport connus reliant l'Amérique Latine et l'Afrique Australe à l'Australie [Edwards et al., 2006a]. Au niveau 200 hPa, les choses sont bien différentes. On peut remarquer que les zones SEA et I-M sont les secondes principales zones de passage après la zone AFM, ce qui confirme les résultats des Figures 5.6 et 5.7. En Octobre, les passages au dessus de l'Asie deviennent moins importants, alors que ceux au dessus de l'Afrique Australe et de l'Amérique Latine deviennent prépondérants.

Il semble donc qu'il y ait un "couloir" reliant l'Asie du sud-est, l'Indonésie et la Malaisie au sud-ouest de l'Océan Indien au niveau de pression 200 hPa de Juin à Septembre, lequel couloir n'existe pas à des altitudes inférieures. Ce "couloir" suivrait le faisceau principal de rétrotrajectoires visible sur les Figures 5.9c, f et i. Ces observations sont en accord avec le cycle saisonnier de l'anticyclone de mousson asiatique (AMA) (Section 1.3). Pendant l'été boréal,

5.2 Analyse de la distribution de CO dans le sud-ouest de l'Océan Indien tropical

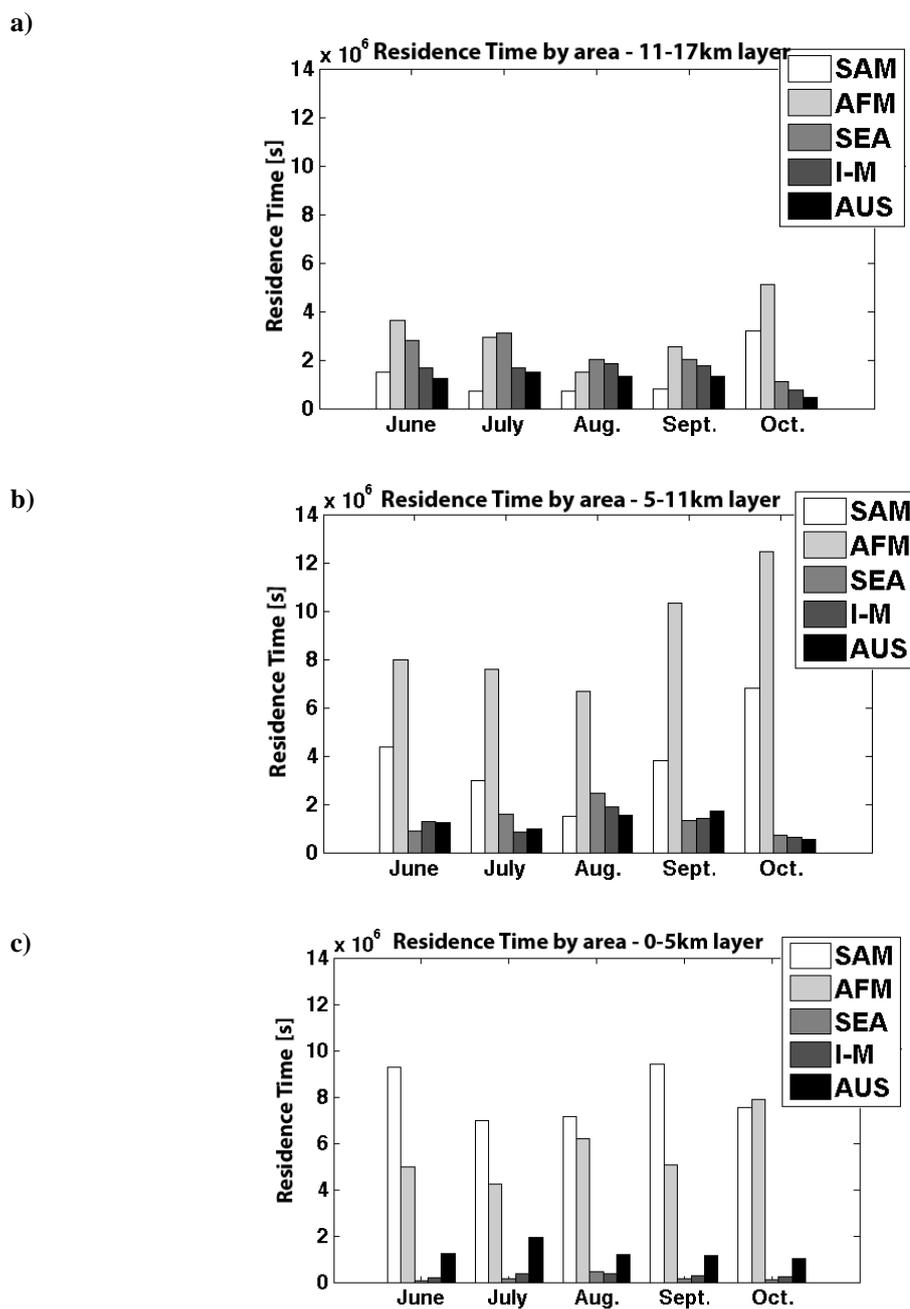


Figure 5.7: Temps de résidence moyens par zone - Temps de résidence moyen par zone pour des particules arrivant au dessus de la Réunion entre Juin et Octobre 2007. Les rétrotrajectoires ont été calculées sur 50 jours en utilisant FLEXPART pour une arrivée dans les couches 11-17 km (a), 5-11 km (b), and 0-5 km (c).

5. TRANSPORT ET DISTRIBUTION DE GAZ TRACES DANS LE SUD-OUEST DE L'OcéAN INDIEN

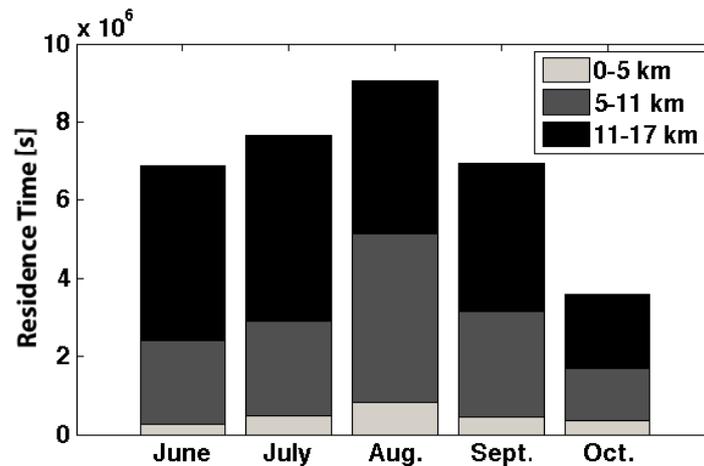


Figure 5.8: Evolution du temps de résidence moyens d'Asie du sud-est et d'Indonésie - Evolution entre Juin et Octobre 2007 du temps de résidence au dessus de zones SEA + I-M pour des particules arrivant au dessus de la Réunion dans les couches 0-5 km, 5-11 km, and 11-17 km. Les rétrotrajectoires ont été calculées sur 50 jours avec FLEXPART.

l'AMA est la circulation prédominante dans la haute troposphère-basse stratosphère (UTLS) indo-asiatique, située entre 10 et 40 ° N et couplée à une convection profonde persistante [Hoskins and Rodwell, 1995]. La forte circulation anticyclonique et les vents du nord-est soufflant au sud-est de l'AMA génèrent des conditions dynamiques favorables à la création de ce "couloir" entre l'Asie du sud-est, l'Indonésie, la Malaisie et la Réunion. Des études ont montré la forte ascendance de masses d'air de couche limite polluées d'Inde, d'Asie du sud-est et du sud de la Chine jusqu'à la haute troposphère asiatique pendant la mousson d'été asiatique [Li et al., 2001; Lelieveld et al., 2002; Li et al., 2005; Fu et al., 2006; Park et al., 2007; Berthet et al., 2007]. En particulier, au sein de l'anticyclone de mousson, la concentration de CO dans l'UTLS peut atteindre 140 ppbv à 200 hPa [Li et al., 2005; Park et al., 2007; Barret et al., 2008]. Ces masses d'air enrichies en CO pourraient ensuite être transportées par la cellule de Hadley (Section 1.3) jusqu'au sud de l'Océan Indien subtropical. Ceci est en accord avec la Figure 5.4 montrant que les concentrations de CO à 250 hPa sont supérieures à celles à 700 hPa entre l'Asie du sud-est et le sud de l'Océan Indien subtropical de Juin à Septembre.

5.2.3.4 Impact des masses d'air enrichies en CO sur la distribution de CO à la verticale de la Réunion

Dans la section précédente, il a été mis en évidence les principales sources potentielles de masses d'air contribuant à la concentration en CO à la Réunion. Il serait maintenant intéressant d'étudier leur impact sur la concentration en CO observée localement. Pour cela, le temps de

5.2 Analyse de la distribution de CO dans le sud-ouest de l'Océan Indien tropical

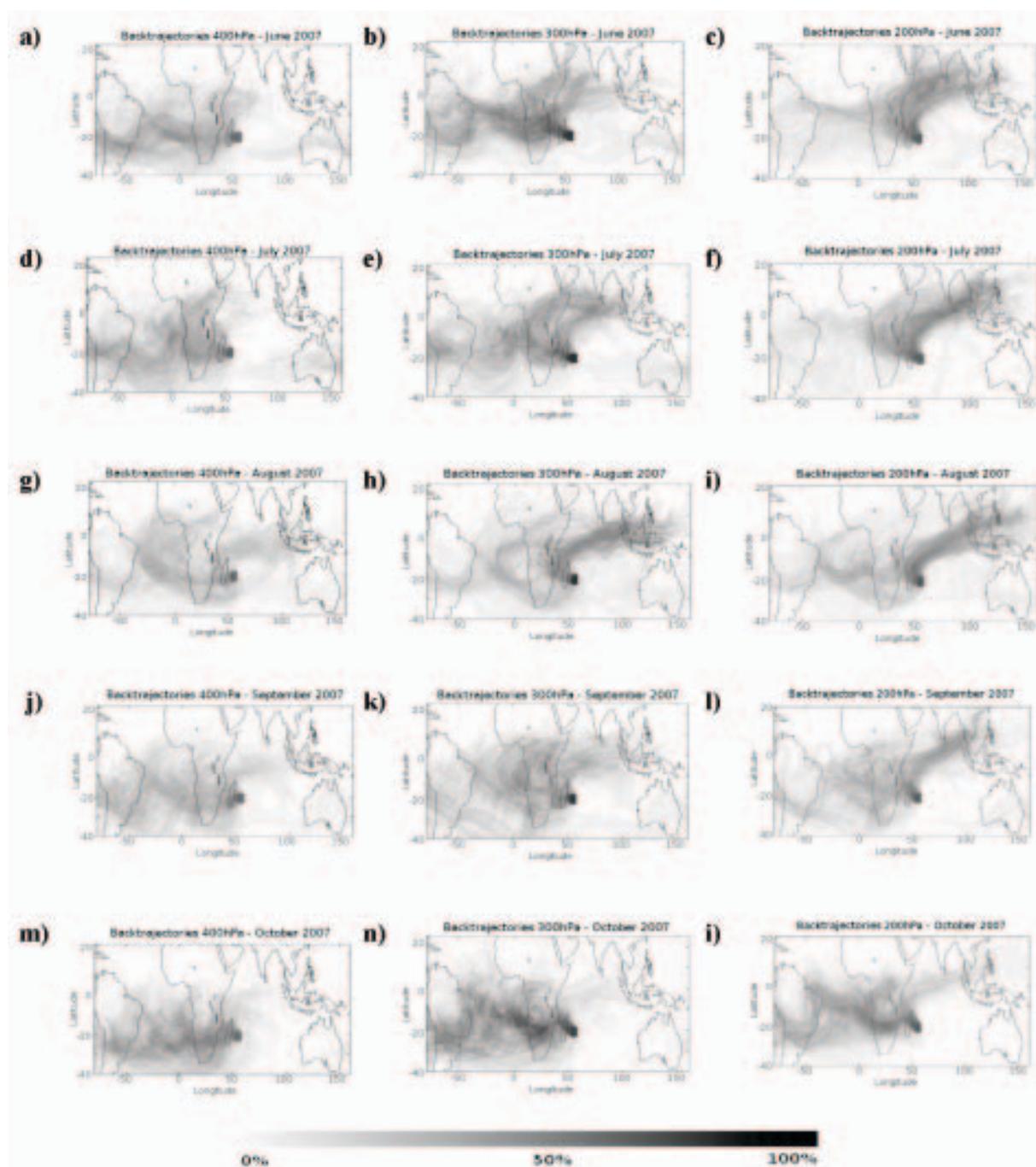


Figure 5.9: Rétrotrajectoires LACYTRAJ - Colonne de gauche : Rétrotrajectoires calculées sur 10 jours par LACYTRAJ arrivant au dessus de la Réunion à 400 hPa pendant les mois de Juin (a), Juillet (d), Août (g), Septembre (j) et Octobre (m) 2007. Colonne du milieu : Rétrotrajectoires calculées sur 10 jours par LACYTRAJ arrivant au dessus de la Réunion à 300 hPa pendant les mois de Juin (b), Juillet (e), Août (h), Septembre (k) et Octobre (n) 2007. Colonne de droite : Rétrotrajectoires calculées sur 10 jours par LACYTRAJ arrivant au dessus de la Réunion à 200 hPa pendant les mois de Juin (c), Juillet (f), Août (i), Septembre (l) et Octobre (o) 2007. L'opacité donne l'occurrence.

5. TRANSPORT ET DISTRIBUTION DE GAZ TRACES DANS LE SUD-OUEST DE L'Océan Indien

résidence des masses d'air (exprimé en $s\ m^3\ kg^{-1}$) calculé et les émissions de CO (exprimé en $kg\ m^{-3}\ s^{-1}$) des base de données GFEDv2.1 pour les émissions des feux de biomasse et EDGARv3.2-FT2000 pour les émissions anthropiques ont été utilisés. Un rapport de mélange massique (kg/kg) est ainsi obtenu au point de réception (à la verticale de la Réunion), qui est ensuite converti en unité de colonne partielle ($molec/cm^2$). Le Tableau 5.2 montre comment les émissions de CO des feux de biomasse ont été distribuées en altitude en accord avec les recommandations de *Dentener et al.* [2006]. Les émissions anthropiques ont été distribuées en altitude de la faon suivante : 20% entre 0-100m, 40% entre 100-500m et 40% entre 500-1000m.

Région	Tropicale	Tempérée	Eurasie	Canada
Gamme de latitude	[30 S ; 30 N]	[60 S ; 30 S] [30 N ; 60 N]	[60 N ; 90 N]	[60 N ; 90 N]
Gamme de longitude	[180 O ; 180 E]	[180 O ; 180 E]	[30 E ; 180 E]	[180 O ; 30 E]
CO émis dans la couche				
0-100 m [%]	20	20	10	10
CO émis dans la couche				
100-500 m [%]	40	20	10	10
CO émis dans la couche				
500-1000 m [%]	40	20	20	10
CO émis dans la couche				
1000-2000 m [%]		40	20	10
CO émis dans la couche				
2000-3000 m [%]			40	20
CO émis dans la couche				
3000-6000 m [%]				40

Table 5.2: Distribution verticale du CO émis par les feux de biomasse par zone géographique.

La Figure 5.10 montre la quantité de CO émise par zone de Juin à Octobre 2007 ainsi que la quantité moyenne de CO émise au cours des années 2001 à 2006 selon les données GFEDv2.1. Les émissions anthropiques de Juin à Octobre sont également présentées (données EDGARv3.2-FT2000). Alors que les émissions de CO des feux de biomasse des zones AFM, SEA et AUS sont à peu près égales à leurs émissions moyennes au cours des six années précédentes, l'émission de la zone SAM pour l'année 2007 est particulièrement élevée, et celle de la zone I-M particulièrement faible. Cette importante émission de la zone SAM peut être expliquée par l'exceptionnel nombre de feux détectés en Amérique Latine de Juillet à Septembre 2007 [Butler, 2007 ; Bevan et al., 2009]. Les émissions totales des zones SAM et AFM sont les plus importantes, suivies par les émissions des zones SEA (principalement des émissions anthropiques), I-M et AUS.

La Figure 5.11 montre la corrélation existante entre la quantité totale de CO émise et transportée jusqu'à la Réunion simulée par FLEXPART (avec les données d'émission GFEDv2.1

5.2 Analyse de la distribution de CO dans le sud-ouest de l'Océan Indien tropical

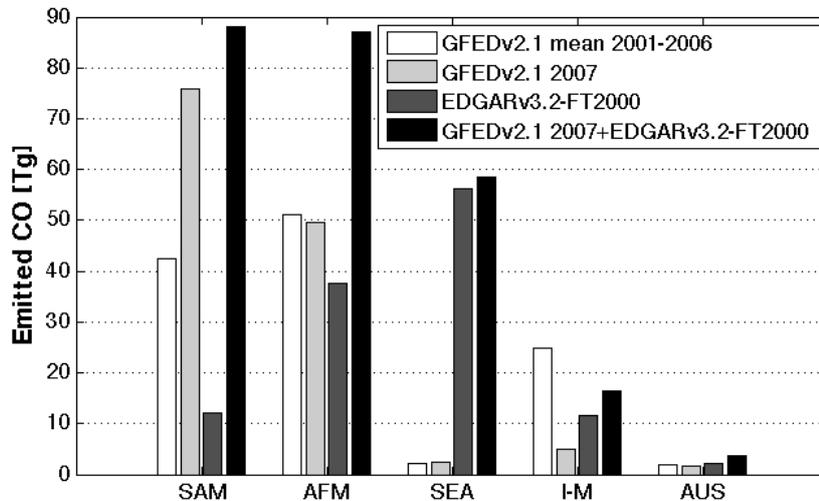


Figure 5.10: Emissions moyennes de CO - Emissions moyennes de CO issu des feux de biomasse de Juin à Octobre au cours de années 2001 à 2006 (données (GFEDv2.1), émissions de CO issu des feux de biomasse de Juin à Octobre 2007 (données (GFEDv2.1), et émissions de CO d'origine anthropique de Juin à Octobre 2000 (données EDGARv3.2-FT2000 data). Les émissions sont données par zone.

et EDGARv3.2-FT2000) et la quantité de CO mesurée par FTIR dans la colonne partielle 0-17 km (correspondant à la troposphère). Le coefficient de corrélation est de 0.94 (64 points), ce qui montre que les variations de CO simulées via la méthode décrite ci-dessus sont en accord avec les observations FTIR au sol. En réalisant la même étude pour les trois colonnes partielles 0-5 km, 5-11 km et 11-17 km, les coefficients de corrélation sont respectivement de 0.92, 0.87 et 0.82. L'augmentation de CO (calculée comme étant la différence entre les concentrations moyennes de CO durant les dix derniers jours de la campagne et du début de la campagne à mi-juillet) simulée par FLEXPART vaut $8.60 \cdot 10^{17}$ molec/cm², et celle observée par FTIR vaut $9.96 \cdot 10^{17}$ molec/cm². Cette différence entre les simulations FLEXPART et les observations FTIR peut être due au fait que les simulations n'incluent pas les réactions chimiques. En particulier, la production de CO par l'oxydation du méthane et d'autres hydrocarbonés n'est pas considérée.

La Figure 5.12 montre les concentrations cumulées de CO anthropique et des feux de biomasse émises et transportées à la Réunion dans les couches 0-5km, 5-11km et 11-17 km de Juin à Octobre 2007 simulées par FLEXPART. Au total, la couche 5-11 km est celle présentant la plus importante augmentation de CO, ce qui est en accord avec les observations FTIR (Section 5.2.2).

La Figure 5.13 montre la contribution relative de chacune des zones définies sur la Figure 5.5 à la concentration en CO à la Réunion pour chacune des trois colonnes partielles. Pour la

5. TRANSPORT ET DISTRIBUTION DE GAZ TRACES DANS LE SUD-OUEST DE L'OcéAN INDIEN

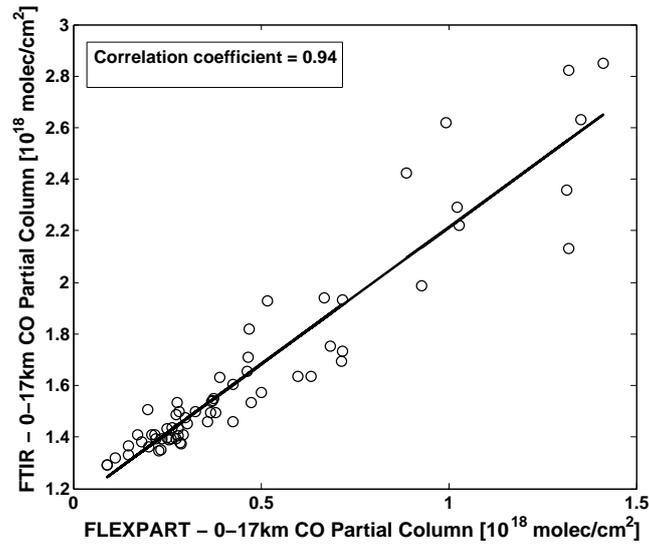


Figure 5.11: Corrélation FTIR/FLEXPART - Corrélation entre le CO issu des feux de biomasse (données GFEDv2) et d'origine anthropique (données EDGAR v3.2-FT2000) émis et transporté à la Réunion par simulation FLEXPART versus les concentrations de CO observées par FTIR dans la colonne partielle 0-17km au cours de la période Juin-Octobre 2007. Le coefficient de corrélation est de 0.94.

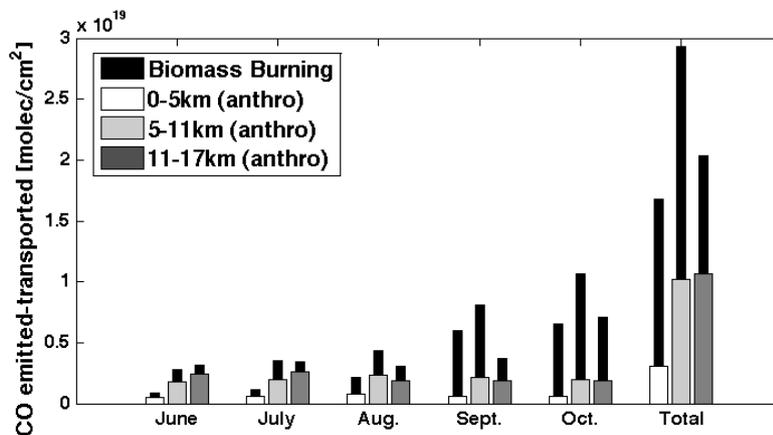


Figure 5.12: Concentrations cumulées de CO déduites des simulations FLEXPART et des bases de données d'émission - Concentrations cumulées de CO issu des feux de biomasse (barres noires) et d'origine anthropique (barres blanches et grises) émis et transportés à la Réunion dans les couches 0-5km, 5-11km, et 11-17 km pendant la période Juin-Octobre 2007 déduites des simulations FLEXPART.

5.2 Analyse de la distribution de CO dans le sud-ouest de l’Océan Indien tropical

couche 0-5 km, la zone AFM est celle contribuant le plus à la concentration de CO de Juin à Août, avant d’être supplantée par la zone SAM en Septembre Octobre, lorsque la contribution de celle-ci augmente brutalement à cause de l’exceptionnel nombre de feux observés en Amérique Latine en 2007 (Figure 5.10). Les trois autres zones (SEA, I-M et AUS) ont seulement une faible contribution dans cette basse couche troposphérique tout au long de la période d’étude. Dans la couche 5-11 km, la zone AFM est celle contribuant le plus durant toute la période, sauf en Octobre lorsque la contribution de la zone SAM devient supérieure. Les zones SEA et I-M contribuent de manière plus importante que pour la couche 0-5 km, ceci particulièrement en Août lorsque leurs contributions deviennent plus importantes que celle de la zone SAM. Ces résultats confirment la prédominance des contributions africaines et latino-américaines à la concentration en CO à la Réunion entre 0 et 11 km, prédominance due aux vents d’Ouest (Section 5.2.2) et à l’intensité du brûlage de biomasse (Figure 5.10).

La situation est encore une fois différente dans la haute troposphère (couche 11-17 km) : les zones AFM et SAM sont celles contribuant le plus uniquement pour le mois d’Octobre ; de Juin à Septembre, les zones SEA et I-M sont les deux principales contributrices ; en Octobre, les contributions des zones SAM et AFM augmentent alors que celles des zones SEA et I-M diminuent. La contribution de l’Asie du sud-est, d’Indonésie et de Malaisie à la concentration en CO à la Réunion est donc beaucoup plus prononcée dans la couche 11-17 km que sous 11 km, allant même jusqu’à surpasser la contribution africaine de Juin à Septembre, alors que l’émission totale de CO est plus élevée pour l’Afrique que pour les régions asiatique et océanique (Figure 5.10). Cela confirme l’analyse dynamique (Section 5.2.3.4) qui montre un couloir dans la haute troposphère liant l’Asie du sud-est, l’Indonésie, la Malaisie au sud de l’Océan Indien subtropical de Juin à Septembre. De plus, ce transport à grande échelle de CO dans la haute troposphère est confirmé par les valeurs de ratios mensuels moyens de concentrations de CO mesurées par MOPITT entre les niveaux 250 hPa et 700 hPa (Figure 5.4) : ces valeurs sont supérieures à 1 le long de ce couloir en Juin, Juillet et Août. Cependant, le ratio 250/700 au dessus de la Réunion reste inférieur à 1 (0.9) pendant cette période, témoignant d’une plus grande concentration de CO dans la basse que dans la haute troposphère. Cela est dû au mélange des masses d’air enrichies en CO provenant d’Afrique, de Madagascar et d’Amérique Latine et voyageant dans la basse troposphère.

Alors que l’Asie du sud-est et l’Indonésie-Malaisie sont des zones contribuant significativement à la concentration de CO à la verticale de la Réunion, l’Australie est celle contribuant le moins pour toute la saison des feux (de l’hémisphère sud) et pour toute la colonne troposphérique.

On peut remarquer sur la Figure 5.13 l’importance du transport de CO venant d’Amérique Latine, particulièrement en Octobre lorsque sa contribution dépasse celle de l’Afrique dans les trois colonnes partielles. Cela est à mettre en relation avec l’exceptionnelle émission de CO provenant des feux de biomasse en Amérique Latine en 2007 (Figure 5.10). Il va sans dire qu’il pourrait en être autrement à d’autres années.

Il est donc possible de déduire de cette étude que les émissions australiennes contribuent peu

5. TRANSPORT ET DISTRIBUTION DE GAZ TRACES DANS LE SUD-OUEST DE L'Océan INDIEN

à la concentration en CO observée à la Réunion. Les principaux contributeurs aux variations de concentration en CO sont l'Afrique Australe et l'Amérique Latine pour l'ensemble de la colonne troposphérique, ainsi que l'Asie du sud-est, l'Indonésie et la Malaisie dans la couche 11-17 km de Juin à Septembre. Etant donné la faible émission de CO dues aux feux de biomasse en Indonésie-Malaisie en 2007 comparée à l'émission moyenne au cours des six années précédentes (Figure 5.10), la contribution de cette zone dans la haute troposphère pourrait être plus importante lors d'autres années.

5.2.4 Conclusion

Les objectifs de cette étude étaient de documenter l'évolution temporelle de la distribution verticale de la concentration de CO à la verticale de la Réunion, et de déterminer les sources qui gouvernent cette évolution. Un intérêt tout particulier a été porté sur l'impact des masses d'air enrichies en CO venant d'Asie du sud-est, d'Indonésie et de Malaisie sur la distribution du CO dans le sud de l'Océan Indien subtropical.

Les données issues des campagnes FTIR réalisées en 2004, 2007 et 2009-2011 indiquent une légère augmentation de la colonne totale de CO entre l'été et l'automne australes, ainsi qu'un doublement de la colonne totale de CO au cours de la saison des feux de l'hémisphère sud. La moyenne troposphère (5-11 km) apparaît comme étant la couche la plus affectée par cette augmentation de la concentration de CO.

L'influence de différentes zones sources (Afrique Australe, Amérique Latine, Asie du sud-est, Indonésie-Malaisie et Australie) ont été analysées en utilisant des rétrotrajectoires LACYTRAJ et des simulations FLEXPART combinées aux bases de données d'émissions de CO GFEDv2.1 (pour les émissions dues aux feux de biomasse) et EDGARv3.2-FT2000 (pour les émissions anthropiques). Les principales sources de CO pour la Réunion au printemps austral sont l'Afrique Australe et l'Amérique Latine. L'Asie du sud-est, l'Indonésie et la Malaisie sont des sources potentielles de CO additionnelles dans la haute troposphère, particulièrement en Juillet et Août, lorsque les conditions dynamiques en haute troposphère sont favorables à la création d'un couloir liant l'Asie du sud-est au sud-ouest de l'Océan Indien. Ainsi, de Juin à Septembre, dans la haute troposphère (11-17 km), l'Asie du sud-est, l'Indonésie et la Malaisie sont les principales zones de contribution aux variations de CO ayant lieu dans le sud de l'Océan Indien subtropical.

Cette étude a permis de mettre en évidence une nouvelle voie de transport à grande échelle affectant significativement le sud de l'Océan Indien subtropical, et a fait l'objet d'une publication présentée en Annexe A [*Duflot et al.*, 2010].

5.2 Analyse de la distribution de CO dans le sud-ouest de l'Océan Indien tropical

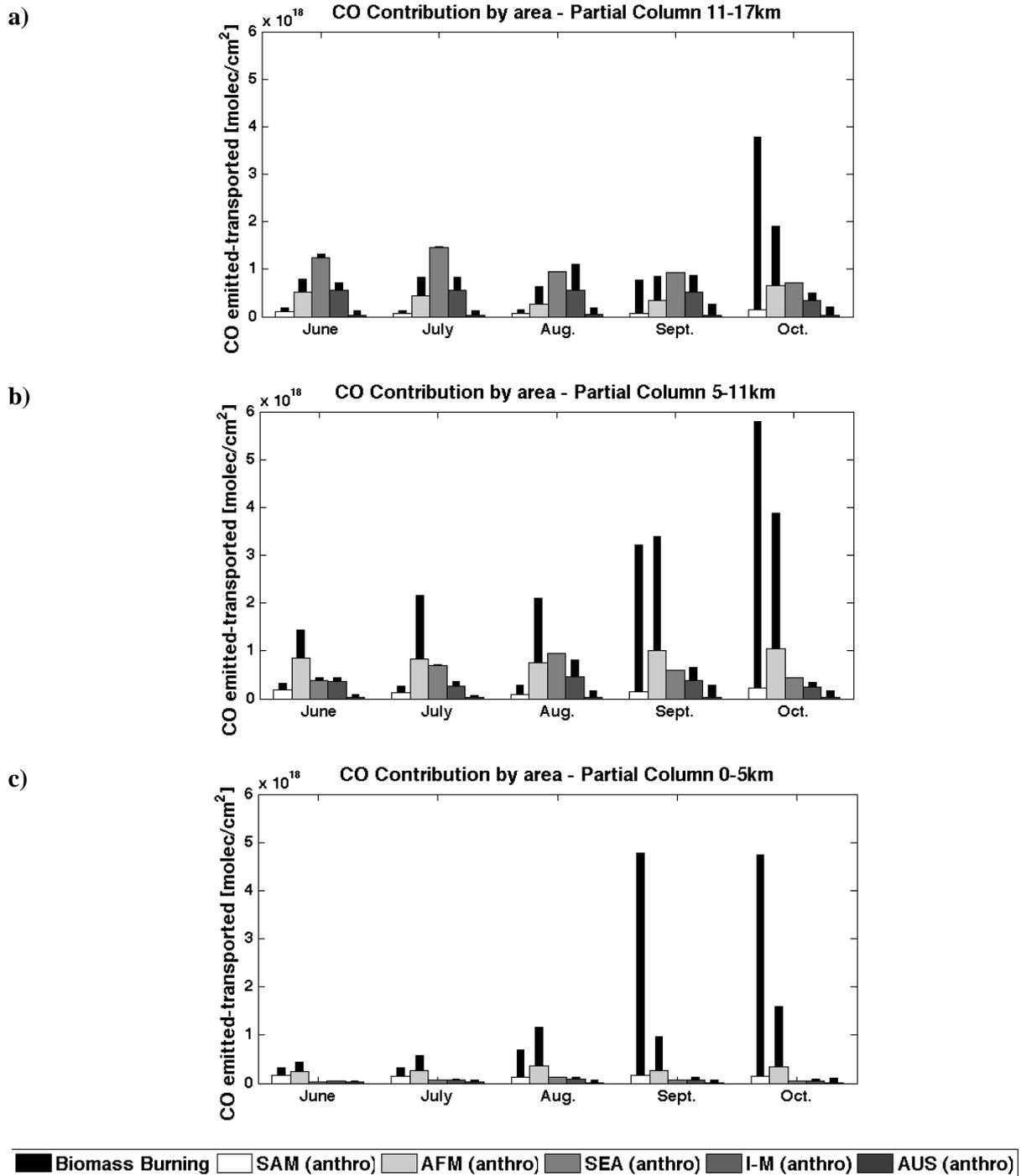


Figure 5.13: Concentrations cumulées de CO par zone déduites des simulations FLEXPART et des bases de données d'émission - Concentrations cumulées de CO issu des feux de biomasse (barres noires) et d'origine anthropique (barres blanches et grises) émises et transportées à la Réunion dans les couches (a) 11-17 km, (b) 5-11 km, (c) 0-5 km pour les mois de Juin, Juillet, Août, Septembre et Octobre 2007 déduites des simulations FLEXPART. Les concentrations sont données par zone.

5.3 Ozone troposphérique aux Kerguelen

5.3.1 Introduction

Les zones d'émission et les courants atmosphériques affectant la charge en CO dans le sud de l'Océan Indien subtropical ont été étudiés à la section précédente, avec un intérêt particulier pour la Réunion. Cette section se propose d'étudier la concentration troposphérique d'ozone aux Kerguelen (49° S; 70° E) et les zones d'émission contribuant à la concentration d'ozone observée. L'archipel des Kerguelen présente l'intérêt d'être situé sur le lieu de passage privilégié des panaches de polluants venant d'Amérique Latine et d'Afrique Australe et allant vers l'Australie (Sections 1.3 et 5.2.3.4) [Edwards *et al.*, 2006; Duflot *et al.*, 2010]. C'est la raison pour laquelle une campagne de lancer de ballon-sondes a été mise en place d'Avril 2008 à Février 2009 aux îles Kerguelen dans le cadre de l'Année Polaire Internationale (2008-2009) : il s'agit de la campagne ROCK (Radiosondages Ozone Complémentaires aux Kerguelen), initiée par le LACy (plus précisément par Thierry Portafaix et Françoise Posny), financée par l'IPEV (Institut Paul Emile Victor) et assurée sur place par Météo France.

L'exploitation de la campagne ROCK a permis l'étude de l'évolution temporelle de l'ozone troposphérique aux Kerguelen, de documenter un cas de STE et d'identifier la provenance des précurseurs contribuant à la concentration d'ozone mesurée, résultats inclus dans l'article *Baray et al.* [2011] (Annexe C). Cette section est un extrait des résultats pouvant être tirés de cette série de mesures : on se focalise ici sur les résultats en lien avec les émissions de polluants se produisant dans l'hémisphère sud. L'instrumentation et la campagne ROCK sont d'abord décrites (Section 5.3.2), puis les observations de concentration d'ozone sont présentées (Section 5.3.3), et enfin l'origine du maximum d'ozone observé en hiver austral est étudiée (Section 5.3.4).

5.3.2 Instrumentation

Les ballon-sondes utilisés dans le cadre du projet ROCK aux Kerguelen sont similaires à ceux utilisés à la Réunion. Ils comportent une cellule électrochimique de mesure de concentration permettant d'obtenir des profils de pression partielle d'ozone, couplée à une radiosonde météorologique M2K2 Modem mesurant la température, l'humidité relative, la position GPS et le vent horizontal. Ce type de sonde météorologique est utilisé avec succès à la Réunion depuis Août 2007. Des lâchés simultanés de sondes Vaisala RS80 et Modem M2K2 n'ont révélé aucun biais entre les deux systèmes, et une meilleure estimation de l'humidité relative dans le cas de la sonde Modem. Situées sous les quarantièmes rugissants et proches des cinquantièmes hurlants, les Kerguelen endurent de forts vents d'ouest et de rudes conditions climatiques pratiquement tout au long de l'année. Néanmoins, dix-sept lâchés de ballons ont été réalisés avec succès pendant la campagne ROCK : douze aux automne et hiver australes d'Avril à Septembre 2008 (04/16; 06/23; 06/29; 07/09; 07/22; 07/30; 08/23; 08/06; 08/11; 09/06; 09/19; et 09/27), et cinq pendant l'été austral de Décembre 2008 à Février 2009 (12/28; 01/18; 01/27; 02/16;

02/28).

5.3.3 Observations

La Figure 5.14 montrent les profils de vent horizontal, d'humidité relative et de rapport de mélange d'ozone obtenus lors de la campagne ROCK. Les données sont présentées pour l'hiver austral (Avril à Septembre) et l'été austral (Décembre à Février). Les vitesses de vent au sol sont élevées et très variables en hiver, et plus faible en été. Elles augmentent avec l'altitude, atteignant 70 m/s en moyenne à 10 km en hiver et en été. L'humidité relative décroît avec l'altitude, mais son profil moyen présente des valeurs importantes à la fois en hiver et en été jusqu'à 8 km d'altitude. En hiver, le rapport de mélange d'ozone varie entre 30 et 50 ppbv ; en été, il oscille entre 20 et 40 ppbv.

Sans prétendre à l'établissement d'une climatologie, ces profils obtenus par radiosondage permettent d'établir une série temporelle annuelle de l'ozone troposphérique aux Kerguelen (Figure 5.15). L'augmentation de la concentration d'ozone en hiver austral (environ supérieur de 20% à la concentration en été) visible sur la Figure 5.14 est également visible ici et se produit de Juin à Septembre. *Clain et al.* [2009] ont montré le cycle de l'ozone pour différents sites de l'hémisphère sud (Irene, Afrique du Sud, 30 ° S ; et la Réunion, 21 ° S), avec un maximum au printemps correspondant à la saison des feux, et en accord avec le cycle présenté sur la Figure 5.14. Néanmoins, des mesures additionnelles aux Kerguelen sont nécessaires pour confirmer l'annualité du cycle montré ici. En revanche, on peut s'intéresser à l'origine de ce maximum d'ozone en hiver austral au cours de la période d'étude ; c'est ce que se propose d'étudier la section suivante.

5.3.4 Origine du maximum d'ozone en hiver austral

La Figure 5.15 montre que le niveau d'ozone est plus élevé d'environ 20% en hiver austral (30-50 ppbv) qu'en été austral (20-40 ppbv). Deux facteurs pourraient expliquer ce fait : un plus grand nombre de STE en hiver qu'en été, et la production photochimique d'ozone à partir de précurseurs émis par le feux de biomasse [*Stevenson et al.*, 2006] et transporté vers les Kerguelen. L'examen de l'hypothèse d'une plus grande occurrence de STE en hiver nécessiterait un travail qui n'entre pas dans le cadre de cette thèse et pourrait faire l'objet de recherches ultérieures. En revanche, un ensemble de simulations utilisant le modèle GIRAFE (Section 4.3) a été réalisé afin de vérifier l'hypothèse de production photochimique d'ozone. Des simulations GIRAFE de sept jours ont été réalisées pour chaque jour du 1er Juin au 30 Septembre 2008 (hiver austral) et du 1er Décembre 2008 au 28 Février 2009 (été austral). Les particules ont été injectées jusqu'à une altitude de 2 km ads pour chaque pixel de feu détecté par MODIS (Section 4.3.1). La Figure 5.16 montre la distribution géographique - intégrée sur toute la colonne atmosphérique et moyennée sur des pixels de 1 ° x 1 ° - des particules émises résultante de ces séries de simulations. On peut clairement remarquer que l'activité de feux de biomasse est plus importante en hiver austral

5. TRANSPORT ET DISTRIBUTION DE GAZ TRACES DANS LE SUD-OUEST DE L'OcéAN INDIEN

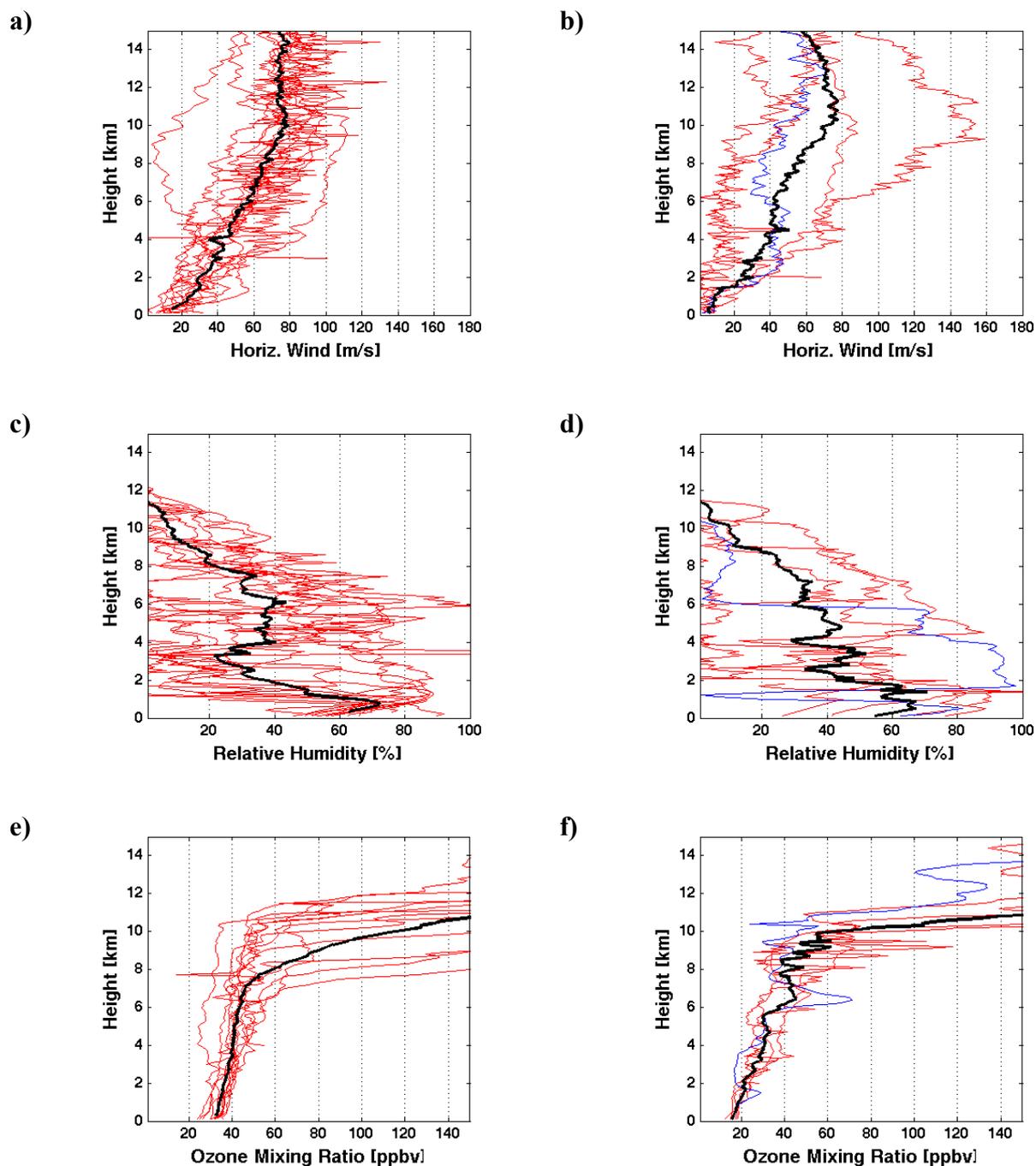


Figure 5.14: Profils de vent horizontal, d'humidité relative et de rapport de mélange d'ozone obtenus lors de la campagne ROCK - Haut : profils de vent horizontal; Milieu : Humidité relative; Bas : Rapport de mélange d'ozone; Gauche : en hiver austral, d'Avril à Septembre 2008; Droite : en été austral, de Décembre 2008 à Février 2009. Les données ont été obtenues par radiosondage aux Kerguelen. Les profils moyens sont montrés en rouge, et les profils obtenus le 28 Février 2009 en bleu.

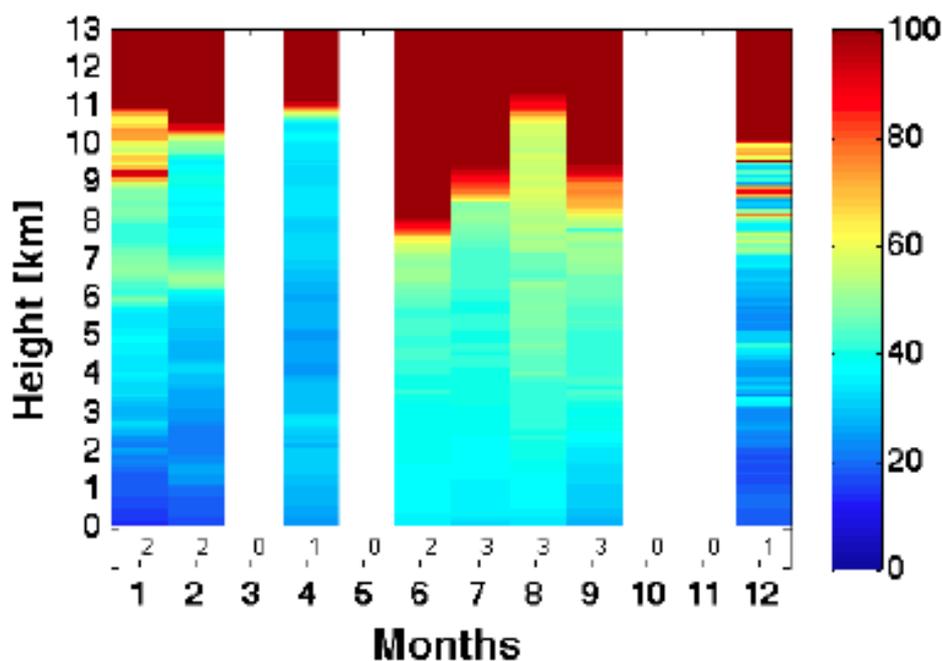


Figure 5.15: Distribution mensuelle du rapport de mélange d'ozone (0-100 ppbv) - Le nombre de profils obtenus pour chaque mois est indiqué par le chiffre au dessus de l'abscisse.

qu'en été austral, et que les panaches émis par ces feux se produisant en Amérique Latine et en Afrique Australe et contenant des précurseurs d'ozone sont transportés vers les Kerguelen pendant les deux saisons. Ceci est en accord avec les études précédentes montrant que les Kerguelen sont situées sur le chemin de transport allant de l'Amérique Latine et l'Afrique Australe vers l'Australie [Edwards *et al.*, 2006 ; Duflot *et al.*, 2010] (Sections 5.2.3 et 7.1). Les panaches simulés pendant les deux saisons montrent que les particules sont principalement situées dans la couche 4-8 km. Afin de déterminer les contributions relatives des feux se produisant en Amérique Latine et en Afrique Australe à la concentration d'ozone en hiver aux Kerguelen, la série hivernale de simulations GIRAFE (du 1er Juin au 30 Septembre 2008) a été réalisée en considérant séparément les deux zones d'émissions et en comptabilisant les particules passant au dessus des Kerguelen pendant la période considérée. Les contributions relatives résultantes sont : 57% en provenance d'Amérique Latine et 43% en provenance d'Afrique Australe.

Ces séries de simulations confirment donc la deuxième hypothèse : la concentration d'ozone plus élevée en hiver au dessus des Kerguelen est au moins partiellement due au plus grand nombre de feux de biomasse se produisant en Amérique Latine et en Afrique Australe pendant l'hiver austral. Des études complémentaires sont nécessaires pour quantifier le rôle des feux de biomasse et des STE sur la saisonnalité de ce niveau d'ozone.

5. TRANSPORT ET DISTRIBUTION DE GAZ TRACES DANS LE SUD-OUEST DE L'OcéAN INDIEN

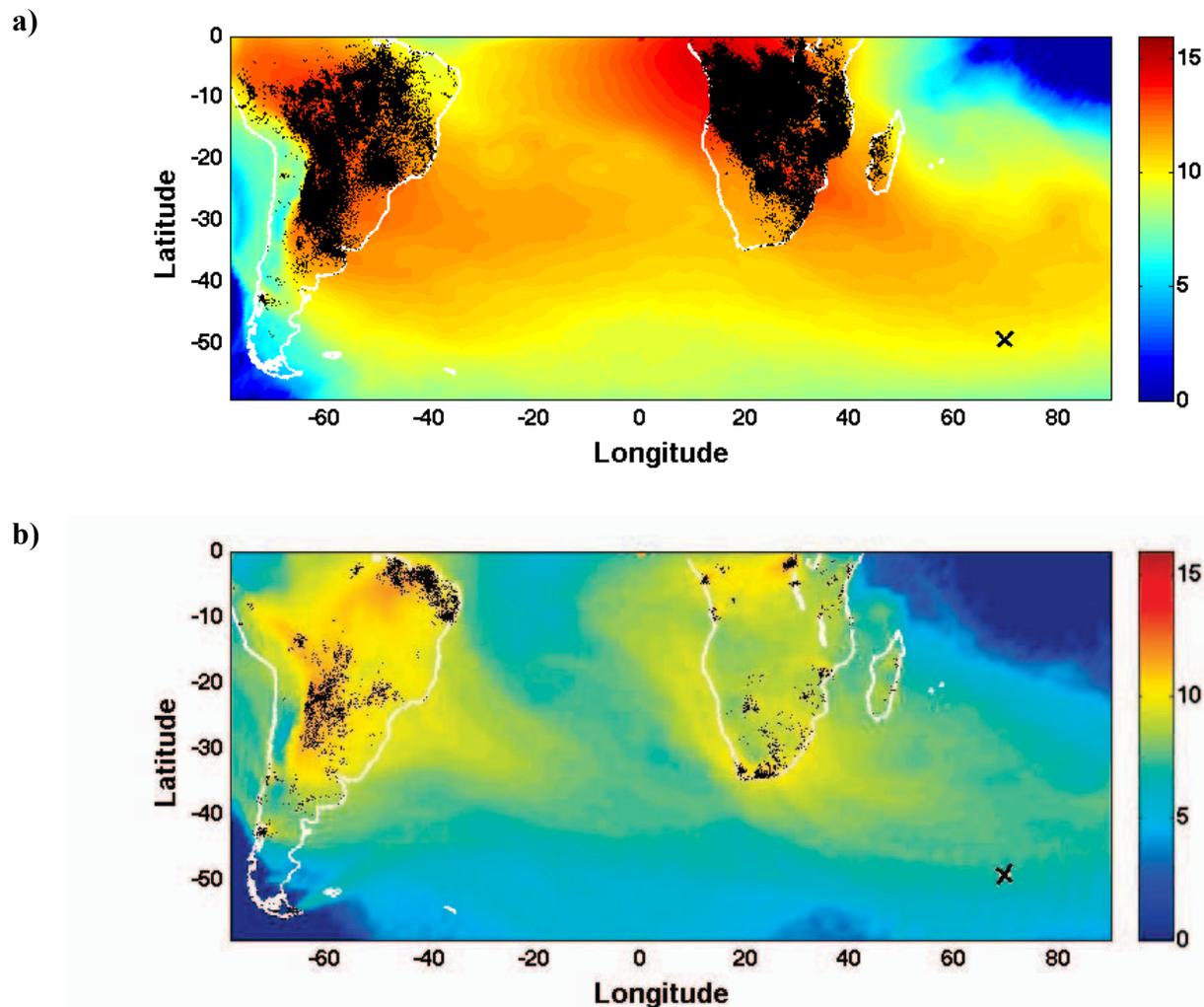


Figure 5.16: Distribution géographique moyenne des particules résultante des simulations GIRAFE - Distribution géographique moyenne des particules par pixel de $1^\circ \times 1^\circ$ [unité arbitraire] résultante de simulations GIRAFE de 7 jours réalisées pour chaque jour du (a) 1er Juin au 30 Septembre 2008 (hiver austral) et (b) du 1er Décembre 2008 au 28 Février 2009 (été austral). Les points noirs représentent les feux détectés par MODIS au cours de la période considérée. Les croix noires localisent les Kerguelen.

5.3.5 Conclusion

Les principales caractéristiques de la distribution verticale de l’ozone troposphérique, du vent et de l’humidité relative aux Kerguelen ont été présentées ici. L’ozone troposphérique présente une large variabilité saisonnière, avec un niveau de fond plus élevé en hiver qu’en été. Le modèle GIRAFE montre que ce niveau de fond supérieur en hiver provient de la saison des feux de l’hémisphère sud : les feux de biomasse se produisant en Amérique Latine et en Afrique Australe émettent des précurseurs d’ozone (Section 1.4.1.2) transportés vers les Kerguelen.

5.4 Conclusions du chapitre 5

Cette section a présenté les résultats de l’étude de l’évolution temporelle de la distribution verticale de la concentration de CO à la verticale de la Réunion pendant 3 campagnes FTIR réalisées en 2004, 2007 et 2009-2011, ainsi que sa répartition verticale dans l’Océan Indien pendant la saison des feux 2007. La concentration de CO à la Réunion est doublée lors de la saison des feux se produisant dans l’hémisphère sud. La moyenne troposphère (5-11 km) apparaît comme étant la couche la plus affectée par cette augmentation de la concentration de CO. Afin de déterminer les zones d’émissions contribuant à cette augmentation, et de déterminer leur contribution relative, une étude dynamique des courants de transport de masses d’air a été réalisée pour la saison des feux 2007 en utilisant les modèles LACYTRAJ et FLEXPART, ainsi que les bases de données GFED et EDGAR. Il a ainsi été mis en évidence la prépondérance des contributions africaine et latino-américaine sur la concentration en CO dans les basse et moyenne troposphère (0-11 km), et la prépondérance des contributions d’Asie du sud-est et d’Indonésie à la concentration en CO dans la haute troposphère grâce à l’existence d’un couloir de transport liant ces deux régions au sud-ouest de l’Océan Indien.

De plus, une étude de la distribution verticale d’ozone aux Kerguelen en 2008-2009 a été menée, et met en évidence le rôle des feux de biomasse se produisant en Amérique Latine et en Afrique Australe sur le niveau de fond d’ozone observé, qui est plus élevé en hiver qu’en été.

5. TRANSPORT ET DISTRIBUTION DE GAZ TRACES DANS LE SUD-OUEST DE L'OCÉAN INDIEN

6

Distribution et transport des aérosols dans le sud-ouest de l’Océan Indien

6.1 Introduction

Des phénomènes de transport à grande échelle amènent depuis des zones soumises à une intense activité de feu de biomasse des masses d’air chargées à la fois en gaz traces et en particules de combustion dans la troposphère de l’Océan Indien (Chapitre 1). La section précédente s’est focalisée sur l’étude de la distribution et du transport des gaz traces CO et O₃ à la Réunion et dans le sud-ouest de l’Océan Indien. La présente section se propose de présenter les résultats de l’étude de la distribution et du transport des aérosols dans cette même zone.

Une partie de ces résultats est basée sur des séries de mesures spectrales photométriques réalisées de 2007 à 2009 à la Réunion, dans les îles australes environnantes (Crozet et île d’Amsterdam), en Amérique Latine, Afrique Australe et Asie du sud-est (Section 6.2). Une climatologie des épaisseurs optiques mesurées dans ces zones est présentée avec un intérêt tout particulier pour la Réunion. La distribution en taille des aérosols est également étudiée grâce à une analyse du coefficient d’Ångström et de la distribution obtenue à partir des mesures spectrales, avec pour objectif principal de déterminer quels types d’aérosols sont a priori détectables à la Réunion.

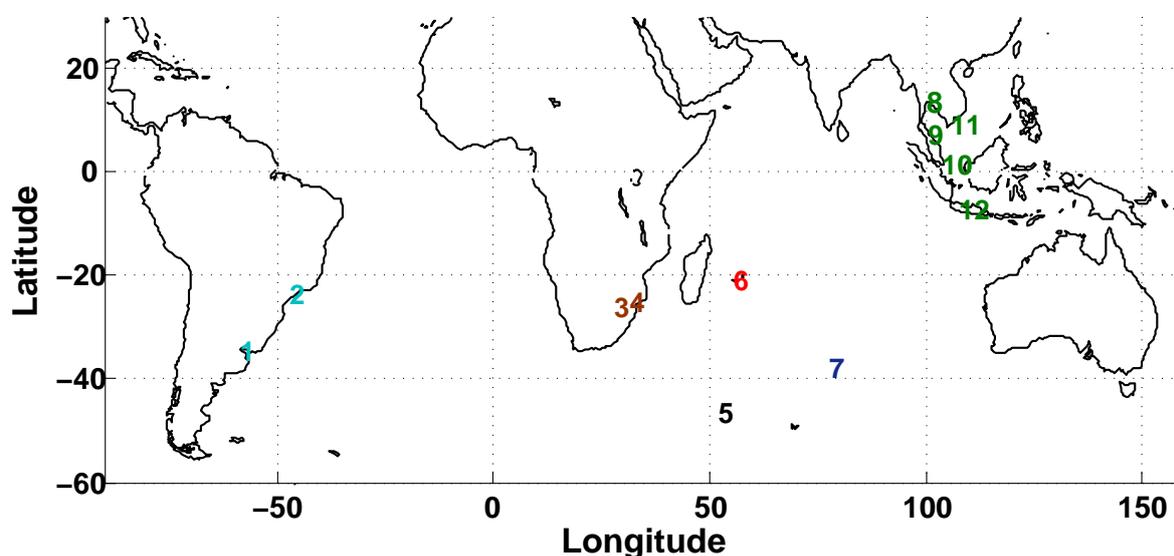
La Section 6.3 présente les résultats obtenus à partir des campagnes avec lidar et photomètre embarqués sur le navire de recherche Marion Dufresne dans le sud-ouest de l’Océan Indien. Les deux campagnes de 2009 décrites Section 3.4 sont ici exploitées afin de déterminer la distribution spatiale des aérosols rencontrés, leur type, leurs propriétés optiques et leur provenance.

6. DISTRIBUTION ET TRANSPORT DES AÉROSOLS DANS LE SUD-OUEST DE L'OCÉAN INDIEN

6.2 Les aérosols à la Réunion

6.2.1 Introduction

Le réseau AERONET de photomètres CIMEL (Section 3.2) répartis sur l'ensemble du globe donne accès à des séries de données pouvant permettre l'établissement de climatologies des caractéristiques optiques des aérosols (Section 3.2). Le photomètre CIMEL installé à la Réunion a enregistré une série de données quasiment en continue de Mai 2007 à Juin 2009. Cette section se propose d'exploiter cette série de données de 26 mois afin d'identifier quels sont les types d'aérosols a priori détectables à la Réunion par l'étude des caractéristiques de leur épaisseur optique, de leur coefficient d'Ångström et de leur distribution en taille.



Numéro	Site	Longitude	Latitude	Nb Mes.
1	CEILAP-BA	-58.5	-34.6	40
2	Sao Paulo	-47	-23.5	269
3	Wits University	28	-26	156
4	Skukuza	31.6	-25	384
5	Crozet	52	-46.4	10
6	La Réunion	55.5	-21	730
7	île d'Amsterdam	77.6	-37.8	32
8	Silpakorn University	100	13.8	843
9	Songkhla	100.6	7.2	55
10	Singapore	103.8	1.3	29
11	Bac Lieu	105.7	9.3	16
12	Bandung	107.6	-7	23

Figure 6.1: Sites AERONET considérés - Les numéros indiqués sur la carte correspondent au tableau. Les couleurs correspondent aux zones utilisées dans la suite. La dernière colonne du tableau donne le nombre de mesures spectrales disponibles sur la période Mai 2007 - Juin 2009.

Afin de comparer ces informations avec les mesures spectrales effectuées sur d'autres sites AERONET installés près des zones d'émissions de particules susceptibles de contribuer à la charge en aérosols observée à la Réunion, les séries d'épaisseurs optiques et de coefficient d'Ångström enregistrés dans le sud-est de l'Amérique Latine, dans le sud-est de l'Afrique Australe et en Asie du sud-est pendant la période Mai 2007-Juin 2009 sont également présentées ici, ainsi que les mesures disponibles sur les îles australes environnant la Réunion (Crozet et île d'Amsterdam). La Figure 6.1 donne les positions des sites considérés et le nombre de mesures disponibles pour chacun de ces sites. Afin de tenir compte des variabilités interannuelles des feux se produisant dans l'hémisphère sud [van der Werf et al., 2006], seules les données disponibles sur la période Mai 2007 - Juin 2009 sont exploitées. Ces sites ont été sélectionnés sur deux critères : 1) ils se trouvent sur les lieux de passage privilégiés des masses d'air potentiellement chargées en aérosols (Sections 1.3, 5.2 et 5.3) ; 2) des mesures spectrales ont été enregistrées sur ces sites pendant la période Mai 2007 - Juin 2009. Les sites des îles australes Crozet et Amsterdam ont été pris en compte pour comparaison avec les observations à la Réunion.

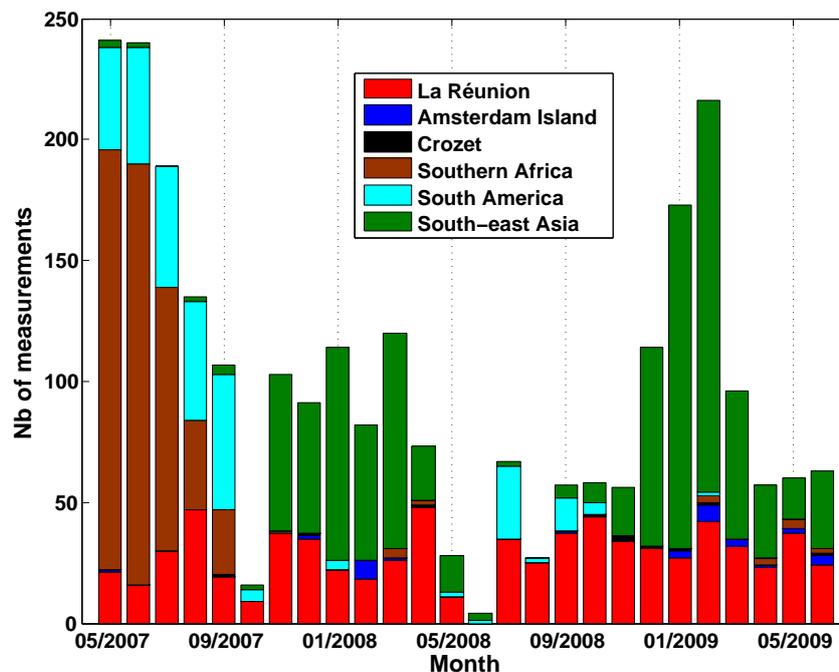


Figure 6.2: Nombre de mesures spectrales AERONET - Les sites considérés sont indiqués sur la Figure 6.1

La Figure 6.2 indique le nombre de mesures spectrales disponibles pour chacune des zones et pour chaque mois de la période Mai 2007 - Juin 2009. Alors que les données à la Réunion s'étalent à peu près régulièrement sur l'ensemble de cette période, on remarque que peu de données sont disponibles pour Crozet et l'île d'Amsterdam, que les données des zones Afrique Australe et Amérique Latine sont essentiellement concentrées sur la période Mai - Septembre

6. DISTRIBUTION ET TRANSPORT DES AÉROSOLS DANS LE SUD-OUEST DE L’OCÉAN INDIEN

2007 et que la majorité des mesures réalisées dans le sud-est asiatique couvrent les périodes Octobre 2007 - Mai 2008 et Novembre 2008 - Juin 2009.

6.2.2 Climatologie de l’épaisseur optique

Pendant la période de mesure à la Réunion les valeurs de l’épaisseur optique à 440 nm (AOT_{440}) s’étalent de 0.02 à 0.22 avec une valeur modale de 0.05 (Table 6.1), une valeur moyenne de 0.06 et une déviation standard de 0.03. Plus de 90% des AOT_{440} mesurées sont inférieures à 0.1. Cette valeur moyenne de AOT_{440} est à peu près similaire à celle présentée par *Holben et al.* [2001] pour les sites insulaires très peu pollués que sont Lanai à Hawaï (20 ° N ; 157 ° O ; $AOT_{500}=0.08$) et San Nicholas Island en Californie (33 ° N ; 119 ° O ; $AOT_{500}=0.08$).

Cumulative frequency [%]	Frequency [%]	AOT_{440}
52.6	52.6	0.05
91.2	38.6	0.1
96.1	4.9	0.15
99.5	3.4	0.2
99.9	0.4	0.25
99.9	0	0.3

Table 6.1: Distribution en fréquence de l’épaisseur optique à 440 nm à la Réunion

La Figure 6.3 (en haut) montre la série des moyennes mensuelles de AOT_{440} (ainsi que sa déviation standard) de Mai 2007 à Juin 2009 pour les 6 zones suivantes : Amérique Latine, Afrique Australe, Crozet, La Réunion, l’île d’Amsterdam et l’Asie du sud-est. La Figure 6.3 (en bas) présente également ces mêmes observations ramenées sur une année. On remarque que, sur cette période, les AOT_{440} à La Réunion, sur l’île d’Amsterdam et à Crozet sont comparables et évoluent à peu près de concert : elles stagnent entre ≈ 0.05 et ≈ 0.1 en moyenne entre Novembre et Août, puis entre ≈ 0.1 et ≈ 0.15 en moyenne en Septembre - Octobre. Ce pic de Septembre - Octobre est également visible pour l’Afrique Australe et l’Amérique Latine dont les épaisseurs optiques dépassent ≈ 0.3 lors de ces deux mois qui correspondent au plus fort de la saison des feux australe [*Generoso et al.*, 2003]. L’épaisseur optique au dessus des sites situés en Asie du sud-est augmente de ≈ 0.2 en Juillet à ≈ 0.75 en Février, et diminue ensuite à partir de Mars pour retrouver son niveau de Juillet. Cette oscillation avec des maxima en Février et en Octobre et un minimum en Juillet correspond à la saisonnalité des feux du sud-est asiatique gouvernée par les moussons asiatiques d’hiver et d’été et déjà observée précédemment [*Field et al.*, 2009 ; *Nichitiu et al.*, 2009] (Section 1.2).

La variabilité de AOT_{440} observée sur les îles australes Crozet, La Réunion et l’île d’Amsterdam est due aux diverses contributions des aérosols présents dans la colonne troposphérique à la verticale de ces îles. Celles-ci étant situées en milieu océanique ouvert et sous le vent de l’Afrique Australe et de l’Amérique Latine, ces aérosols sont très probablement des aérosols marins ainsi que des aérosols de pollution anthropique et de feu de biomasse amenés par les voies de

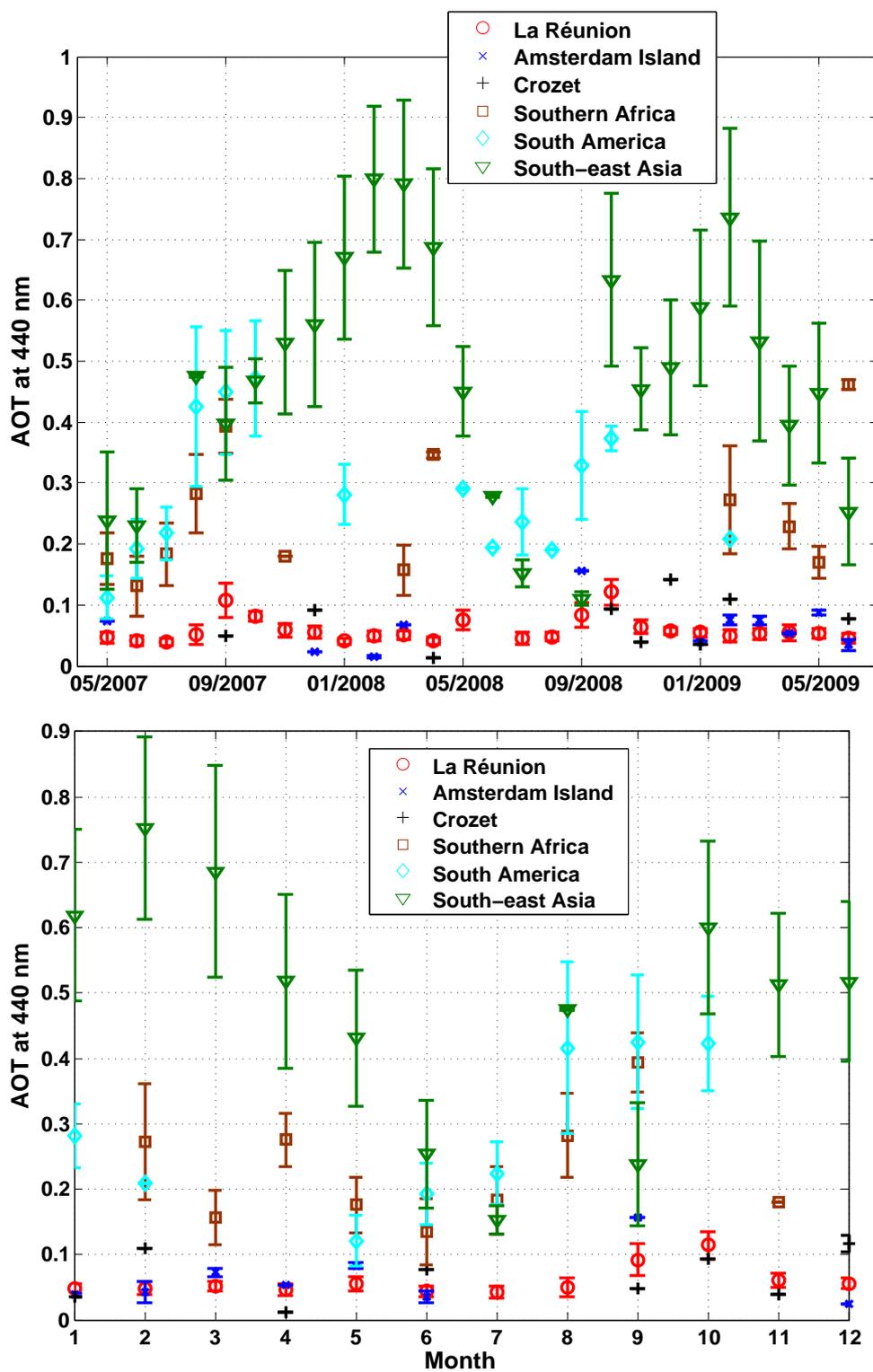


Figure 6.3: Epaisseur optique à 440 nm dans l'hémisphère sud de Mai 2007 à Juin 2009 - (en haut) Moyennes mensuelles de AOT_{440} de Mai 2007 à Juin 2009 ; (en bas) Moyennes mensuelles de AOT_{440} ramenée sur une année. Les zones considérées sont : La Réunion, l'île d'Amsterdam, Crozet, l'Afrique Australe, l'Amérique Latine et l'Asie du sud-est.

6. DISTRIBUTION ET TRANSPORT DES AÉROSOLS DANS LE SUD-OUEST DE L'OCÉAN INDIEN

transport à grande échelle (Section 1.3). La période d'augmentation de AOT_{440} allant de Juillet à Octobre correspond à la saison des feux australe et est assez bien corrélée à l'augmentation de la concentration de CO déjà observée par FTIR lors de la saison des feux 2007 : le coefficient de corrélation entre ces 2 séries de mesures indépendantes est de 0.65 (34 points - Figure 6.4). Compte tenu des durées de vie très différentes des espèces considérées (quelques mois pour CO et moins de 7 jours pour les aérosols), cette assez bonne corrélation indique que les sources d'émission de CO identifiées au Chapitre 5 sont probablement les mêmes que celles contribuant à cette concentration en aérosols. Cependant, la Figure 6.3 montre que les fortes valeurs de AOT_{440} observées de Janvier à Mars en Asie du sud-est ne trouvent d'écho ni à la Réunion ni aux autres îles australes que sont Crozet et l'île d'Amsterdam. Cela est vraisemblablement du au fait que les conditions dynamiques favorables au transport des polluants du sud-est asiatique vers le sud-ouest de l'Océan Indien - explicitées Section 5.2.3 [Duflot *et al.*, 2010] - ne sont pas présentes à cette période.

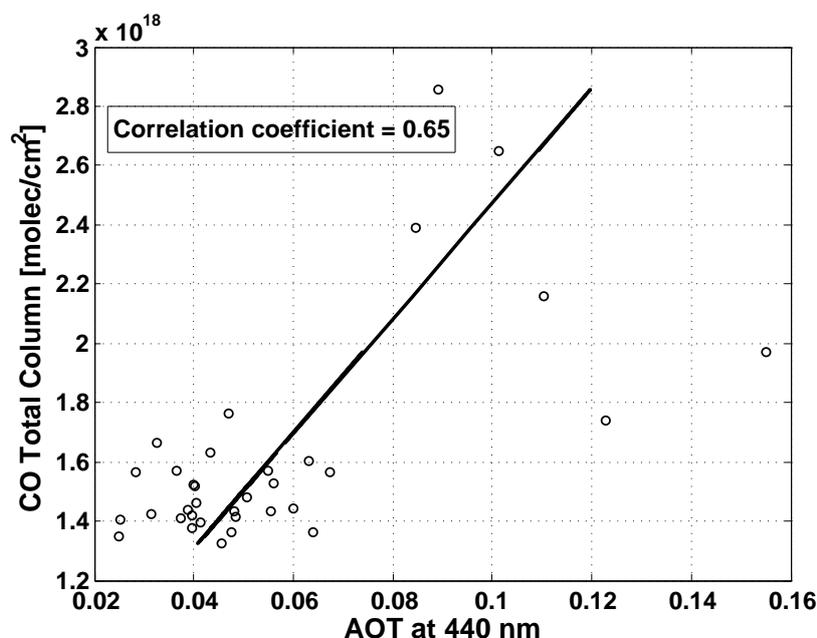


Figure 6.4: Corrélation entre l'épaisseur optique à 440 nm mesurée par photomètre et la colonne totale de CO mesurée par FTIR à la Réunion en 2007 - Le coefficient de corrélation de 0.65 est basé sur 34 points.

6.2.3 Caractéristiques de la distribution en taille des aérosols

6.2.3.1 Analyse du coefficient d'Ångström

Pendant la période de mesure à la Réunion, les valeurs du coefficients d'Ångström (Section 3.3.2.2) entre 670 et 1020 nm (a) s'étalent de 0.05 à 1.74 avec une valeur modale de 0.7 (Tableau

6.2), une valeur moyenne de 0.80 et une déviation standard de 0.37. La plage de valeur majoritaire est la plage 0.5-1 et pour 72% des observations a est inférieur à 1 (Tableau 6.2), ce qui indique que la distribution en taille des aérosols est dominée par le mode grossier (Section 3.2). Cette valeur moyenne de a (0.80) est proche de celle observée à Hawaï (0.71) et à Kaashidoo aux Maldives (0.82) par *Holben et al.* [2001].

Cumulative frequency [%]	Frequency [%]	a
0.8	0.8	0.1
3.7	2.9	0.2
7	3.3	0.3
12.9	5.9	0.4
23.2	10.3	0.5
33.1	9.9	0.6
44.5	11.4	0.7
55	10.5	0.8
64.2	9.2	0.9
71.5	7.3	1
77	5.5	1.1
82.7	5.7	1.2
87.9	5.2	1.3
92.3	4.4	1.4
96.8	4.5	1.5
98.9	2.1	1.6
99.8	0.9	1.7
99.9	0.1	1.8
99.9	0	1.9

Table 6.2: Distribution en fréquence du coefficient d'Ångström entre 670 et 1020 nm à la Réunion

La Figure 6.5 (en haut) montre la série des moyennes mensuelles de a (ainsi que sa déviation standard) de Mai 2007 à Juin 2009 pour les 6 zones précédemment considérées. La Figure 6.5 (en bas) présente ces mêmes observations ramenées sur une année. On remarque que les valeurs de a sont supérieures à 1 pour les zones Amérique Latine, Afrique Australe et Asie du sud-est (sauf au mois de Juillet pour cette dernière zone, mais le peu de mesures disponibles pour ce mois incite à la prudence dans la considération de cette valeur - cf. Figure 6.2).

Pour les îles australes (Crozet, La Réunion et l'île d'Amsterdam), a est supérieur à 1 de Septembre à Octobre, et inférieur à 1 le reste de l'année (en moyenne mensuelle), ce qui est encore une fois corrélé à la saison des feux australe. Les zones soumises aux feux de biomasse se produisant localement (Amérique Latine, Afrique Australe et Asie du sud-est) présente donc un coefficient d'Ångström caractéristique de particules fines ($a > 1$) - probablement issues des feux de biomasse, mais pouvant également être d'origine terrigène (poussières désertiques de tailles variables), en particulier pour l'Afrique Australe [*Piketh et al.*, 1999] - tandis que les

6. DISTRIBUTION ET TRANSPORT DES AÉROSOLS DANS LE SUD-OUEST DE L'OcéAN INDIEN

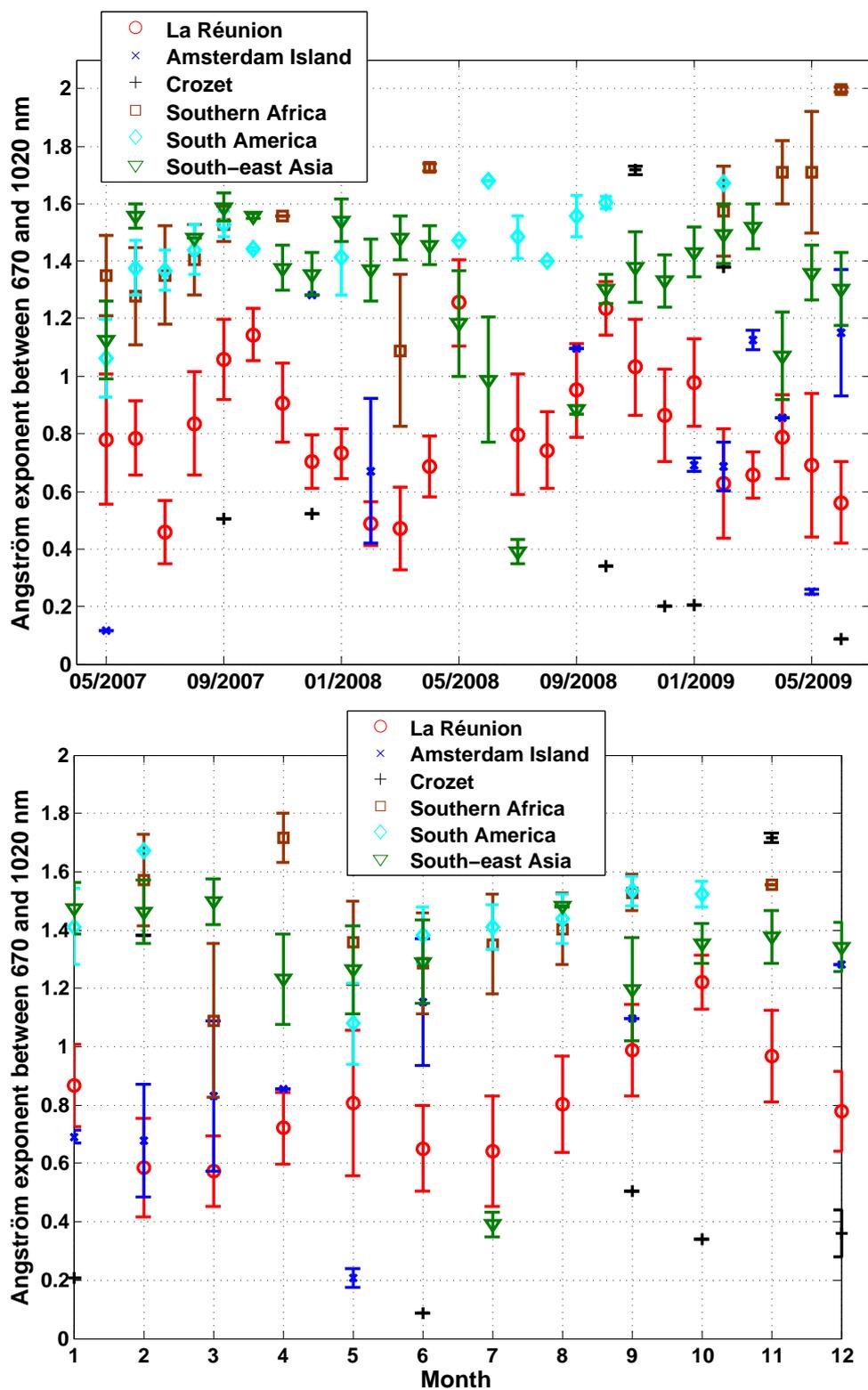


Figure 6.5: Coefficient d'Ångström entre 670 et 1020 nm dans l'hémisphère sud de Mai 2007 à Juin 2009 - (en haut) Moyennes mensuelles de a de Mai 2007 à Juin 2009; (en bas) Moyennes mensuelles de a ramenée sur une année. Les zones considérées sont : La Réunion, l'île d'Amsterdam, Crozet, l'Afrique Australe, l'Amérique Latine et l'Asie du sud-est.

zones insulaires considérées présente un coefficient d'Ångström caractéristique de particules de mode grossier ($a < 1$) de Novembre à Août et de mode fin ($a > 1$) en Septembre-Octobre [Eck *et al.*, 1999].

Les faibles valeurs de a de Novembre à Août à la Réunion peuvent être associées à l'influence de particules maritimes de mode grossier ainsi qu'au processus de vieillissement d'aérosols transportés depuis différentes sources continentales. Les valeurs de a supérieures à 1 en Septembre-Octobre peuvent être associées au transport d'aérosols de combustion depuis les zones australes soumises aux feux de biomasse [Smirnov *et al.*, 1995; Eck *et al.*, 1999].

La Figure 6.6 montre l'histogramme croisé des deux variables indépendantes AOT_{440} et a . On remarque qu'aucune paire (AOT_{440} , a) n'est située dans le secteur $AOT_{440} > 0.12$ et $a < 1$; autrement dit : si $AOT_{440} > 0.12$, alors $a > 1$. Ceci indique que les fortes valeurs d'épaisseur optique s'accompagnent de valeurs de coefficient d'Ångström caractéristiques de particules fines, très probablement provenant des feux de biomasse se produisant alentour.

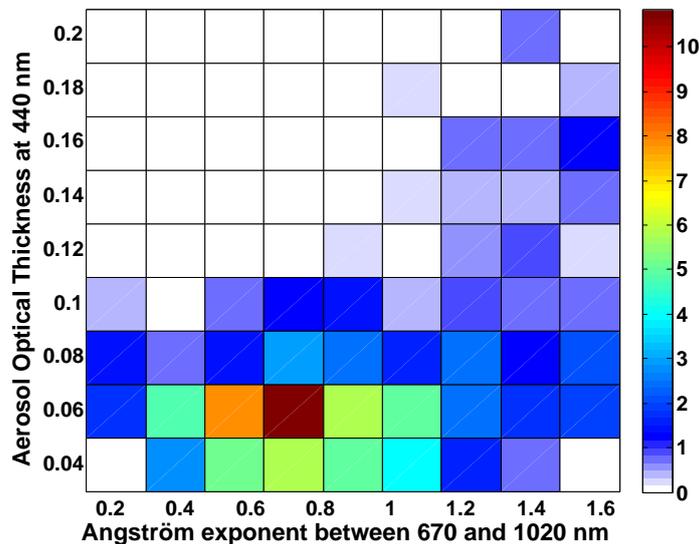


Figure 6.6: Histogramme croisé de l'épaisseur optique à 440 nm et du coefficient d'Ångström entre 670 et 1020 nm à la Réunion - L'occurrence est donnée en [%] (730 mesures).

Le coefficient d'Ångström donne une indication sur la taille des particules détectées, mais les mesures photométriques et les algorithmes développés dans le cadre du réseau AERONET donnent également accès à la distribution en taille des aérosols (Section 3.3.3.1); c'est ce que se propose d'étudier la section suivante.

6.2.3.2 Distribution en taille des aérosols à la Réunion

La Figure 6.7 présente la distribution en taille des aérosols (Section 3.3.3.1) pour différentes valeurs d'épaisseur optique. Seules les mesures avec des angles solaires zénithaux supérieurs à 65° sont considérées comme recommandé par Dubovik *et al.* [2000]. La distribution en taille

6. DISTRIBUTION ET TRANSPORT DES AÉROSOLS DANS LE SUD-OUEST DE L'OCÉAN INDIEN

des aérosols à la Réunion montrée sur la Figure 6.7 présente de larges variations en fonction de l'épaisseur optique correspondante, surtout pour les particules du mode fin. Les épaisseurs optiques inférieures à 0.1 sont associées à des distributions en taille dominées par le mode grossier avec des particules de $\approx 10 \mu\text{m}$ de rayon. Les épaisseurs optiques supérieures à 0.1 sont associées à des distributions en taille indiquant une forte concentration à la fois en particules fines ($\approx 0.01 \mu\text{m}$ de rayon) et en particules de mode grossier ($\approx 10 \mu\text{m}$ de rayon). Ceci vient corroborer l'hypothèse émise plus haut : les fortes valeurs d'épaisseur optique observées à la Réunion sont très certainement dues au transport de particules fines issues des zones soumises aux feux de biomasse.

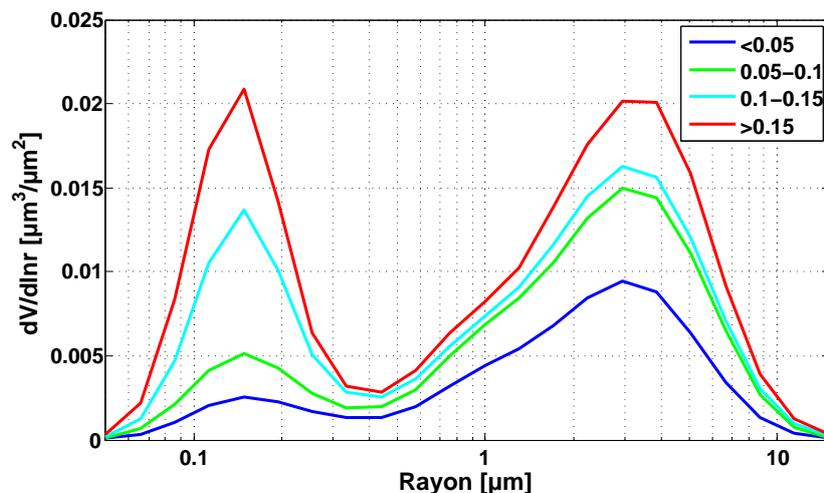


Figure 6.7: Distribution en taille des aérosols à la Réunion en fonction de l'épaisseur optique à 440 nm - Sont considérées uniquement les mesures avec un angle solaire zénithal $> 65^\circ$. La couleur des courbes donne la plage de valeurs d'épaisseur optique correspondante.

6.2.4 Conclusion

Des séries de mesures spectrales d'épaisseur optique ont été réalisées à l'aide de photomètres CIMEL à différents sites de l'Océan Indien (La Réunion, Crozet, île d'Amsterdam), d'Amérique Latine, d'Afrique Australe et d'Asie du sud-est de Mai 2007 à Juin 2009 afin de caractériser les propriétés optiques des aérosols au dessus de ces régions, avec une attention particulière pour le site de la Réunion. L'étude de ces séries de mesures montre que l'épaisseur optique à la Réunion présente une variabilité relativement faible et des valeurs assez faibles (0.06 ± 0.03 , avec plus de 90% des valeurs inférieures à 0.1) caractéristiques d'un site maritime relativement propre et similaire à Hawaï. Une variation saisonnière des moyennes mensuelles d'épaisseur optique est observée à la Réunion et dans les autres îles australes (Crozet et île d'Amsterdam), avec un niveau stable inférieur à 0.1 de Novembre à Août, et des valeurs supérieures à 0.1 en Septembre-Octobre. Ceci suggère une contribution significative des feux de biomasse à la concentration

6.3 Aérosols marins et de feux de biomasse dans le sud-ouest de l’Océan Indien

d’aérosols à la Réunion, Septembre-Octobre correspondant au plus fort de la saison des feux australe. Ces pics d’épaisseur optique en Septembre-Octobre sont d’ailleurs également visibles pour les sites situés dans les zones soumises localement aux feux de biomasse : Amérique Latine, Afrique Australe et Asie du sud-est. Les moyennes mensuelles d’épaisseur optique observée sur cette dernière zone présentent des maxima en Février et Octobre correspondant à la saisonnalité des émissions d’aérosols dans la zone gouvernée par les moussons asiatiques d’hiver et d’été. Le coefficient d’Ångström à la Réunion varie entre 0.05 et 1.74, ce qui montre que la charge en aérosols provient de divers types de sources. Le coefficient d’Ångström à la Réunion est inférieur à 1 pour plus de 70% des observations, ce qui suggère que les aérosols de mode grossier dominent, et sont très vraisemblablement d’origine maritime (aérosols marins). Cependant, en Septembre-Octobre, le coefficient d’Ångström à la Réunion est supérieur à 1 en moyenne, ce qui témoigne de la présence significative de particules de mode fin. L’analyse des épaisseurs optiques, des coefficients d’Ångström et des distributions en taille des aérosols montre que ces fortes valeurs d’épaisseur optique et de coefficient d’Ångström sont à associer au transport d’aérosols de feu jusqu’à la Réunion. De part la variabilité de leur taille, aucune preuve du transport (ou du non transport) de poussières désertiques à la Réunion n’a pu être dégagée de cette étude ; des mesures lidar ou l’analyse physico-chimique d’aérosols recueillis sur place pourrait trancher cette question.

Cette étude s’est focalisée sur la caractérisation des propriétés optiques déductibles des mesures spectrales photométriques des aérosols à la Réunion. Les campagnes avec lidar et photomètre embarqués sur le navire de recherche Marion Dufresnes en 2009 (Section 3.5) ont permis de compléter ces résultats en accédant aux propriétés optiques et aux extensions spatiale et verticale des aérosols dans le sud-ouest de l’Océan Indien : autour de Madagascar en Avril 2009, et entre la Réunion et l’archipel des Kerguelen (49 ° S ; 70 ° E) en Septembre 2009. La section suivante se propose de détailler les résultats qui ont pu être tirés de ces campagnes.

6.3 Aérosols marins et de feux de biomasse dans le sud-ouest de l’Océan Indien

6.3.1 Introduction

En 2009 et 2010, quatre campagnes avec lidar et photomètre embarqués ont été organisées par le LACy (avec un investissement particulier de Yann Courcoux) en collaboration avec l’IPEV et les TAAF afin de profiter des rotations du navire Marion Dufresne dans l’Océan Indien pour accéder à la caractérisation des propriétés optiques et de l’extension spatiale des panaches d’aérosols pouvant être rencontrés à ces occasions. Les zones parcourues par le Marion Dufresne n’avaient en effet jamais été explorées que par satellite (à ma connaissance), et aucune donnée spatialement hautement résolue permettant une caractérisation des aérosols n’avaient jamais été acquises et exploitées.

6. DISTRIBUTION ET TRANSPORT DES AÉROSOLS DANS LE SUD-OUEST DE L’OCÉAN INDIEN

Seules les campagnes MACAMAZ et KAMASUTRA ayant eu lieu en 2009 (cf. Section 3.5 pour une présentation détaillée de ces deux campagnes) ont été fructueuses, les deux autres (INDOAM et KAMASUTRA 2 de 2010) ayant été sérieusement compromises par des défaillances techniques (là encore, cf. Section 3.5). Cette section présente les observations et résultats découlant des deux campagnes de 2009.

Les résultats de la calibration du lidar (Section 3.4.3.3) sont d’abord présentés dans cette section. La méthode d’inversion (Sections 3.4.3.4 et 3.4.3.5) est ensuite appliquée aux signaux mesurés durant les deux campagnes considérées afin de déterminer les propriétés optiques des aérosols rencontrés. Seule la présence d’aérosols marins a pu être détectée durant la campagne MACAMAZ, et un panache d’aérosols de feux de biomasse a été traversé durant la campagne KAMASUTRA. Les données acquises durant les campagnes MACAMAZ et KAMASUTRA sont donc utilisées pour caractériser les propriétés optiques et l’extension verticale des aérosols marins et de feux de biomasse, respectivement. Enfin, l’origine des masses d’air constituant le panache d’aérosols rencontré est étudiée dans la discussion grâce au modèle GIRAFE, ainsi que les incertitudes liées à la technique d’inversion et les rapprochements et différences observées avec les études précédentes portant sur les aérosols marins et de feu.

6.3.2 La calibration du lidar

La méthode utilisée pour le calcul de la constante instrumentale du lidar est détaillée à la Section 3.4.3.3. La Figure 6.8 montre le profil moyen du coefficient de rétrodiffusion apparent dérivé des signaux lidar utilisés pour la calibration, superposé au profil du coefficient de rétrodiffusion du signal purement moléculaire simulé. L’altitude de référence à laquelle la rétrodiffusion peut être considérée comme purement moléculaire a été prise entre 3 et 4 km.

La Figure 6.9 montre l’histogramme des valeurs de la constante instrumentale C_λ . La valeur moyenne de C_λ vaut 0.12 [ua] avec une déviation standard de 0.014 [ua]. La valeur moyenne de C_λ est utilisée Section 6.3.3.2 pour inverser les signaux lidar sans mesure simultanée photométrique de l’épaisseur optique.

6.3.3 Les propriétés optiques des aérosols dérivées des mesures lidar

Afin de déterminer si les signaux lidar acquis durant les deux campagnes contenaient uniquement des aérosols marins ou des aérosols marins et d’autres types d’aérosols, deux critères ont été utilisés : 1) la forme de chaque signal lidar corrigé de la distance, de l’angle solide et du signal de fond de ciel (Section 3.3.4) est comparé à la forme d’un signal simulé en supposant uniquement la diffusion Rayleigh ; 2) l’épaisseur optique à 355 nm (AOT_{355}) mesurée simultanément par le photomètre est comparée à un seuil de 0.1. Si AOT_{355} est inférieur à ce seuil et si la forme du signal lidar acquis simultanément correspond à la forme du signal purement Rayleigh simulé sauf dans la couche limite marine (supposée d’une épaisseur inférieure à 1 km), alors le cas est considéré comme contenant uniquement des aérosols marins. En utilisant cette

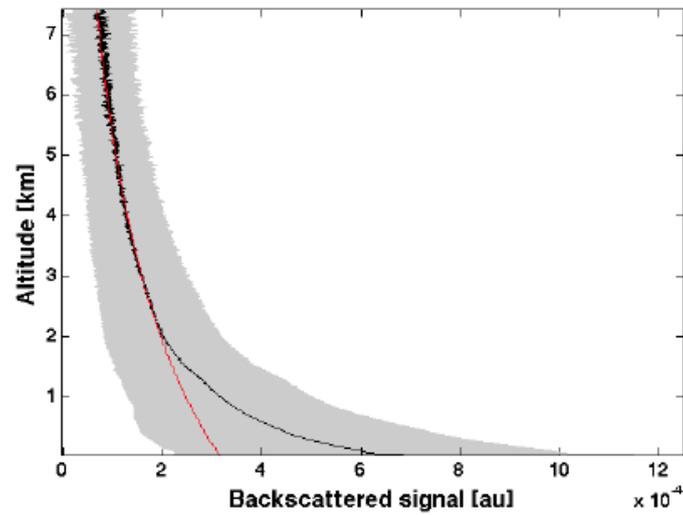


Figure 6.8: Profil vertical du coefficient de rétrodiffusion apparent utilisé pour la calibration - Profil moyen (noir) et déviation standard (gris) du profil vertical du coefficient de rétrodiffusion apparent utilisé pour la calibration du lidar

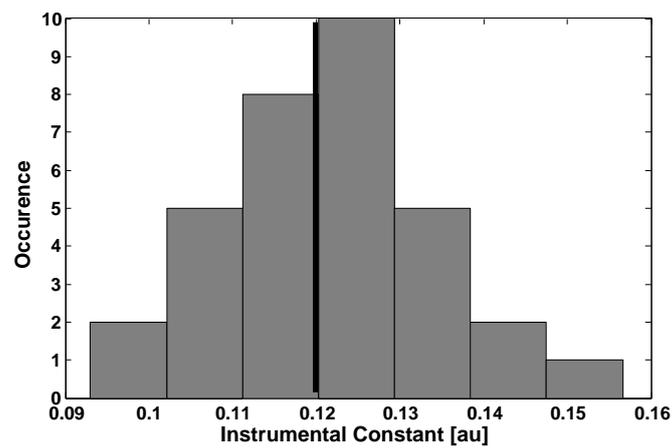


Figure 6.9: Histogramme des valeurs de la constante instrumentale C_λ - La valeur moyenne de C_λ (0.12 [au]) est donnée par la barre verticale noire.

6. DISTRIBUTION ET TRANSPORT DES AÉROSOLS DANS LE SUD-OUEST DE L'OcéAN INDIEN

approche, il apparaît qu'aucun panache d'aérosols autres que marins n'a été détecté durant la campagne MACAMOZ, et qu'un panache d'aérosols de feu a été traversé durant la campagne KAMASUTRA. Ainsi, les données acquises pendant la campagne MACAMOZ sont utilisées pour caractériser les propriétés optiques des aérosols marins, et les mesures effectuées pendant la campagne KAMASUTRA sont utilisées pour caractériser les propriétés optiques des aérosols marins et de feu.

6.3.3.1 Propriétés optiques des aérosols marins

La Figure 6.10 montre la synthèse des mesures photométriques acquises lors de la campagne MACAMOZ. Deux variables indépendantes sont utilisées : AOT_{380} et le coefficient d'Ångström (a) entre 500 et 675 nm. La valeur moyenne de AOT_{380} est de 0.08 et la valeur moyenne de a est de 0.63. On peut remarquer que toutes les valeurs de AOT_{380} sont inférieures à 0.1 et que la plupart des valeurs de a sont entre 0.2 et 1, ce qui correspond à des valeurs typiques d'épaisseur optique et de coefficient d'Ångström d'aérosols marins en océan ouvert [Smirnov *et al.*, 1995]. Malgré les quelques valeurs de a > 1 - qui pourrait correspondre à des cas faisant intervenir des aérosols de feu - aucun événement de ce type n'a été détecté en utilisant la méthode décrite ci-dessus.

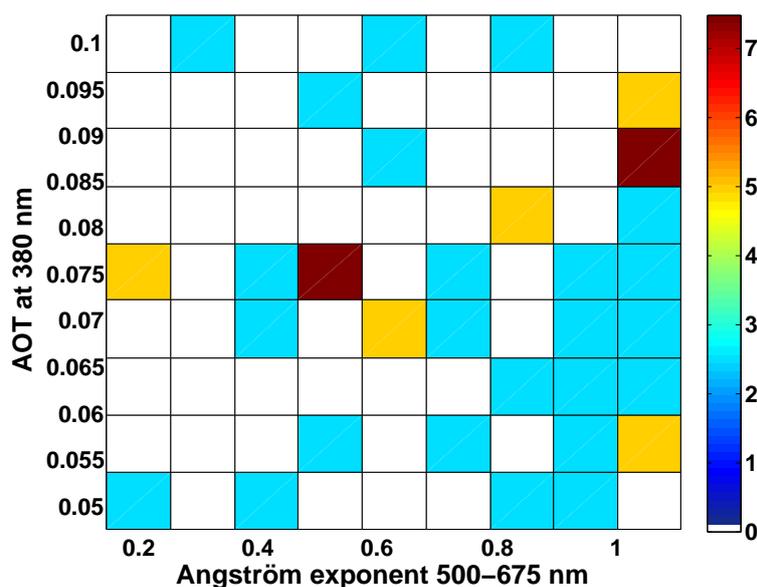


Figure 6.10: Histogramme croisé de AOT_{380} et du coefficient d'Ångström entre 500 et 675 nm lors de la campagne MACAMOZ - L'occurrence est donnée en % (26 mesures).

La Figure 6.11 montre l'historgramme des valeurs de BER_{355} obtenus pendant la campagne MACAMOZ pour toute la colonne troposphérique. La valeur moyenne de BER_{355} est de 0.039 sr^{-1} avec une variabilité de 0.009 sr^{-1} . Les sources d'erreur et les incertitudes résultantes sont discutées Section 6.3.4.2.

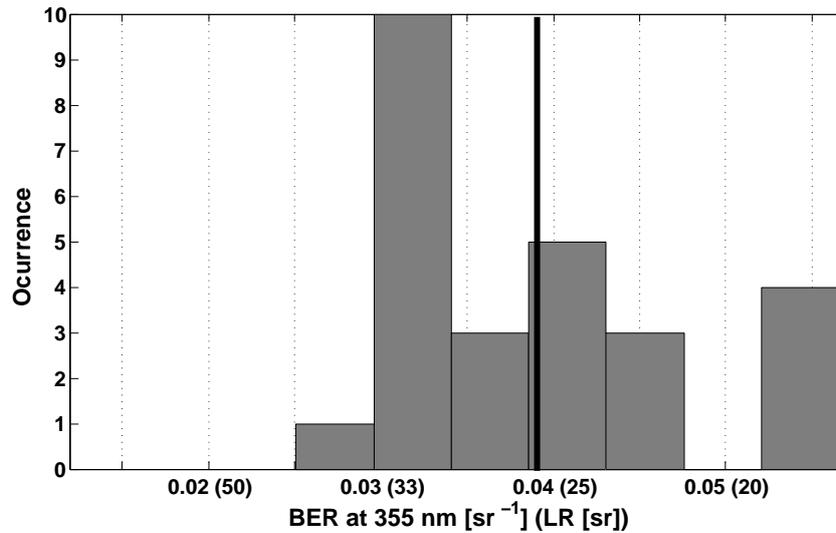


Figure 6.11: Histogramme des valeurs de BER_{355} calculées lors de la campagne MACA-MOZ - La valeur moyenne de BER_{355} (0.039 sr^{-1}) est donnée par la barre noire.

La valeur moyenne de BER_{355} (0.039 sr^{-1}) est utilisée pour déterminer le profil vertical du coefficient d’extinction des aérosols dans la MBL pendant la campagne (Figure 6.12). Aucune extinction n’est donnée sous la hauteur de recouvrement total (120 m, Figure 3.12). On peut observer que la couche d’aérosols dans MBL s’étend jusqu’à $\approx 0.7 \text{ km adm}$ (au dessus du niveau de la mer). Ce résultat est en accord avec les travaux de *Flamant et al.* [1998], *Russell et al.* [1998] et *Welton et al.* [2002] qui montrent une hauteur de MBL en océan ouvert entre ≈ 0.45 et $\approx 1 \text{ km}$.

6.3.3.2 Propriétés optiques des aérosols de feux

La campagne KAMASUTRA a été caractérisée par des conditions nuageuses pratiquement constantes. Néanmoins, en utilisant la même approche que pour la section précédente, un panache contenant des aérosols de feu a été détecté pendant la campagne du 14 au 16 Septembre entre les positions (31S, 69E) et (24S, 59E). Cette section se focalise sur les données acquises pendant cette période de traversée du panache. Deux méthodes sont mises en oeuvre afin de contraindre l’inversion lidar : l’utilisation des épaisseurs optiques acquises simultanément avec le photomètre, et l’utilisation de la valeur de constante instrumentale déterminée grâce à la calibration (Section 6.3.2) lorsqu’aucune mesure photométrique n’était disponible (la nuit par exemple). Dans la suite de cette section, les aérosols marins sont supposés mélangés aux aérosols de feu présents dans la couche supérieure. La validité d’une telle hypothèse repose sur l’intensité de la turbulence à l’interface entre les deux couches [*Russell et al.*, 1998]. Comme aucune donnée n’est disponible pour juger de la stabilité (ou instabilité) de l’interface MBL-troposphère libre, il a été choisi de considérer le cas le plus communément observé en océan ouvert : le mélange des deux couches

6. DISTRIBUTION ET TRANSPORT DES AÉROSOLS DANS LE SUD-OUEST DE L'OcéAN INDIEN

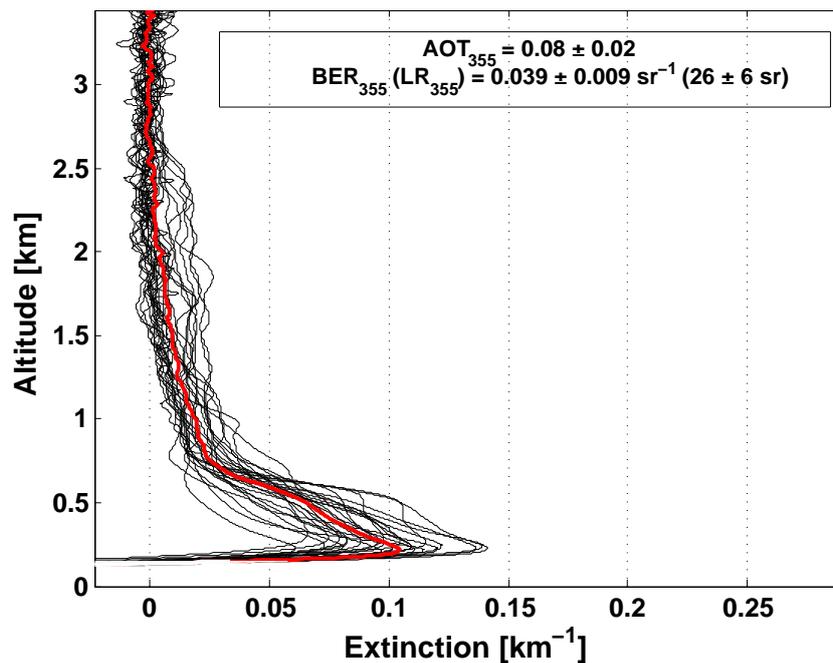


Figure 6.12: Profils de coefficient d'extinction des aérosols calculés lors de la campagne MACAMOZ - Le profil moyen est donné en rouge.

[Russell et al., 1998; Rasch et al., 2001; Bates et al., 2002; Welton et al., 2002; Forêt et al., 2006]. Par conséquent, une seule couche contenant un mélange des deux types d'aérosols sera considérée dans la suite.

En utilisant les mesures photométriques

La Figure 6.13 montre la synthèse des mesures photométriques durant la traversée du panache d'aérosols en utilisant les deux variables indépendantes AOT_{380} et a . Durant cette période, le navire a rencontré un panache d'aérosols caractérisés par une épaisseur optique de $AOT_{380} = 0.12 \pm 0.03$ et un coefficient d'Ångström $a = 1.52 \pm 0.21$.

La Figure 6.14 montre l'histogramme de BER_{355} obtenu pendant cet événement en utilisant les épaisseurs optiques AOT_{355} comme contrainte d'inversion. Une valeur moyenne de BER_{355} égale à 0.021 sr^{-1} avec une variabilité de 0.006 sr^{-1} a été calculée pour toute la colonne troposphérique. Comme précédemment, les sources d'erreur et les incertitudes associées sont discutées Section 6.3.4.2. Cette valeur est significativement différente de celle précédemment calculées durant la campagne MACAMOZ pour les aérosols marins ($BER_{355} = 0.039 \pm 0.009 \text{ sr}^{-1}$). En comparant les Figures 6.11 et 6.14, on remarque que les distributions des valeurs de BER_{355} sont différentes, avec pratiquement aucun recouvrement entre ces deux distributions.

La valeur moyenne de BER_{355} (0.021 sr^{-1}) est utilisée afin de déterminer le profil vertical du coefficient d'extinction des aérosols pendant la traversée du panache (Figure 6.15). Aucune

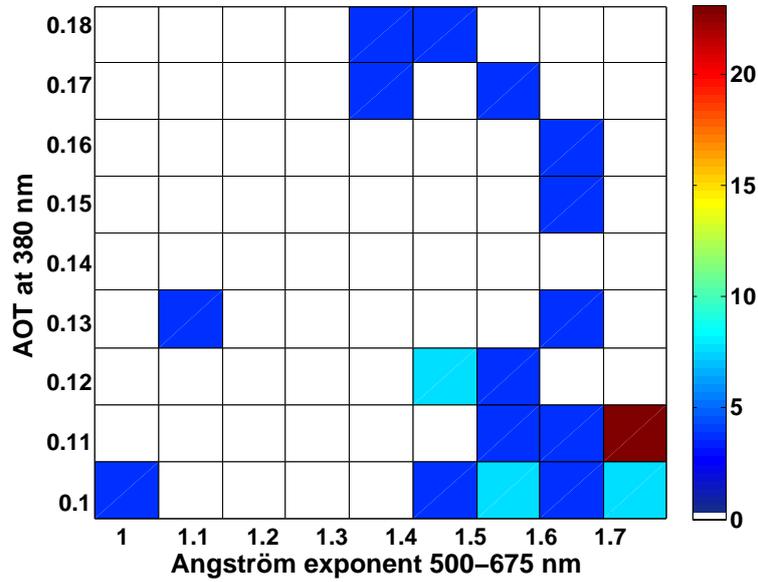


Figure 6.13: Histogramme croisé de AOT_{380} et du coefficient d’Ångström entre 500 et 675 nm lors de la campagne KAMASUTRA - L’occurrence est donnée en [%] (26 mesures).

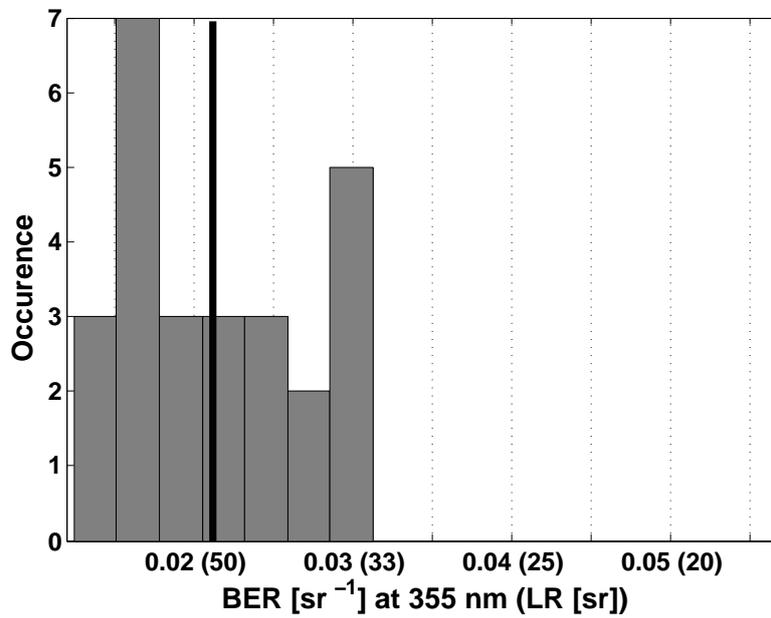


Figure 6.14: Histogramme des valeurs de BER_{355} calculées lors de la campagne KAMASUTRA - La valeur moyenne de BER_{355} (0.021 sr^{-1}) est donnée par la barre noire.

6. DISTRIBUTION ET TRANSPORT DES AÉROSOLS DANS LE SUD-OUEST DE L’OCÉAN INDIEN

extinction n’est donnée sous l’altitude de recouvrement totale (120 m, Figure 3.12). On observe que la couche d’aérosols contenant des aérosols marins et de feu (appelée dans la suite couche ”MIX”) s’étend jusqu’à une altitude ≈ 2 km adm. Ce résultat est en accord avec les résultats de *Ramanathan et al.* [2001] montrant que les couches d’aérosols peuvent s’étendre jusqu’à 3 km adm dans l’Océan Indien.

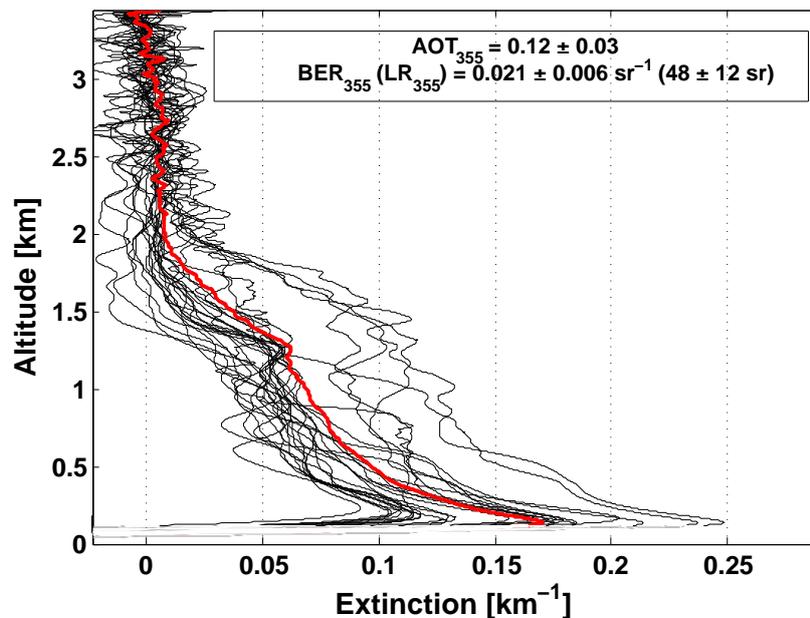


Figure 6.15: Profils de coefficient d’extinction des aérosols calculés lors de la campagne KAMASUTRA - Le profil moyen est donné en rouge.

En utilisant la calibration lidar

L’utilisation de la constante de calibration lidar déterminée précédemment permet d’inverser les signaux acquis sans avoir recours aux mesures photométriques d’épaisseur optique (Section 3.3.6). Cette approche est utilisée ici afin de caractériser l’évolution de l’extension spatiale et des propriétés optiques des aérosols du panache rencontré lors de la traversée de ce dernier. La Figure 6.16 donne l’histogramme des valeurs d’épaisseur optique calculées à partir des mesures lidar ($AOTL_{355}$). Une valeur moyenne de $AOTL_{355}$ égale à 0.12 avec une variabilité de 0.05 a été calculée. La Figure 6.17 montre la corrélation entre $AOTL_{355}$ et AOT_{355} . Un coefficient de corrélation de 0.88 (26 points) a été calculé, ce qui montre que les deux approches donnent des résultats consistants. De plus, bien que la Figure 6.17 montre quelques écarts entre les valeurs de $AOTL_{355}$ et AOT_{355} dues aux incertitudes sur C_λ (voir la Section 6.3.4.2 discutant des incertitudes), la valeur moyenne de $AOTL_{355}$ est égale à celle de AOT_{355} (0.12).

Les valeurs d’ $AOTL_{355}$ calculées permettent d’inverser les signaux lidar sans mesures pho-

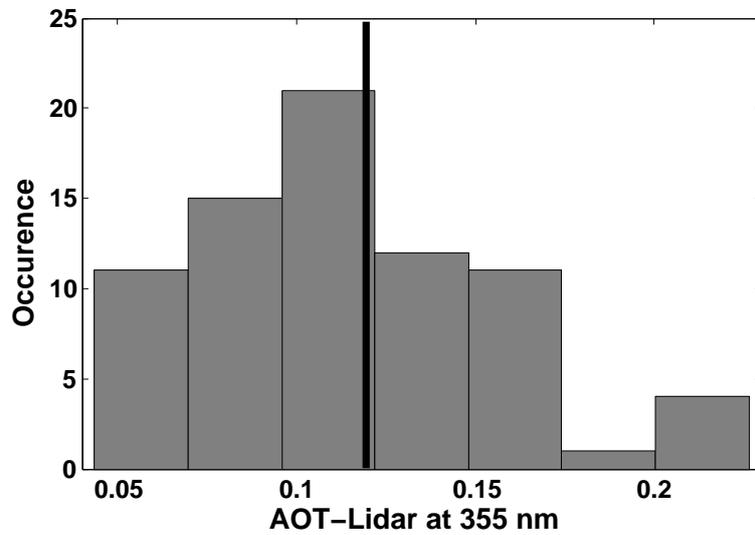


Figure 6.16: Histogramme des épaisseurs optiques AOT_{L355} calculées grâce à la calibration lidar lors de la campagne KAMASUTRA - La valeur moyenne de AOT_{L355} (0.12) est donnée par la barre noire.

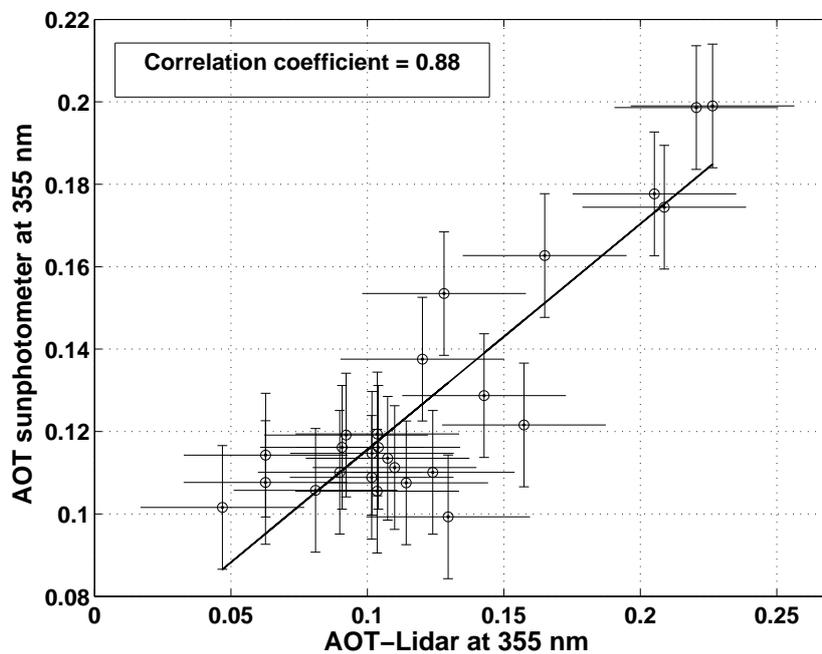


Figure 6.17: Corrélation entre AOT_{L355} et AOT_{355} - La coefficient de corrélation de 0.88 est basé sur 26 points.

6. DISTRIBUTION ET TRANSPORT DES AÉROSOLS DANS LE SUD-OUEST DE L'OCÉAN INDIEN

tométriques simultanées de l'épaisseur optique, en particulier pendant la nuit. Une telle extrapolation à des mesures nocturnes est possible car le lidar était installé dans un caisson climatisé, ce qui évitait les dérives de l'énergie laser à cause de variation de température. Il est donc raisonnable de supposer que la constante de calibration ne varie pas entre les mesures de jour et de nuit. La Figure 6.18 montre l'histogramme des valeurs de $BERL_{355}$ calculé à partir des valeurs de $AOTL_{355}$. Les valeurs de $BERL_{355}$ ont été moyennées sur dix valeurs de manière à réduire l'erreur statistique sur le $BERL_{355}$ calculé (voir la Section 6.3.4.2 pour la discussion sur les incertitudes), ce qui fournit une valeur de $BERL_{355}$ toutes les ≈ 20 min. Les profils nuageux ont été écartés du jeu de données. Pour 80% des profils restant, la procédure a été convergente et une valeur moyenne de $BERL_{355}$ égale à 0.029 sr^{-1} avec une variabilité de 0.006 sr^{-1} a été calculée pour la colonne troposphérique. Cette valeur se situe dans la barre d'erreur de la valeur de BER_{355} calculée en utilisant la synergie lidar-photomètre (voir la Section 6.3.4.2 pour la discussion sur les incertitudes). Cependant, le coefficient de corrélation entre BER_{355} et $BERL_{355}$ est de 0.48 (26 points, Figure 6.19), ce qui est inférieur à la corrélation existante entre $AOTL_{355}$ et AOT_{355} (0.88). Ceci peut être expliqué par la haute sensibilité de la technique d'inversion à la valeur d'épaisseur optique utilisée comme contrainte (voir Section 6.3.4.2). En examinant la distribution des valeurs de $BERL_{355}$ calculées (Figure 6.18), on peut remarquer quelques cas de $BERL_{355}$ supérieur à 0.030 sr^{-1} , ce qui implique que le panache traversé n'est pas uniformément chargé en aérosols. Ces hautes valeurs de $BERL_{355}$ peuvent également résulter de valeurs d' $AOTL_{355}$ sous-estimées (Figure 6.10).

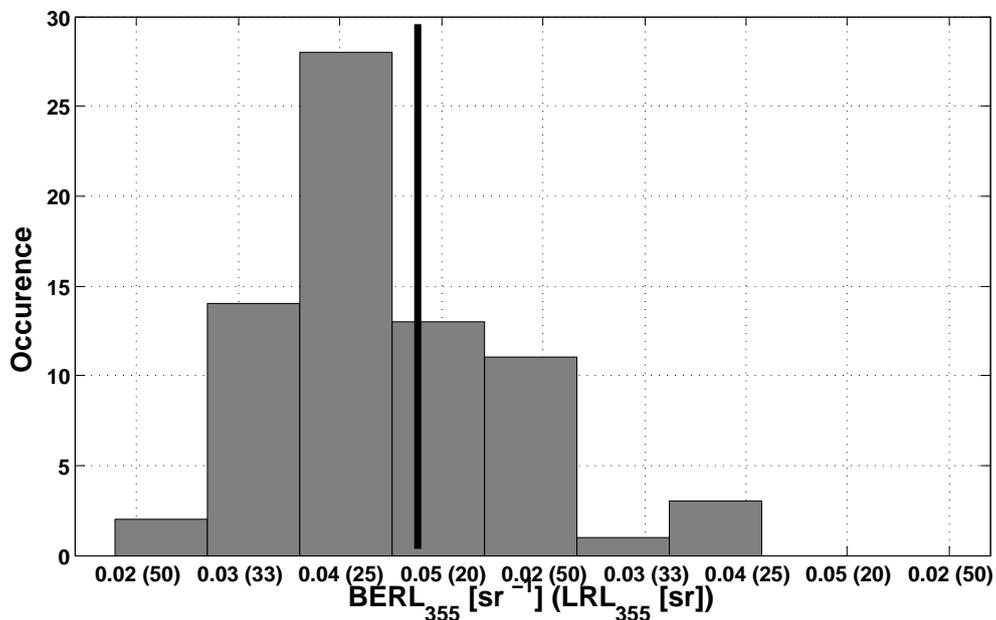


Figure 6.18: Histogramme de $BERL_{355}$ calculé grâce à la calibration lidar lors de la campagne KAMASUTRA - La valeur moyenne de $BERL_{355}$ (0.029 sr^{-1}) est donnée par la barre noire.

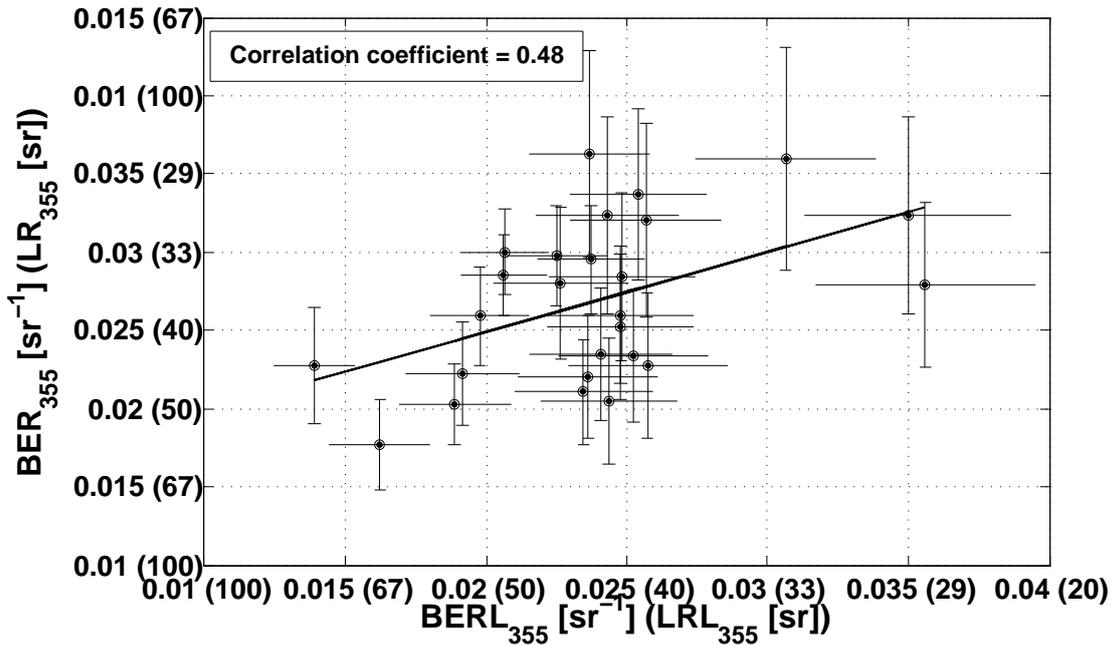


Figure 6.19: Corrélation entre $BERL_{355}$ et BER_{355} - La coefficient de corrélation de 0.48 est basé sur 26 points.

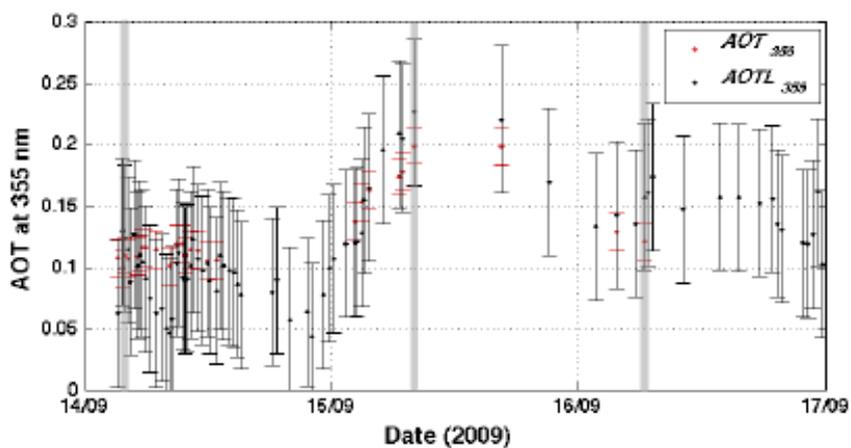
La Figure 6.20a montre l'évolution temporelle de AOT_{355} et $AOTL_{355}$ pendant la traversée du panache (les valeurs des barres d'erreur sont explicitées Section 6.3.4.2). On peut remarquer que les valeurs de AOT_{355} et $AOTL_{355}$ sont situées dans les intervalles d'erreur respectifs. Les valeurs de $AOTL_{355}$ se situent entre 0.05 et 0.13 le 14/09, augmentent jusqu'à 0.2 le 15/09 et évoluent autour de 0.15 le 16/09.

La Figure 6.20b montre l'évolution temporelle des valeurs de BER_{355} et $BERL_{355}$ calculées pendant la traversée du panache (les valeurs des barres d'erreur sont explicitées Section 6.3.4.2). On peut remarquer que les valeurs de BER_{355} et $BERL_{355}$ sont situées dans les intervalles d'erreur respectifs. $BERL_{355}$ varie principalement entre ≈ 0.025 et $\approx 0.045 \text{ sr}^{-1}$ le 14/09, diminuent à $\approx 0.02 \text{ sr}^{-1}$ le 15/09, et évoluent finalement entre ≈ 0.02 et $\approx 0.03 \text{ sr}^{-1}$ le 16/09. Il semble donc que la partie du panache traversée le 15/09 soit celle contenant le plus d'aérosols de feu ($AOTL_{355}$ la plus élevée et $BERL_{355}$ le plus faible). On peut également noter que $BERL_{355}$ diminue lorsque $AOTL_{355}$ augmente : le coefficient de corrélation entre $BERL_{355}$ et $AOTL_{355}$ est de -0.60 (72 points, Figure 6.21). Cela suggère que l'augmentation de l'épaisseur optique est principalement due à une augmentation de la concentration en aérosols de feu.

Trois profils verticaux du coefficient d'extinction (un par jour) ont été sélectionnés et sont montrés sur la Figure 6.22 (aucune extinction n'est donnée sous l'altitude de recouvrement total de 120 m - cf. Figure 3.12). Les profils d'extinction ont été choisis coïncidant avec des mesures photométriques afin de comparer les résultats obtenus à l'aide des deux méthodes. Les heures d'acquisition ainsi que les valeurs de $AOTL_{355}$, AOT_{355} , $BERL_{355}$, BER_{355} correspondantes sont

6. DISTRIBUTION ET TRANSPORT DES AÉROSOLS DANS LE SUD-OUEST DE L'OcéAN INDIEN

a)



b)

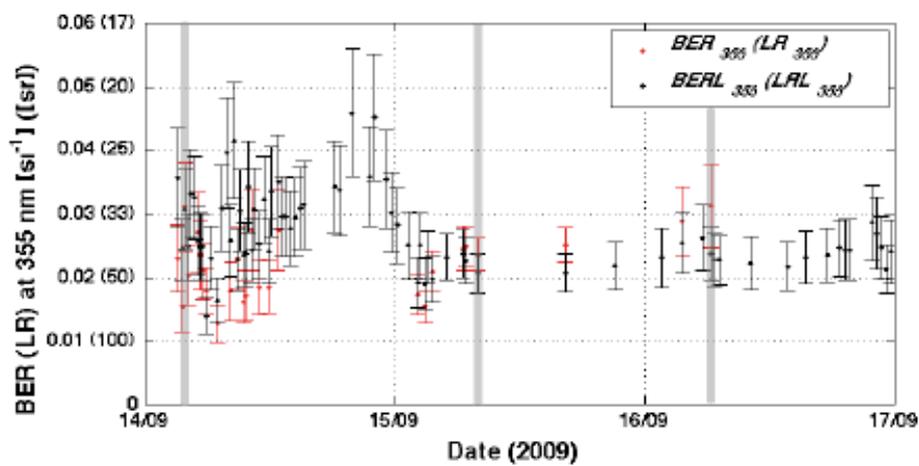


Figure 6.20: Evolutions temporelles de AOT_{355} , $AOTL_{355}$, BER_{355} et $BERL_{355}$ pendant la traversée du panache d'aérosols - La barres grises repèrent les profils d'extinction montrés sur la Figure 6.22

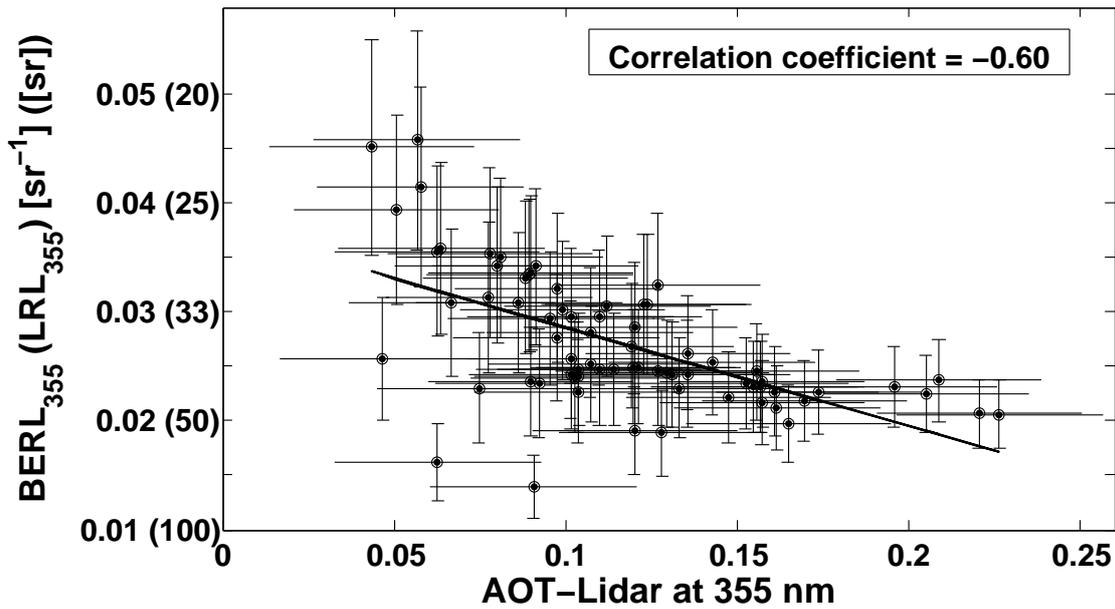


Figure 6.21: Corrélation entre $BERL_{355}$ et $AOTL_{355}$ - La coefficient de corrélation de -0.60 est basé sur 72 points.

indiquées pour chaque profil. On peut tout d’abord remarquer que la forme des profils calculés en utilisant la constante instrumentale pour déduire l’épaisseur optique $AOTL_{355}$ sont en assez bon accord avec la forme des profils d’extinction obtenus en utilisant l’épaisseur optique mesurée par le photomètre (AOT_{355}). Cependant, les profils sélectionnés montrent une extinction légèrement supérieure lorsqu’ils sont calculés via $AOTL_{355}$. Cela peut être expliqué par le fait que les valeurs d’ $AOTL_{355}$ correspondantes sont légèrement supérieures aux valeurs de AOT_{355} pour les cas sélectionnés (Figure 6.20b).

La couche d’aérosols s’étend jusqu’à ≈ 1.8 km sur le profil du 14/09 (Figure 6.22 en haut), ≈ 3 km sur le profil du 15/09 (Figure 6.22 au milieu), et ≈ 2.5 km sur le profil du 16/09 (Figure 6.22 en bas). Ce résultat est également en accord avec les résultats de *Ramanathan et al.* [2001] montrant une extension verticale des panaches d’aérosols au dessus de l’Océan Indien pouvant atteindre 3 km. Le profil du 15/09 (Figure 6.22 au milieu) montre une couche qui semble plus chargée en aérosols entre ≈ 0.7 et ≈ 1.4 km adm, ce qui pourrait être lié aux plus fortes valeurs de $AOTL_{355}$ et plus faibles valeurs de $BERL_{355}$ observées le 15/09 (Figure 6.20). Cette couche est donc probablement surtout chargée en aérosols de feu.

6. DISTRIBUTION ET TRANSPORT DES AÉROSOLS DANS LE SUD-OUEST DE L'OcéAN INDIEN

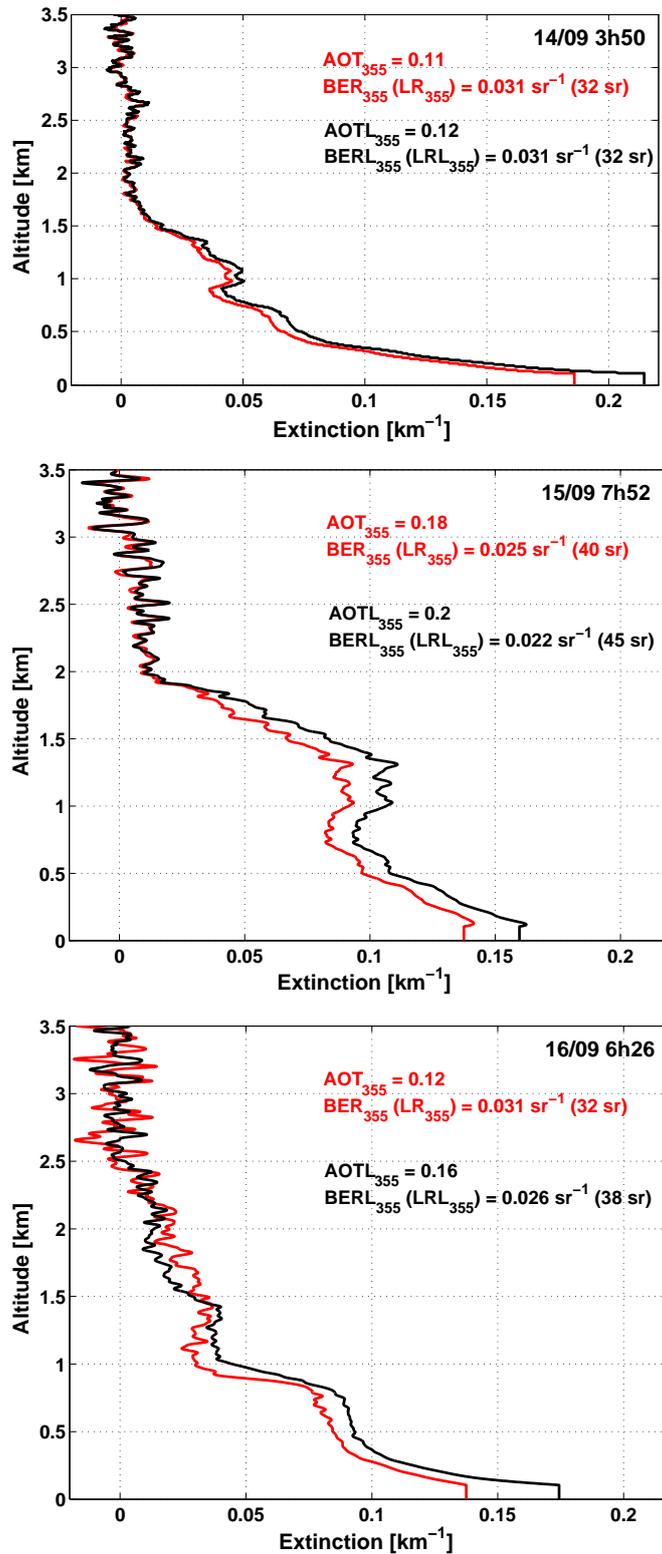


Figure 6.22: Profils d'extinction lors de la traversée du panache d'aérosols - Les profils d'extinction obtenus grâce aux mesures lidar et photomètre sont en rouge, et les profils d'extinction obtenus grâce aux mesures lidar et à l'épaisseur optique dérivée de la constante système sont en noirs pour les dates suivantes : 14/09 3h50 en haut ; 15/09 7h52 au milieu ; 16/09 6h26 en bas. Les heures sont données en TU.

6.3.4 Discussion

6.3.4.1 Origine des masses d’air chargées en aérosols : comparaison avec le modèle GIRAFE

Le temps de vie moyen des aérosols de feu troposphériques est estimé entre 4 et 7 jours [Andreae, 1995; Rasch et al., 2000; Edwards et al., 2006] (Section 1.4.2). Afin de prendre en compte le transport des aérosols à grande échelle, des simulations GIRAFE (Section 4.3) de 7 jours ont été réalisées pour chaque jour du 7 au 15 Septembre. Ces simulations permettent de les comparer aux observations lidar-photomètre réalisées entre les 14 et 16 Septembre et de déterminer l’origine des aérosols rencontrés. La hauteur d’injection des particules numériques a été fixée à 2 km ads (au dessus du sol) [Dentener et al., 2006] (Section 5.2.3.5) pour chaque pixel de feu détecté par MODIS. Les distributions géographiques verticales et horizontales des particules restant dans la troposphère entre les 14 et 16 Septembre ont été moyennées sur une grille de $1^\circ \times 1^\circ$ degré sur cette période de trois jours (Figure 6.23). Les positions extrêmes du navire durant la période étudiée ([31S, 68E] et [24S, 59E]) sont marquées par les croix noires. Cinq panaches d’aérosols de feu peuvent être remarqués sur la Figure 6.23 : un panache quitte le sud-est de l’Amérique Latine, traverse l’Océan Atlantique Sud et rejoint un deuxième panache quittant Madagascar et l’Afrique Australe par le sud-est vers l’Australie ; un troisième panache vient d’Indonésie-Malaisie et se dirige vers le sud-ouest de l’Océan Indien ; un quatrième panache quitte le nord-ouest de l’Australie et rejoint le panache indo-malaisien ; et un cinquième panache quitte l’Afrique de l’Ouest vers l’Amérique Latine. Cette distribution simulée des panaches d’aérosols de feu est en accord avec les études précédentes sur les voies de transports privilégiées dans l’Hémisphère Sud telles que Annegarn et al. [2002] et Edwards et al. [2006] (Section 1.3). De plus, le transport à grande échelle dans la haute troposphère de l’Asie du sud-est et l’Indonésie-Malaisie vers le sud-ouest de l’Océan Indien est clairement visible sur la Figure 6.23 en bas, qui montre une altitude de transport de ≈ 13 km [Duflot et al., 2010] (Section 5.2.3).

On peut remarquer que le navire se situe sur le bord du panache d’aérosols pendant la période analysée, et pratiquement à la jonction des panaches venant d’Amérique Latine, d’Afrique Australe et d’Asie du sud-est. Cela confirme que les aérosols détectés sont bien issus de feux de biomasse et peut expliquer la relative faiblesse des épaisseurs optiques mesurées lors de la traversée du panache ($\approx 0.1-0.2$). Afin de déterminer les contributions relatives de chacune des zones d’émission (Amérique Latine, Afrique Australe et Asie-Océanie) au panache détecté, l’ensemble des simulations GIRAFE a été effectué en tenant compte de chacune de ces trois zones séparément et le nombre de particules formant le panache détecté a été compté. Les contributions relatives résultantes sont : 50% d’Amérique Latine, 44% d’Afrique Australe et 6% d’Asie-Océanie. Ceci est en accord avec les résultats présentés Section 5.2.3 montrant que la zone d’émission contribuant le plus à la concentration en CO à la Réunion - qui se trouve à environ 600 km du panache détecté - est l’Amérique Latine au mois de Septembre. Cependant, les contributions relatives calculées ici doivent être considérées avec précautions pour les raisons

6. DISTRIBUTION ET TRANSPORT DES AÉROSOLS DANS LE SUD-OUEST DE L'OcéAN INDIEN

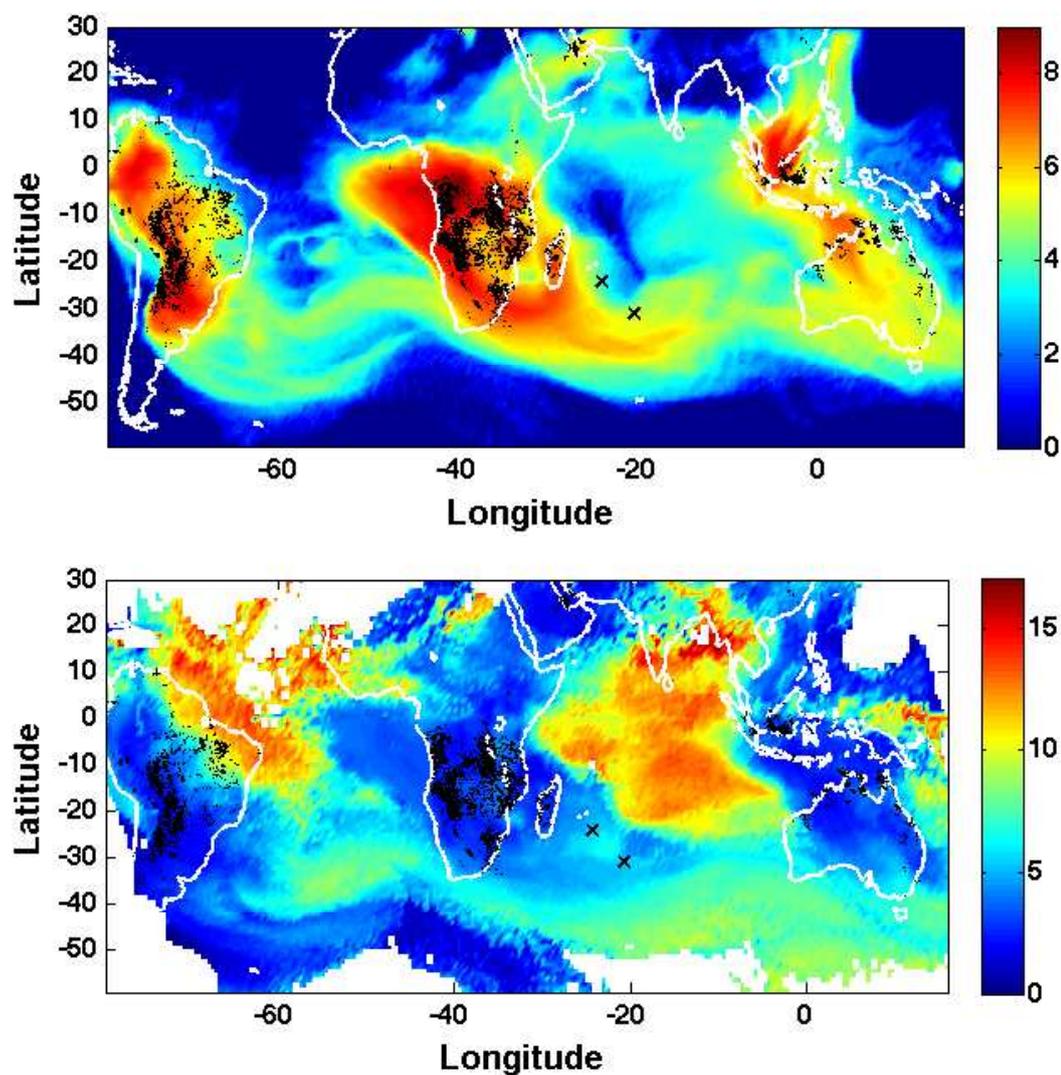


Figure 6.23: Distributions des particules résultantes des simulations GIRAFE - Distributions horizontale (en haut, unité arbitraire) et verticale (en bas, en [km]) moyennées sur des pixel de 1x1 degré des particules émises par des simulations GIRAFE de 7 jours entre les 7 et 15 Septembre 2009 et restant dans l'atmosphère entre les 14 et 16 Septembre 2009. Les points noirs sont les feux détectés par MODIS entre les 7 et 15 Septembre 2009 et les croix noires représentent les positions extrêmes du navire entre les 14 et 16 Septembre 2009 ([31° S, 69° E] et [24° S, 59° E]).

6.3 Aérosols marins et de feux de biomasse dans le sud-ouest de l’Océan Indien

suivantes : 1) le même nombre de particules a été émis pour chaque feu, indépendamment du type de biomasse brûlée ; 2) les particules émises ont été uniformément distribuées verticalement et à la même hauteur d’injection (2 km adm), indépendamment de la localisation du feu ; 3) les processus affectant les aérosols pendant leur transport ne sont pas pris en compte, tels que les réactions chimiques, le grossissement et les dépositions résultantes (Sections 1.4.2 et 4.3.2). Ces deux dernières limitations du modèle doivent également être prises en compte dans l’exploitation de la distribution verticale des aérosols simulée. On peut en effet remarquer sur la Figure 6.23 en bas que l’altitude moyenne des particules entre les deux positions extrêmes du navire pendant la détection du panache est d’environ 6 km adm, ce qui n’est pas en accord avec la hauteur observée du panache détecté (≈ 2.7 km, Figures 6.15 et 6.22). Il semble donc que le modèle GIRAFE soit un outil puissant pour la simulation de la distribution horizontale des aérosols de feu, mais n’est pas adéquat pour simuler leur distribution verticale.

6.3.4.2 Incertitudes

Un modèle direct-inverse a été développé de manière à déterminer les incertitudes sur les inversions des signaux lidar pour l’obtention des propriétés optiques des aérosols marins et de feu.

Dans le cas des aérosols marins (Section 6.3.3.1), une couche d’aérosol gaussienne a été simulée entre 0 et 0.7 km adm avec une épaisseur optique AOT_{355} de 0.08 et un BER_{355} de 0.039 sr^{-1} correspondant aux valeurs moyennes observées pendant la campagne MACAMAZ. Quatre sources d’incertitude ont été identifiées : 1) l’incertitude sur la connaissance a priori du profil verticale du signal rétrodiffusé moléculaire ; 2) l’incertitude sur le signal lidar dans la gamme d’altitude utilisée pour la normalisation ; 3) les fluctuations statistiques sur le signal lidar associées aux processus de détection aléatoires ; et 4) l’incertitude sur l’AOT utilisée pour contraindre l’inversion lidar (0.015, Section 3.2.3). L’incertitude sur la connaissance a priori du profil verticale du signal rétrodiffusé moléculaire a été estimée inférieure à 2% [Chazette et al., 2010] en utilisant une comparaison entre plusieurs sondages verticaux (radiosondages). L’incertitude sur le signal lidar dans la gamme d’altitude utilisée pour la normalisation a été estimée inférieure à 6% [Royer et al., 2010]. La fluctuation statistique du signal lidar est ici négligeable car le rapport signal-sur-bruit du signal corrigé de la distance est de ≈ 100 à l’altitude de référence. L’incertitude due à l’erreur sur la valeur d’AOT mesurée par photomètre a été estimée en utilisant une approche basée sur la méthode de Monte-Carlo [Chazette et al., 2001] : 1000 tirages ont été réalisés en supposant une fonction normale de densité de probabilité avec une déviation standard de 0.015 autour de différentes valeurs d’ AOT_{355} . La Figure 6.24a montre l’incertitude relative sur le BER obtenu pour les aérosols marins en fonction de AOT_{355} . L’incertitude de 0.015 sur la valeur d’ AOT_{355} se révèle être la majeure source d’incertitude (entre 87 et 97% de l’incertitude totale). Les différentes sources d’incertitude ont été supposées indépendantes ce qui conduit à une incertitude totale de 18 à 36% (≈ 0.007 à $0.014 sr^{-1}$) d’erreur sur les valeurs de BER_{355}

6. DISTRIBUTION ET TRANSPORT DES AÉROSOLS DANS LE SUD-OUEST DE L'OCÉAN INDIEN

calculés pour les aérosols marins pour une valeur moyenne de AOT_{355} de 0.12. L'incertitude moyenne sur BER_{355} pour les aérosols marins est ainsi de 0.009 sr^{-1} .

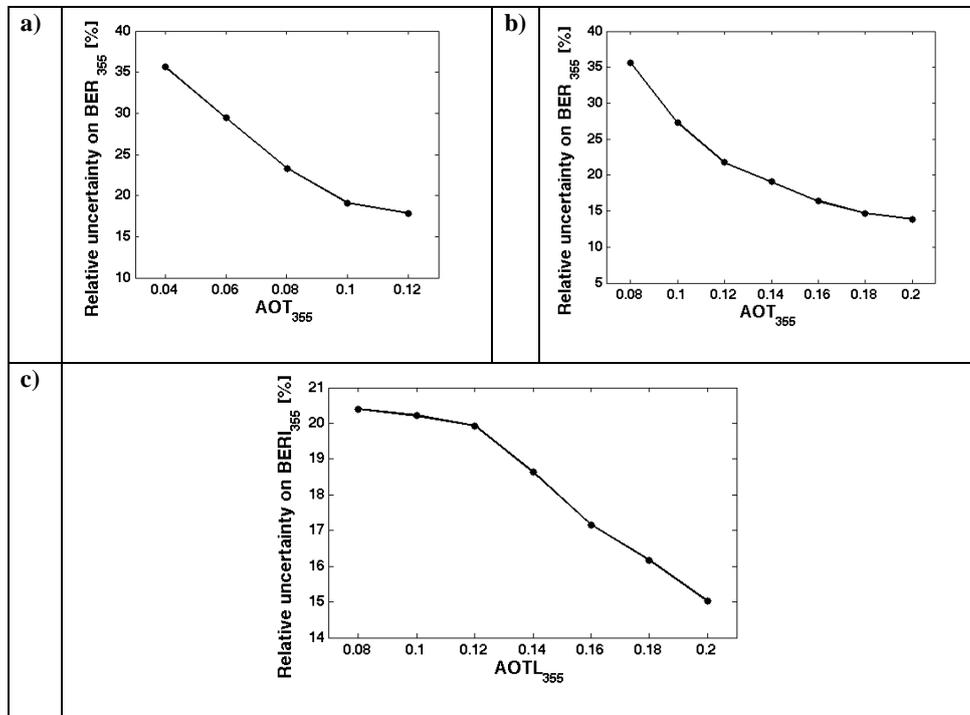


Figure 6.24: Incertitudes sur le calcul des BER - a) Incertitudes relatives sur la valeur de BER_{355} calculée en fonction de AOT_{355} pour les aérosols marins ; b) Incertitudes relatives sur la valeur de BER_{355} calculée en fonction de AOT_{355} pour les aérosols MIX ; c) Incertitudes relatives sur la valeur de $BERL_{355}$ calculée en fonction de $AOTL_{355}$ pour les aérosols MIX

Dans le cas du mélange d'aérosols marins et de feu (aérosols "MIX", Section 6.3.3.2), une couche d'aérosol gaussienne a été simulée entre 0 et 2 km ads avec une AOT_{355} de 0.12 et un BER_{355} de 0.021 sr^{-1} correspondant aux valeurs moyennes observées durant la traversée du panache d'aérosols pendant la campagne KAMASUTRA. Les quatre même sources d'incertitudes que précédemment ont été identifiées. La Figure 6.24b montre l'incertitude relative sur les BER calculés pour la couche d'aérosols MIX en fonction de AOT_{355} . L'incertitude de 0.015 autour des valeurs de AOT_{355} a également été évaluée comme la majeure source d'incertitude (entre 80 et 97% de l'incertitude totale). Les différentes sources d'incertitude ont été supposées indépendantes ce qui conduit à une incertitude totale de 14 à 36% (≈ 0.003 à 0.008 sr^{-1}) d'erreur sur les valeurs de BER_{355} calculés pour la couche d'aérosols MIX. L'incertitude moyenne sur BER_{355} pour ces aérosols est ainsi de 0.004 sr^{-1} .

Dans le cas des $BERL_{355}$ calculés en utilisant la constante instrumentale C_λ via le calcul de $AOTL_{355}$ pour les aérosols dans la couche MIX, une couche d'aérosols gaussienne a été simulée

6.3 Aérosols marins et de feux de biomasse dans le sud-ouest de l’Océan Indien

entre 0 et 2 km adm avec un AOTL de 0.12 et un $BERL_{355}$ de 0.029 sr^{-1} correspondant aux valeurs moyennes obtenues durant la traversée du panache d’aérosols. Une source additionnelle d’incertitude a due être considérée dans ce cas : l’incertitude relative sur C_λ (12%) ce qui conduit à une incertitude sur $AOTL_{355}$ de 0.06. De manière à réduire l’incertitude sur le $BERL_{355}$ calculé, les profils lidar ont été moyennés sur 10 profils. L’incertitude sur $AOTL_{355}$ a été estimé comme étant la majeure source d’incertitude ($> 98\%$ de l’incertitude totale sur le calcul de $BERL_{355}$). La Figure 6.24c montre l’incertitude relative totale - après avoir moyenné dix par dix les $BERL_{355}$ calculés afin de réduire l’incertitude - sur le calcul de $BERL_{355}$ pour les aérosols MX en fonction de $AOTL_{355}$. Les différentes sources d’incertitude ont été supposées indépendantes ce qui conduit à une incertitude totale de 15 à 20% (≈ 0.004 à 0.006 sr^{-1}) d’erreur sur les valeurs de $BERL_{355}$ calculés pour la couche d’aérosols MIX. L’incertitude moyenne sur $BERL_{355}$ pour ces aérosols est ainsi de 0.005 sr^{-1} .

6.3.4.3 Comparaison avec les études précédentes

Le Tableau 6.3 montre les valeurs de BER_λ provenant d’études précédentes pour des aérosols marins et de feu, ainsi que la longueur d’onde de l’impulsion lidar utilisée, et les zones de mesure (pour les aérosols marins et de feu) et d’origine (pour les aérosols de feu). Le Tableau 6.3 n’est pas exhaustif, mais un résumé de ce qu’il est possible de trouver dans la littérature à propos du BER_λ pour les aérosols marins et pour les aérosols de feu. Les valeurs présentées dans ce tableau proviennent de mesures direct par lidar au sol qui ne reposent sur aucune suppositions de composition, forme ou taille des aérosols (sauf pour [Catrall *et al.*, 2005]). Il est à noter qu’aucune valeur de BER à 355 nm pour les aérosols marins ou pour des aérosols de feu venant d’Afrique Australe n’a été trouvé dans la littérature. Considérant la faible dépendance spectrale (faible a , Figure 6.10) des aérosols marins dans les domaines UV et visible, les valeurs calculées dans cette étude sont en accord avec les résultats des études précédentes. Le BER_{355} moyen de $0.039 \pm 0.009 \text{ sr}^{-1}$ calculé pour les aérosols marins est presque identique à la moyenne de ceux précédemment calculés, qui s’étalent de $BER_{523} = 0.030 \pm 0.005 \text{ sr}^{-1}$ [Welton *et al.*, 2002] à $BER_{532} = 0.043 \pm 0.009 \text{ sr}^{-1}$ [Müller *et al.*, 2007], ces deux études ayant été effectuées dans le nord de l’Océan Indien tropical.

Les valeurs précédentes de BER_{355} pour des aérosols de feu provenant d’Europe de l’Est varient entre $0.015 \pm 0.006 \text{ sr}^{-1}$ [Amiridis *et al.*, 2009] et 0.017 sr^{-1} [Balis *et al.*, 2003]. Chazette *et al.* [2007] donne un BER_{355} de $0.008 \pm 0.003 \text{ sr}^{-1}$ au dessus du sud Niger. Concernant les aérosols de feu provenant d’Afrique Australe, les valeurs de BER_{355} précédemment obtenues se trouvent entre $0.016 \pm 0.003 \text{ sr}^{-1}$ [Campbell *et al.*, 2003] et $0.017 \pm 0.002 \text{ sr}^{-1}$ [Catrall *et al.*, 2005] à $\lambda = 523$ et 550 nm , respectivement.

On peut remarquer que la valeur moyenne de BER_{355} calculée pour des aérosols de feu venant principalement d’Afrique Australe et d’Amérique Latine et mélangés à des aérosols marins se trouve dans l’intervalle des valeurs de BER_λ calculés à 355 nm pour des aérosols de feu provenant

6. DISTRIBUTION ET TRANSPORT DES AÉROSOLS DANS LE SUD-OUEST DE L'OcéAN INDIEN

Reference	Wavelength [nm]	Marine aerosols BER [sr ⁻¹] (LR [sr])	Marine aerosols measurement area	BB aerosols BER [sr ⁻¹] (LR [sr])	BB aerosols source area
<i>Flamant et al.</i> , [1998]	532	0.041±0.008 (24±5)	North Atlantic		
<i>Franke et al.</i> , [2001]	532	>0.033 (<30)	Northern Indian Ocean		
<i>Müller et al.</i> , [2001]	532	0.040 (25)	Northern Indian Ocean		
<i>Welton et al.</i> , [2002]	523	0.030±0.005 (33±6)	Tropical Indian Ocean		
<i>Catrrall et al.</i> , [2005]	550	0.036±0.006 (28±5)	Global	0.017±0.002 (60±8)	South America and Southern Africa
<i>Müller et al.</i> , [2007]	532	0.043±0.009 (23±5)	Northern Indian Ocean	0.019±0.004 (53±11)	Siberia/Canada
<i>Müller et al.</i> , [2007]	355			0.022±0.006 (46±13)	Siberia/Canada
<i>Balis et al.</i> , [2003]	355			0.017 (59)	Eastern Europe
<i>Campbell et al.</i> , [2003]	523			0.013±0.003 (63±10)	Southern Africa
<i>Chazette et al.</i> [2007]	355			0.008±0.003 (125±35)	Niger
<i>Amaridis et al.</i> , [2009]	355			0.015±0.006 (70±30)	Eastern Europe
<i>This study</i>	355	0.039±0.009 (26±6)	Southwestern Indian Ocean	0.021±0.006 (48±12)	South America and Southern Africa

Table 6.3: Comparaison avec les études précédentes - Valeurs de BER_λ (et LR_λ) obtenues lors de précédentes études sur des aérosols marins et de feu. La 2ème colonne indique la longueur d'onde λ à laquelle le BER_λ a été calculé; la 3ème colonne donne le BER_λ moyen pour les aérosols marins avec la déviation standard associée; la 4ème colonne indique la zone de mesure des aérosols marins; la 5ème colonne donne le BER_λ moyen pour les aérosols de feu avec la déviation standard associée; et la 6ème colonne indique la zone de provenance des aérosols de feu détectés. Les valeurs de rapport lidar (LR_λ) sont données à titre indicatif.

6.3 Aérosols marins et de feux de biomasse dans le sud-ouest de l’Océan Indien

d’Europe de l’Est, mais légèrement supérieure aux valeurs de BER_λ précédemment calculées à des longueurs d’onde supérieures (523 et 550 nm) pour des aérosols de feu en Afrique Australe. Cela peut être expliqué par le fait que, contrairement à ces études précédentes, le panache d’aérosols détecté lors de la campagne KAMASUTRA se trouvait à plus de 2500 km de sa zone d’émission, et a donc pu être affecté par des changements dans les propriétés optiques des particules le constituant pendant son transport. Müller *et al.* [2007] ont obtenu un BER_{355} de $0.022 \pm 0.006 \text{ sr}^{-1}$ - ce qui est très proche de la valeur calculée ici - pour des aérosols de feu provenant de Sibérie et du Canada et détecté en Europe. Ils indiquent que le transport à grande échelle des aérosols semble augmenter le BER correspondant. Cela peut être du, dans le cas qui nous intéresse, au mélange avec des aérosols marins au dessus de l’Océan Atlantique Sud et du sud de l’Océan Indien, à des réactions photochimiques, et au grossissement des particules du à la vapeur d’eau ou à la coagulation. Cela peut également expliquer la différence avec le BER_{355} calculé au Sud Niger par Chazette *et al.* [2007]. Il est également nécessaire de considérer que cette étude est la première (à ma connaissance) sur la caractérisation des propriétés optiques des aérosols au dessus du sud de l’Océan Indien par lidar au sol, et que les données de références sont donc manquantes.

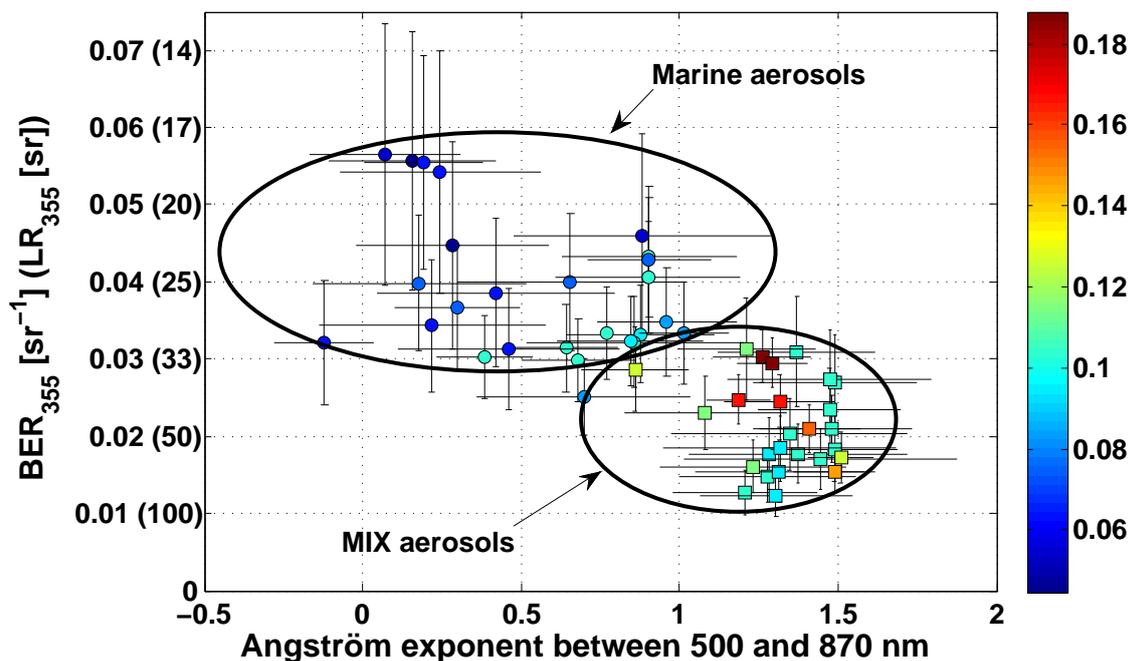


Figure 6.25: Coefficient d’Ångström a entre 500 et 870 nm vs BER_{355} - Les cas correspondant à la campagne MACAMOZ sont indiqués par des cercles, ceux de la campagne KAMASUTRA par des carrés. Les barres d’erreur proviennent des calculs explicités Section 6.3.4.2. Les barres d’erreur du coefficient d’Ångström a proviennent de l’incertitude sur l’épaisseur optique AOT et ont été calculées en utilisant une approche similaire à celle décrite dans Hamonou *et al.* [1999]. L’échelle de couleur indique l’AOT₃₈₀ associée.

6. DISTRIBUTION ET TRANSPORT DES AÉROSOLS DANS LE SUD-OUEST DE L’OCÉAN INDIEN

La Figure 6.25 montre une vue d’ensemble des coefficients d’Ångström entre 500 et 870 nm (a) vs le BER_{355} calculé à partir de la synergie lidar-photomètre. La limite de BER_{355} entre les cas ”marins” et ”MIX” a été prise comme la valeur minimale de BER trouvée dans la littérature pour les aérosols marins ($BER_{523}=0.030 \text{ sr}^{-1}$ calculé par *Welton et al.* [2002]). Les signatures des aérosols marins et MIX sont bien visibles car pratiquement aucun recouvrement entre les catégories n’est observé. Le BER_{355} et le coefficient d’Ångström a pour les aérosols marins s’étalent entre 0.030 et 0.057 sr^{-1} et de 0.10 à 0.95 , respectivement, alors que le BER_{355} et a pour les aérosols MIX varient entre 0.012 et 0.030 sr^{-1} et entre 0.86 et 1.51 , respectivement. Ces résultats sont en accord avec les travaux de *Catrrall et al.* [2005] montrant une séparation claire entre les BER correspondants aux aérosols marins et de feu. On peut également vérifier sur la Figure 6.25 que les valeurs d’AOT correspondantes aux aérosols MIX sont supérieures à celles correspondantes aux aérosols uniquement marins.

6.3.5 Conclusion

Des observations lidar ont été réalisées à bord du navire de recherche Marion Dufresne lors de deux campagnes : une autour de Madagascar à la fin de l’été austral 2009 et une entre La Réunion et l’archipel des Kerguelen en hiver austral (saison des feux australe). Un panache d’aérosols de feu a été rencontré entre (31° S , 69° E) et (24° S , 59° E) à la mi-Septembre 2009. L’épaisseur optique à 355 nm (AOT_{355}) dérivée des mesures photométriques a été utilisée afin de contraindre l’inversion des signaux lidar permettant de déterminer le BER moyen (BER_{355}) dans la couche d’aérosols marins ainsi que dans la couche contenant un mélange d’aérosols marins et de feu ; une valeur de BER_{355} de $0.039 \pm 0.009 \text{ sr}^{-1}$ a été calculée pour la couche d’aérosols marins, et de $0.021 \pm 0.006 \text{ sr}^{-1}$ pour la couche de mélange. Le profil d’extinction moyen a été calculé et révèle une couche d’aérosols s’étendant jusqu’à $\approx 3 \text{ km adm}$. La calibration lidar est utilisée pour inverser les données acquises sans mesure photométrique simultanée (telles que les données nocturnes) et l’évolution temporelle des propriétés d’extinction et de l’extension verticale des aérosols est documentée. Le modèle GIRAFE est utilisé afin de confirmer l’origine des aérosols : le panache d’aérosols rencontré provient principalement des feux de biomasse se produisant en Amérique Latine et en Afrique Australe. Toutefois, l’altitude moyenne du panache rencontré simulée par GIRAFE ne correspond pas à l’extension verticale du panache observée. La prochaine version de GIRAFE (v4), incluant la version 8.2 de FLEXPART, devra être utilisée à l’avenir afin de déterminer si le paramétrage plus complet des aérosols de cette dernière version de FLEXPART permet d’améliorer l’accord entre les altitudes simulées et observées des panaches de particules.

6.4 Conclusions du Chapitre 6

L'étude des séries temporelles des mesures spectrales photométriques acquises entre Mai 2007 et Juin 2009 sur différents sites AERONET de l'Océan Indien, d'Amérique Latine, d'Afrique Australe et d'Asie du sud-est a permis de caractériser les épaisseurs optiques et coefficients d'Ångström des aérosols détectés à la verticale de ces sites. Les données du site de la Réunion ont été particulièrement exploitées afin de déterminer les types d'aérosols majoritairement présents à la verticale de l'île. Il apparait que la charge en aérosols de la troposphère réunionnaise est essentiellement composée d'aérosols marins pendant toute l'année, et d'aérosols marins et de combustion pendant la saison des feux australe, période pendant laquelle la charge en aérosols augmente significativement. La présence (ou l'absence) d'aérosols terrigène (de type poussière désertique) n'a pu être démontrée ou infirmée avec les moyens mis en oeuvre dans cette étude.

La conduite de campagnes avec lidar et photomètre embarqués sur le navire de recherche Marion Dufresne dans le sud-ouest de l'Océan Indien a permis de caractériser les propriétés optiques des aérosols marins et d'un panache d'aérosols de feu s'étendant jusqu'à 3 km adm.

6. DISTRIBUTION ET TRANSPORT DES AÉROSOLS DANS LE SUD-OUEST DE L'OCÉAN INDIEN

Conclusions générales

7.1 Synthèse

Ces travaux de quantification et d'étude du transport des polluants dans la troposphère de l'Océan Indien ont permis d'améliorer les connaissances scientifiques sur la provenance des masses d'air polluées, sur leur distribution verticale, sur la contribution relative des zones sources à la charge en polluant mesurée, et sur les propriétés optiques des aérosols détectés. Il a ainsi été mis en évidence la prépondérance de l'influence du transport des masses d'air venant d'Amérique Latine et d'Afrique Australe à la concentration à la verticale de la Réunion en CO issu des feux de biomasse et des activités anthropiques. Une voie de transport privilégiée reliant l'Asie du sud-est au sud-ouest de l'Océan Indien dans la haute troposphère en Juillet-Août, ainsi que l'apport en CO résultant, ont été identifiés pour la première fois. La variation saisonnière de la concentration en ozone dans le sud de l'Océan Indien a également été caractérisée, et son lien avec les émissions de panaches de polluants par les feux de biomasse se produisant en Amérique Latine et en Afrique Australe a été établi. De plus, l'élaboration d'une climatologie des caractéristiques optiques des aérosols à la Réunion a permis de déterminer l'évolution temporelle de la charge en aérosols. La Réunion peut être considéré comme un site maritime "propre" dont la troposphère est principalement affectée par les aérosols marins tout au long de l'année, et également par les aérosols de feu pendant la saison des feux australe. La conduite de campagnes de télédétection des aérosols à bord d'un navire dans le sud de l'Océan Indien a abouti à l'estimation des propriétés d'extinction et de la distribution verticale d'un panache d'aérosols provenant principalement d'Amérique Latine et d'Afrique Australe, mais aussi d'Asie du sud-est.

En guise de synthèse visuelle, les Figures 7.2 et 7.3 montrent le résultat de la simulation par le modèle GIRAFE de l'évolution de la distribution spatiale des panaches de polluants émis par les feux de biomasse dans l'hémisphère sud pour chacune des quatre saisons australes. Les voies de transport Afrique Boréale - Amérique Latine (Décembre-Mai), Afrique Australe - Australie (Juin-Novembre), Amérique Latine - Australie (Juin-Novembre), Asie du sud-est - sud-ouest de l'Océan Indien (Juin-Août) et nord de l'Australie - Océan Indien (Juin-Février) sont par-

7. CONCLUSIONS GÉNÉRALES

faitement visibles, ce qui est en accord avec les résultats exposés précédemment. De plus, la distribution verticale simulée de ces panaches montre bien la voie de transport identifiée entre l'Asie du sud-est et le sud-ouest de l'Océan Indien en haute troposphère ($\approx 11\text{km}$), ainsi que la localisation en moyenne troposphère des panaches issus d'Afrique Australe et d'Amérique Latine et transportés dans le sud de l'Océan Indien ($\approx 7\text{km}$). La Figure 7.1 montre les distributions verticales saisonnières des panaches de polluant à la verticale de la Réunion. On remarque que le gros des polluant se situe entre ≈ 4 et $\approx 10\text{km}$ et que le maximum de concentration est observée pour les mois de Septembre à Octobre, ce qui est également en accord avec les observations. S'agissant des aérosols, les distributions verticales des Figures 7.3 et 7.1 sont néanmoins à considérer avec circonspection, comme indiqué au chapitre précédent.

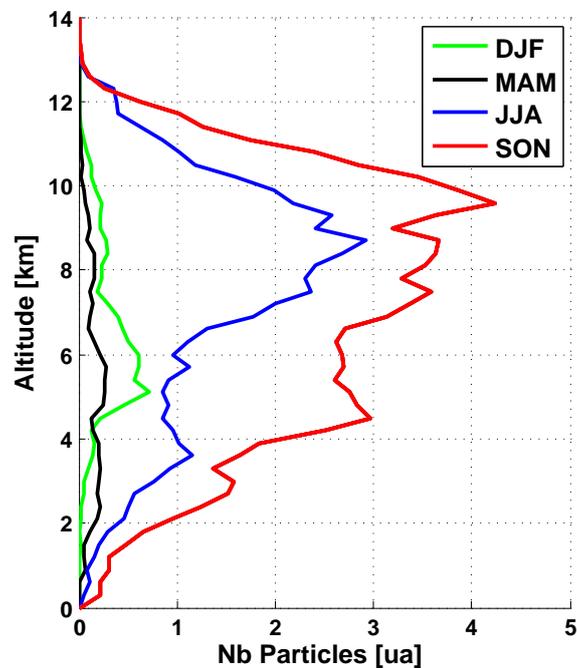


Figure 7.1: Distributions verticales moyennes des polluants simulées par GIRAFE pour chaque saison australe à la verticale de la Réunion pour l'année 2010. - Les particules ont été émises par des simulations GIRAFE de 7 jours entre les 1er Janvier et 31 Décembre 2010. Le nombre moyen de particules est donné en unité arbitraire.

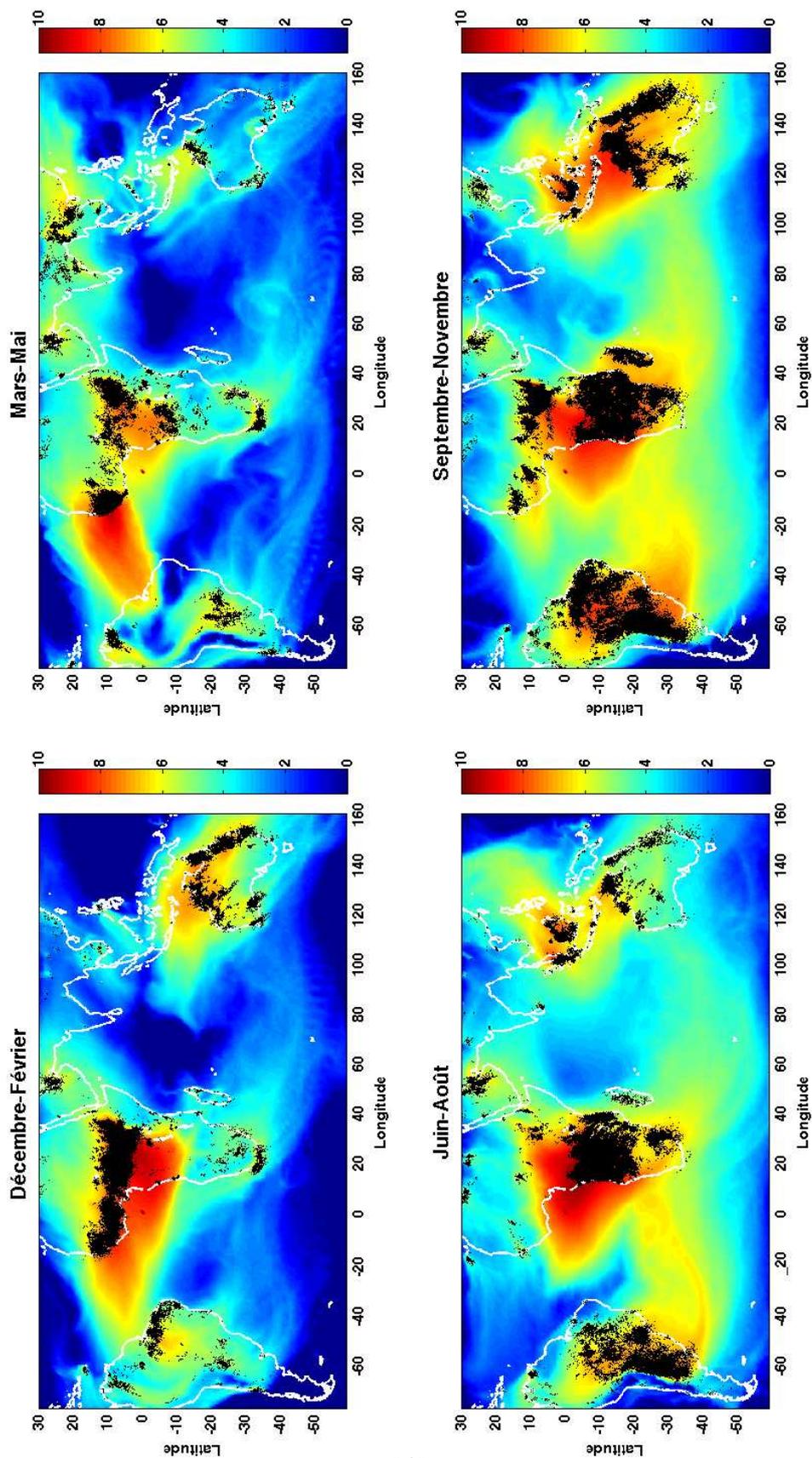
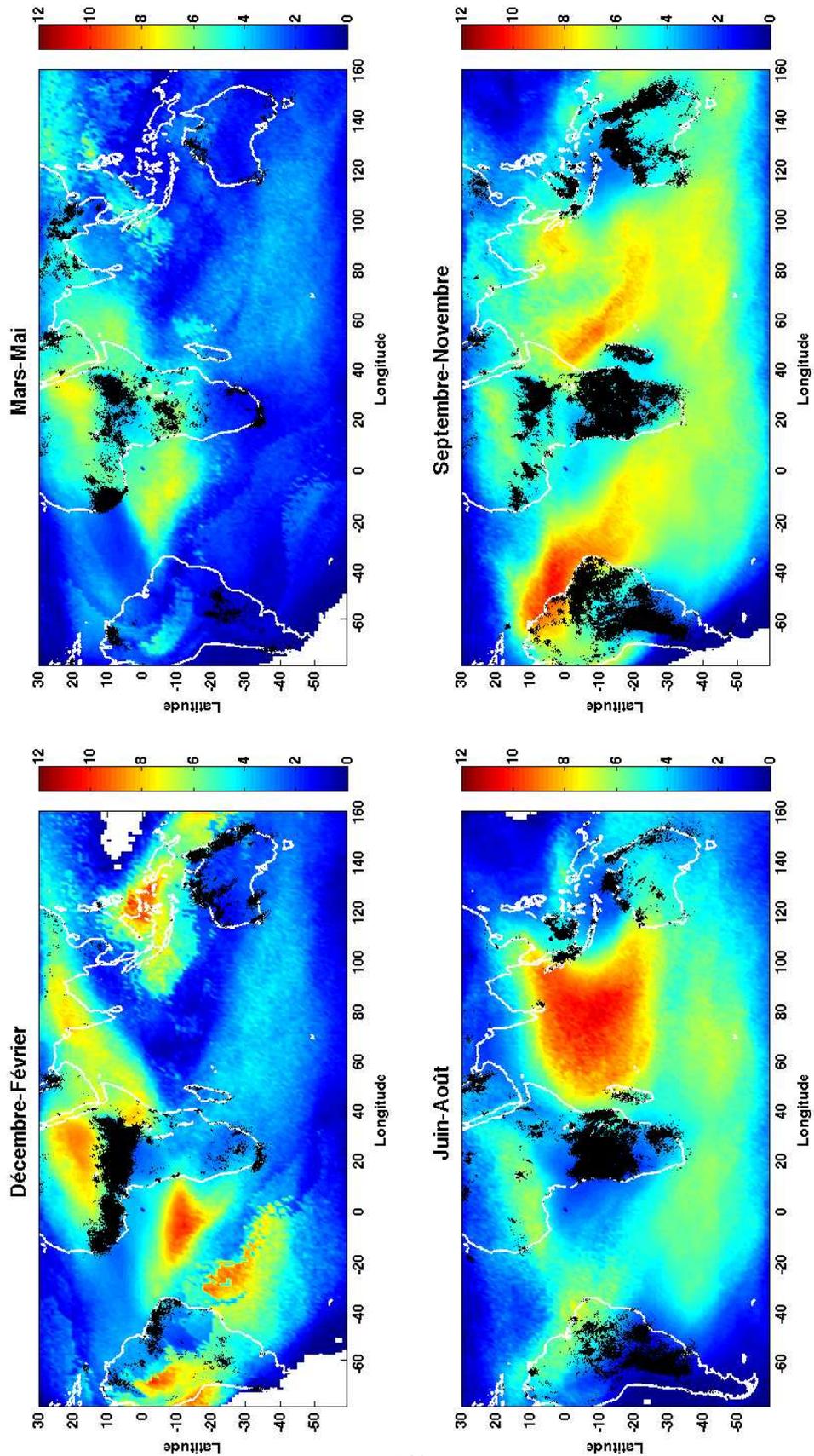


Figure 7.2: Evolution de la distribution horizontale des panaches de polluants émis par les feux de biomasse au cours de l'année 2010 simulée par GIRAFE - Les distributions saisonnières [unité arbitraire] sont moyennées sur des pixel de 1x1 degré pour des particules émises par des simulations GIRAFE de 7 jours entre les 1er Janvier et 31 Décembre 2010. Les points noirs sont les feux détectés par MODIS pour chacune des saisons.

7. CONCLUSIONS GÉNÉRALES



162

Figure 7.3: Evolution de la distribution verticale des panaches de polluants émis par les feux de biomasse au cours de l'année 2010 simulée par GIRAFE - Les distributions saisonnières [km] sont moyennées sur des pixel de 1x1 degré pour des particules émises par des simulations GIRAFE de 7 jours entre les 1er Janvier et 31 Décembre 2010. Les points noirs sont les feux détectés par MODIS pour chacune des saisons.

7.2 Perspectives

Ces travaux de recherche s'inscrivent dans une logique de caractérisation des flux de polluants dans une région à la fois très peu étudiée et très impactée par les émissions, les perspectives sont donc nombreuses. Voici quelques champs de recherche qui peuvent venir compléter ces travaux :

- Validation du modèle GIRAFE : Le modèle GIRAFE utilise les pixels de feu détectés par satellite (instrument MODIS sur Terra et Aqua) et le modèle de dispersion de panache FLEXPART. Bien que ces deux composantes du modèle aient fait l'objet de validations et de publications à la fois complètes et variées, le modèle GIRAFE n'a quant à lui jamais fait l'objet d'une validation avec les mesures de concentration au sol et ou satellitaires. Un travail de comparaison entre les quantités de particules simulées et les concentrations en polluant observées permettrait donc de déterminer si ce modèle est capable de reproduire ces observations. On peut certes s'attendre à des différences notables entre les observations et les simulations, ces dernières ne prenant pas en compte la variabilité des émissions en lien avec les différents types de végétation brûlée, mais une étude de la corrélation entre les épaisseurs optiques mesurées par MODIS et les photomètres du réseau AERONET, et pourquoi pas du réseau MAN, et les quantités de particules simulées pourrait permettre d'évaluer le degré de validité quantitative des simulations.
- Transport d'aérosols terrigènes à la Réunion : La question de la présence à la Réunion de poussières désertiques a été étudiée par l'intermédiaire des mesures photométriques locales. Même si elles donnent une indication sur la taille moyenne et sur la distribution en taille moyenne des particules, ces observations sont cependant insuffisantes pour déterminer avec certitude le type d'aérosols. De plus, les zones d'émissions de poussières et les zones soumises aux feux de biomasse étant proches, voir confondues, les études par rétrotrajectoires de la provenance des panaches ne permettront pas non plus d'être catégorique sur la nature des aérosols détectés. Des mesures in situ (collecte d'aérosols sédimentés) et des campagnes de télédétection par lidar à la Réunion devraient être menées afin de répondre à cette question avec un degré de confiance acceptable.
- Caractérisation des distributions verticales et des propriétés physiques des aérosols dans le sud de l'Océan Indien : Les épaisseurs optiques étant relativement peu élevées dans le sud de l'Océan Indien, les mesures par satellite (par exemple par l'instrument CALIPSO sur la plateforme CALIOP) souffrent d'un rapport signal sur bruit assez faible ne permettant pas d'obtenir une information suffisamment résolues verticalement (lorsque la mesure est possible). Les campagnes impliquant la synergie entre un lidar aérosols et un autre instrument (le photomètre est évidemment une solution pour contraindre l'inversion, mais d'autres solutions existent, telles que le lidar multi-longueurs d'onde ou le néphélomètre) devraient donc être poursuivies dans le sud de l'Océan Indien. En particulier, la zone située entre l'Indonésie et la Réunion devrait faire l'objet d'une seconde tentative de campagne de mesures (INDOAM 2) afin de déterminer si les aérosols émis en Asie du sud-est

7. CONCLUSIONS GÉNÉRALES

participent à la charge particulaire dans le sud-ouest de l'Océan Indien, et, le cas échéant, si les panaches d'aérosols circulent en haute troposphère, comme il l'a été montré pour le CO.

- Mais n'oublions pas l'un des objectifs principaux de ces études : l'évaluation de l'impact radiatif des aérosols émis. Pour cela, l'évaluation de la distribution tridimensionnelle des aérosols, ainsi que la caractérisation de leurs propriétés optiques (en particulier l'indice complexe de réfraction) et de leur distribution en taille sont nécessaires pour pouvoir calculer leur impact radiatif à l'aide d'un modèle. Les résultats des campagnes de mesures évoquées ci-dessus devraient donc être utilisés conjointement avec un modèle de transfert radiatif afin de pouvoir évaluer l'impact radiatif des panaches d'aérosols se promenant allègrement dans la troposphère de l'Océan Indien.
- Vieillesse des aérosols : La vie d'un aérosol ne se limite pas à son émission : comme nous tous, ils subissent de nombreuses transformations physico-chimiques au cours de leur existence (assez brève, certes, dans leur cas, mais quand même) telles que la condensation, la nucléation, la polymérisation, etc. Ces processus de vieillissement des aérosols au cours de leur transport peuvent être étudiés grâce au modèle méso-échelle MESO-NH qui requiert des observations pour être validé. La thèse de Nelson Bègue, dirigée par Pierre Tulet, s'inscrit dans cette problématique et a notamment pour objectif la modélisation du vieillissement d'un panache d'aérosols émis depuis l'Afrique Australe et détecté dans l'Océan Indien. Une telle modélisation nécessite des mesures locales suffisamment résolues pour permettre un paramétrage correct des conditions initiales, ainsi que pour la validation de la simulation.
- Mais la problématique "aérosols" ne s'arrête pas là : leur impact sur les nuages est un des grands chantiers actuels pour l'estimation correct de leur impact radiatif. La station d'observation du Maïdo (Figure 7.4) est pressentie comme pouvant être un laboratoire unique pour l'étude des interactions aérosols-nuages, ce qui nécessitera des observations préliminaires (qui devraient d'ailleurs avoir lieu avant fin 2011) et l'installation d'instruments de mesures in situ idoines.



Figure 7.4: Vue du chantier et vue idéalisée de la station d'observation du Maïdo - Sources : <http://opar.univ-reunion.fr/> (en haut) et Alexis Merlaud (en bas).

7. CONCLUSIONS GÉNÉRALES

Références

- Amiridis, V., D. S. Balis, E. Giannakaki, A. Stohl, S. Kazadzis, M. E. Koukouli, and P. Zanis (2009), Optical characteristics of biomass burning aerosols over Southeastern Europe determined from UV-Raman lidar measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 2431-2440.
- Ancellet, G., Orlandi, E., Real, E., Law, K. S., Schlager, H., Fierli, F., Nielsen, J. K., Thouret, V., and Mari, C., (2011), Tropospheric ozone production related to West African city emissions during the 2006 wet season AMMA campaign, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 6349-6366, doi :10.5194/acp-11-6349-2011, 2011.
- Anderson, G. P., F. X. Kneizys, J. H. Chetwynd, J. Wang, M. L. Hoke, L. S. Rothman, L. M. Kimball, R. A. McClatchey, E. P. Shettle, S. A. Clough, W. O. Gallery, L. W. Abreu, et J. E. A. Selby (1995), FASCODE/MODTRAN/LOWTRAN : Past/Present/ Future, paper presented at 18th Annual review conference on atmospheric transmission models, 6-8 June.
- Andreae, M. O. et al. (1986), External mixture of sea salt, silicates, and excess sulfate in marine aerosols, *Science* 232, 1620-1623.
- Andreae, M. O. (1991), Biomass burning : Its history, use and distribution and its impact on environmental quality and global climate, in *Global Biomass Burning : Atmospheric, Climatic and Biospheric Implications*, edited by J. S. Levine, pp. 1-21, MIT Press, Cambridge, Mass.
- Andreae, M. O. (1995), Climatic effects of changing atmospheric aerosol levels, in *World Survey of Climatology, Vol 16 : Future Climates of the World*, edited by A. Henderson-Sellers, pp. 341- 392, Elsevier Sci., New York.
- Andrews, D. G., Ed., (2000), *Atmospheric radiation. An Introduction to Atmospheric Physics*, Cambridge University Press, 55-96.
- Ångström, A. (1964), The parameters of atmospheric turbidity, *Tellus*, 16, 64-75.
- Annegarn, H. J. et al. (2002), Southern Africa's ecosystem in a test-tube-A perspective on the Southern African Regional Science Initiative (SAFARI 2000), *S. Afr. J. Sci.*, 98, 111 - 113.
- Balis D.S., V. Amiridis, C. Zerefos, E. Gerasopoulos, M. Andreae, P. Zanis, A. Kazantzidis, S. Kazadzis, A. Papayannis (2003), Raman lidar and sunphotometric measurements of aerosol optical properties over Thessaloniki, Greece during a biomass burning episode, *Atm. Env.*, 37, 4529-4538.
- Baray, J. L., G. Ancellet, F. G. Taupin, M. Bessafi, S. Baldy, and P. Keckhut (1998), Subtropical tropopause break as a possible stratospheric source of O₃ in the tropical troposphere, *J. Atmos. Sol. Terr. Phys.*, 60(1), 27-36.
- Barret, B. : Inversion et caractérisation de profils de constituants atmosphériques à partir de mesures FTIR sol, thèse, Université Libre de Bruxelles, 2003.
- Barret, B., P. Ricaud, C. Mari, J.-L. Attié, N. Bousse-rez, B. Josse, E. Le Flochmon, N. J. Livesey, S. Massart, V.-H. Peuch, A. Piacentini, B. Sauvage, V. Thouret, and J.-P. Cammas (2008), Transport pathways of CO in the African upper troposphere during the monsoon season : a study based upon the assimilation of spaceborne observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 3231-3246.
- Bates T. S., D. J. Coffman, D. S. Covert, and P. K. Quinn (2002), Regional marine boundary layer aerosol size distributions in the Indian, Atlantic, and Pacific Oceans : A comparison of INDOEX measurements with ACE-1, ACE-2, and Aerosols99, *J. Geophys. Res.*, 107(D19), 8026, doi :10.1029/2001JD001174.
- Bevan, S. L., P. R. J. North, W. M. F. Grey, S. O. Los, and S. E. Plummer (2009), Impact of atmospheric aerosol from biomass burning on Amazon dry-season drought, *J. Geophys. Res.*, 114, D09204, doi :10.1029/2008JD011112.
- Bim, Jimmy (1986), On the multibimensional waves affecting both north and south hemispheres, *J. Geophys. Res.*, 101, 1200, doi :10.31081986TADS.
- Birk, M., et J. W. Brault, Detector quantum efficiency : an important parameter for FT-IR spectroscopy, in *Mikrochim. Acta*, Wien, Austria, pp. 243-247, 1988.
- Bowman K. P. (2006), Transport of carbon monoxide from the tropics to the extratropics, *J. Geophys. Res.*, vol. 111, d02107, doi :10.1029/2005jd006137.
- Bremer, H., et al. (2004), Spatial and temporal variation of MOPITT CO in Africa and South America : A comparison with SHADOZ ozone and MODIS aerosol, *J. Geophys. Res.*, 109, D12304, doi :10.1029/2003JD004234.
- Butler R. A. (2007), 2007 Amazon fires among worst ever, <http://news.mongabay.com/2007/1021-amazon.html>.
- Campbell, J. R., E. J. Welton, J. D. Spinhirne, Q. Ji, S.-C. Tsay, S. J. Piketh, M. Barenbrug, and B. N. Holben (2003), Micropulse lidar observations of tropospheric aerosols over northeastern South Africa during the ARREX and SAFARI 2000 dry season experiments, *J. Geophys. Res.*, 108(D13), 8497, doi :10.1029/2002JD002563.
- Catrrall, C., J. Reagan, K. Thome, and O. Dubovik (2005), Variability of aerosol and spectral lidar and backscatter and extinction ratios of key aerosol types derived from selected Aerosol Robotic Network locations, *J. Geophys. Res.*, 110, D10S11, doi :10.1029/2004JD005124.
- Clain, G., J.L. Baray, R. Delmas, R. Diab, J. Leclair de Bellevue, P. Keckhut, F. Posny, J.M. Metzger, and J.P. Cammas (2009), Tropospheric O₃ climatology at two Southern Hemisphere tropical/subtropical sites, (Reunion Island and Irene, South Africa) from O₃ sondes, LIDAR, and in situ aircraft measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 1723-1734.
- Clain, G., J. L. Baray, R. Delmas, P. Keckhut, and J.-P. Cammas (2010), A Lagrangian approach to analyse the tropospheric ozone climatology in the tropics : Climatology

8. RÉFÉRENCES

- of stratosphere-troposphere exchange at Reunion Island, *Atmos. Environ.*, 44, 968-975.
- Charlson, R. J. et al. (1992), Climate forcing of anthropogenic aerosols, *Science* 255, 423-430.
- Chazette P. (1990), Etude complémentaire des systèmes de télédétection laser et des sondeurs passifs pour la détermination des paramètres météorologiques à partir de plates-formes spatiales, Thèse, 338 pp, Université Paris 7, Paris.
- Chazette, P., J. Pelon and G. Mégie, (2001), Determination of structural parameters of atmospheric scattering layer using spaceborne backscatter lidar, *Appl. Opt.*, 40, 3428-3440.
- Chazette, P. (2003), The monsoon aerosol extinction properties at Goa during INDOEX as measured with lidar, *J. Geophys. Res.*, 108 (D6), 4187, doi :10.1029/2002JD002074.
- Chazette, P., Sanak, J., and Dulac, F. (2007), New Approach for Aerosol Profiling with a Lidar Onboard an Ultralight Aircraft : Application to the African Monsoon Multidisciplinary Analysis, *Environ. Sci. Technol.*, 41, 8335-8341.
- Chazette, P., Raut, J.-C., Dulac, F., Berthier, S., Kim, S-W., Royer, P., Sanak, J., Loaëc, S., and Grigaut-Desbrosses, H. (2010), Simultaneous observations of lower tropospheric continental aerosols with a ground-based, an airborne, and the spaceborne CALIOP lidar systems, *J. Geophys. Res.*, 115, D00H31.
- Chin et al. (2002), Tropospheric Aerosol Optical Thickness from the GOCART Model and Comparisons with Satellite and Sun Photometer Measurements, *J. Atm. Sc.*, VOL. 59.
- Chung S. H. and Seinfeld J. H. (2002), Global distribution and climate forcing of carbonaceous aerosols, *J. Geophys. Res.*, VOL. 107, NO. D19, 4407, doi :10.1029/2001JD001397.
- Coakley, J. A. Jr, Bernstein, R. L. and Durkee, P. A. (1987), Effect of ship stack effluents on cloud reflectance, *Science*, 237, 953-956.
- Collins, W. J., R. G. Derwent, C. E. Johnson, and D. S. Stevenson (2000), The impact of human activities on the photochemical production and destruction of tropospheric ozone, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 126, 1925 - 1951.
- Cooke, W. F., B. Koffi, and J.M. Grégoire (1996), Seasonality of vegetation fires in Africa from remote sensing data and application to a global chemistry model, *Journal of Geophysical Research*, 101, 21051-21065.
- Daniel, J. S., and S. Solomon (1998), On the climate forcing of carbon monoxide, *J. Geophys. Res.*, 103, 13,249-13,260.
- Davis, S. P., M. C. Abrams, et J. W. Brault, *Fourier Transform Spectrometry*, Academic Press, San Diego, California, 2001.
- De Laat, A. T. J., J. Lelieveld, G. J. Roelofs, R. R. Dickerson, and J. M. Lobert (2001), Source analysis of carbon monoxide pollution during INDOEX 1999, *J. Geophys. Res.*, 106, 28,481-28,495.
- De Laat, A. T. J. (2002), On the origin of tropospheric O₃ over the Indian Ocean during the winter monsoon : African biomass burning vs. stratosphere-troposphere exchange, *Atmos. Chem. Phys.*, 2, 325-341, 2002.
- Deeter, M. N., L. K. Emmons, D. P. Edwards, J. C. Gille, and J. R. Drummond (2004a), Vertical resolution and information content of CO profiles retrieved by MOPITT, *Geophys. Res. Lett.*, 31, L15112, doi :10.1029/2004GL020235.
- Deeter, M. N., et al. (2004b), Evaluation of operational radiances for the Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT) instrument CO thermal band channels, *J. Geophys. Res.*, 109, D03308, doi :10.1029/2003JD003970.
- Deeter, M. N., D. P. Edwards, J. C. Gille, and J. R. Drummond (2007), Sensitivity of MOPITT observations to carbon monoxide in the lower troposphere, *J. Geophys. Res.*, 112, D24306, doi :10.1029/2007JD008929.
- Delmas, R. A., et al. (1999), Experiment for Regional Sources and Sinks of Oxidants (EXPRESSO) : An overview, *J. Geophys. Res.*, 104, 30,609-30,624.
- Delmas, R. A., et al. (2007), *Atmosphère, océan et climat*, ed. Belin, ISBN 978-2-7011-4508-2.
- Dentener F., Kinne S., Bond T., Boucher O., Cofala J., Generoso S., Ginoux P., Gong S., Hoelzemann J. J., Ito A., Marelli L., Penner J. E., Putaud J.-P., Textor C., Schulz M., van der Werf G. R., and Wilson J. (2006), Emissions of primary aerosol and precursor gases in the years 2000 and 1750 prescribed data-sets for AeroCom, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 4321-4344.
- Diab, R. D., Thompson, A. M., Mari, K., Ramsay, L., and Coetzee, G. J. R., (2004), Tropospheric ozone climatology over Irene, South Africa, From 1990 to 1994 and 1998 to 2002, *J. Geophys. Res.*, 109, D20301, doi :10.1029/2004JD004793.
- Drayson, S. R., Rapid computation of the Voigt profile, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 16, 611-614, 1976.
- Drummond, J. R., and G. S. Mand (1996), The Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT) instrument, Overall performance and calibration requirements, *J. Atmos. Oceanic Technol.*, 13, 314-320.
- Dubovik, O., King, M.D. (2000), A flexible inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from sun and sky radiance measurement, *J. Geophys. Res.*
- Dubovik, O., A. Smirnov, B. N. Holben, M. D. King, Y. J. Kaufman, T. F. Eck, and I. Slutsker (2000), Accuracy assessments of aerosol optical properties retrieved from Aerosol Robotic Network (AERONET) Sun and sky radiance measurements, *J. Geophys. Res.*, 105(D8), 9791-9806.
- Dubovik, O. et al. (2002), Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations, *J. Atmos. Sci.*, 59, 590-608.
- Eck T.F. et al. (1999), Wavelength dependence of the optical depth of biomass burning, urban, and desert dust aerosols, *J. Geophys. Res.*, 104, D24, 333-31, 349.
- Eck T.F. et al. (2001), Characterization of the optical properties of biomass burning aerosols in Zambia during the 1997 ZIBBEE field campaign, *J. Geophys. Res.*, 106, 3425-3448.
- Edwards, D. P., L. K. Emmons, J. C. Gille, A. Chu, J.-L. Attié, L. Giglio, S. W. Wood, J. Haywood, M. N. Deeter, S. T. Massie, and D. C. Ziskin, and J. R. Drummond (2006), Satellite-observed pollution from Southern Hemisphere biomass burning, *J. Geophys. Res.*, 111, D14312, doi :10.1029/2005JD006655.
- Emmons, L. K., et al. (2004), Validation of Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT) CO retrievals with aircraft in situ profiles, *J. Geophys. Res.*, 109, D03309, doi :10.1029/2003JD004101.
- Emmons, L. K., et al. (2007), Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT) validation exercises during summer 2004 field campaigns over North America, *J. Geophys. Res.*, 112 (D12S02), D03309, doi :10.1029/2006JD007833.
- Emmons, L. K., D. P. Edwards, M. N. Deeter, J. C. Gille, T. Campos, P. Nédélec, P. Novelli, and G. Sachse (2009), Measurements of Pollution In The Troposphere (MOPITT) validation through 2006, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 1795-1803.
- Fellgett, P. B., *The multiplex advantage*, Ph.D. thesis, university of Cambridge, 1951.
- Fernald, F.G., Herman, B.M., Reagan, J.A. (1972), Determination of aerosol height distributions by lidar, *J. Appl. Meteorol.*
- Fernald, F.G. (1984), Analysis of atmospheric lidar observations - Some comments, *Appl. Opt.*
- Field R.D., van der Werf G.R., Shen S.P., Human amplification of drought-induced biomass burning in Indonesia since 1960 (2009), *Nature Geoscience*, 2, 185 - 188, doi :10.1038/ngeo443.
- Flamant, C. et al. (1998), Wind speed dependence of the atmospheric boundary layer optical properties and ocean surface reflectance as observed by airborne backscatter lidar, *J. Geophys. Res.*, 103, 25,137- 25,158.

- Flaud, J. M., Spectroscopie des molécules d'intérêt atmosphérique, in *The middle atmosphere and space observations*, edited by J. Breton, J.-L. Fellous, et J. Bozec, pp. 93-176, Cépadu'és éditions, Toulouse, France, 1991.
- Fort G., C. Flamant, S. Cautenet, J. Pelon, F. Minvielle, M. Taghavi, and P. Chazette (2006), The structure of the haze plume over the Indian Ocean during INDOEX : tracer simulations and LIDAR observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 907-923.
- Franke, K., A. Ansmann, D. Müller, D. Althausen, F. Wagner, and R. Scheele (2001), One-year observations of particle lidar ratio over the tropical Indian Ocean with Raman lidar, *Geophys. Res. Lett.*, 28(24), 4559- 4562.
- Galanter, M., H. Levy, and G. R. Carmichael (2000), Impacts of biomass burning on tropospheric CO, NO_x, and O₃, *J. Geophys. Res.*, 105, 6633-6653.
- Garstang, M., P. D. Tyson, R. Swap, M. Edwards, P. Kallberg, and J. A. Lindesay (1996), Horizontal and vertical transport of air over southern Africa, *J. Geophys. Res.*, 101, 23,721-23,736.
- Generoso, S., F.-M. Bréon, Y. Balkanski, O. Boucher, and M. Schulz (2003), Improving the seasonal cycle and interannual variations of biomass burning aerosol sources, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 1211-1222.
- GIEC (2007) : Bilan 2007 des changements climatiques. Contribution des Groupes de travail I, II et III au quatrième Rapport d'évaluation du Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat [Équipe de rédaction principale, Pachauri, R.K. et Reisinger, A.]. GIEC, Genève, Suisse.
- Giglio, L. et al. (2003), An enhanced contextual fire detection algorithm for MODIS, *Remote Sens. Environ.*, 87, 273- 282.
- Hamonou E., P. Chazette, D. Balis, F. Dulac, X. Schneider, E. Galani, G. Ancellet, A. Papayannis (1999), Characterization of the vertical structure of Saharan dust export to the Mediterranean basin, *J. Geophys. Res.*, 104, D18,257-22,270.
- Hansen, J. et L. Travis (1974), Light scattering in planetary atmospheres, *Space Sci. Rev.*, 16, 527-610.
- Hauchecorne A. et al., Quantification of the transport of chemical constituents from the polar vortex to midlatitudes in the lower stratosphere using the high-resolution advection model MIMOSA and effective diffusivity (2002), *J. Geophys. Res.*, Vol. 107, No. D20.
- Herman, J. R. et al. (1997), Global distribution of UV-absorbing aerosol from Nimbus-7/TOMS data, *J. Geophys. Res.*, 102, 16911-16922.
- Holben, B. N., Eck, T.F., Slutsker, I., et al. (1998), AERONET - A federated instrument network and data archive for aerosol characterisation, *Remote Sens. Environ.*, 66, 1-16.
- Holben, B. N., et al. (2001), An emerging ground-based aerosol climatology : Aerosol optical depth from AERONET, *J. Geophys. Res.*, 106, 12,067- 12,097.
- Hoppel, W. A. et al. (1990), Aerosol size distribution and optical properties found in the marine boundary layer over the Atlantic Ocean. *J. Geophys. Res.* 95, 3659-3686.
- Hoskins, B. J. and M.J. Rodwell (1995), A model of the Asian summer monsoon. Part I : the global scale, *J. Atmos. Sci.*, 52, 1329-1340.
- Husar, R. B., Prospero, J. and Stowe, L. L. (1997), Characterization of tropospheric aerosols over the oceans with the NOAA AVHRR optical thickness operational product. *J. Geophys. Res.* 102, 16889-16909.
- Intergovernmental Panel on Climatic Change (IPCC), *Climate Change 2007 : Radiative Forcing of Climate* (2007), Cambridge Univ. Press, New York.
- Iqbal, M. (1983), *An Introduction to Solar Radiation*, Academic Press, Toronto.
- Jacquinet, P., et C. Dufour, Condition optique de déploiement des cellules photoélectriques dans les spectrographes et les interféromètres, *Journal Recherche du Centre National de la Recherche Scientifique du Laboratoire de Bellevue*, 6 , 91-103, 1948.
- Jaffe, D., et al. (1999), Transport of Asian air pollution to North America, *Geophys. Res. Lett.*, 26(6), 711- 714.
- Kanakidou, M., and P. J. Crutzen (1999), The photochemical source of carbon monoxide : Importance, uncertainties and feedbacks, *Chemosphere*, 1, 91-109.
- Kar, J., et al. (2004), Evidence of vertical transport of carbon monoxide from Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT), *Geophys. Res. Lett.*, 31, L23105, doi :10.1029/2004GL021128.
- Kaufman, Y. J. and Fraser, R. S. (1997), Confirmation of the smoke particles effect on clouds and climate, *Science* 277, 1636-1639.
- Kaufman et al. (2002), A satellite view of aerosols in the climate system, *Nature*, VOL 419.
- Keeling, C. D. (1960), The concentration and isotopic abundances of carbon dioxide in the atmosphere. *Tellus* 12, 200-203.
- Kent et al. (1998), LITE and SAGE II measurements of hemisphere upper troposphere, *Journal of Geophysical Research*, vol. 103, no. d15, pages 19,111-19,127.
- Kiehl, J. T. and Briegleb, B. P. (1993), The relative roles of sulfate aerosols and greenhouse gases in climate forcing, *Science*, 260, 311-314.
- Klett, J. D. (1981), Stable analytical inversion solution for processing lidar returns. *Appl. Opt.*, 20, 211-220.
- Klett, J. D. (1985), Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratios. *Appl. Opt.*, 24, 1638-1643.
- Knobelspiesse, K. D., C. Pietras, and G. S. Fargion (2003), Sun-pointing error correction for sea deployment of the Microtops II handheld Sun photometer, *J. Atmos. Oceanic Technol.*, 20, 767 - 771, doi :10.1175/1520-0426.
- Knobelspiesse, K. D., et al. (2004), Maritime aerosol optical thickness measured by handheld Sun photometers, *Remote Sens. Environ.*, 93, 87- 106, doi :10.1016/j.rse.2004.06.018.
- Lau K.-M. and Yang S. (2002), Walker circulation, *Elsevier Science*, doi :10.1006/rwas.2002.0450
- Leclair De Bellevue, J., A. Réchou, J. L. Baray, G. Ancellet, and R. D. Diab (2006), Signatures of stratosphere to troposphere transport near deep convective events in the southern subtropics, *J. Geophys. Res.*, 111, D24107, doi :10.1029/2005JD006947.
- Lelieveld, J., et al. (2000), The Indian Ocean Experiment : Widespread air pollution from south and Southeast Asia, *Science*, 291, 1031- 1036.
- Lelieveld, J., H. Berresheim, S. Borrmann et al. (2002), Global Air Pollution Crossroads over the Mediterranean, *Science*, 298, 794-799.
- Lenoble, J (1993), *Atmospheric radiative transfer*, A. Deepak Publishing, Hampton, 532 pp.
- Léon J.F., P. Chazette, F. Dulac, J. Pelon, C. Flamant, M. Bonazzola, G. Foret, S.C. Alfaro, H. Cachier, S. Cautenet, E. Hamonou, A. Gaudichet, L. Gomes, J.L. Rajot, F. Lavenu, S.R. Inamdar, P.R. Sarode et J.S. Kadadevarmath (2001), Large scale advection of continental aerosols during INDOEX , *J. Geophys. Res.*, 106, 28427-28440.
- Li, Q. L., D. J. Jacob, J. A. Logan, et al. (2001), A Tropospheric Ozone Maximum Over the Middle East, *Geophys. Res. Lett.*, 28(D17), 3235-3238.
- Li, Q. L., J. H. Jiang, D. L. Wu, et al. (2005), Convective outflow of South Asian pollution : A global CTM simulation compared with EOS MLS observations, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L14826, doi :10.1029/2005GL022762.
- Liang, Q., Jaeglé, L., Jaffe, D. A., Weiss-Penzias, P., Heckman, A., and Snow, J. A. : Long-range transport of Asian pollution to the northeast Pacific : Seasonal variations and transport pathways of carbon monoxide, *J. Geophys. Res.*, 109, D23S07, doi :10.1029/2003JD004402, 2004.
- Liu et al. (2006), First directly retrieved global distribution of tropospheric column ozone from GOME : Comparison with the GEOS-CHEM model, *J. Geophys. Res.*, vol. 111, d02308, doi :10.1029/2005jd006564.

8. RÉFÉRENCES

- Lobert et al. (1990), *Nature*, 346, 552-554.
- Logan, J. A., M. J. Prather, S. C. Wofsy, and M. B. McElroy (1981), Tropospheric chemistry : A global perspective, *J. Geophys. Res.*, 86, 7210-7254.
- Marenco, A., J. C. Medale, and S. Prieur (1990), Study of tropospheric ozone in the tropical belt (Africa, America) from STRATOZ and TROPOZ campaigns, *Atmos. Environ.*, 11, 2823-2834.
- Mari C. H. , G. Cailley, L. Corre, M. Saunois, J. L. Atti' e, V. Thouret, and A. Stohl (2008), Tracing biomass burning plumes from the Southern Hemisphere during the AMMA 2006 wet season experiment, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 3951-3961.
- McCartney E. J. (1976), *Optics of the Atmosphere*, Wiley, New York.
- McClatchey, R. A., R. W. Fenn, J. E. A. Selby, F. E. Volz et J. S. Garing (1972), *Optical properties of the atmosphere* (3rd. ed.), Air Force Cambridge Research Laboratories, Rep. No. AFCRL72-0497, L. G. Hanscom Field.
- Measures, R. M. (1984), *Laser Remote Sensing*, Wiley-Interscience, New York, pp 217.
- Michel C. (2005), L'a erosol de combustion dans une r egion en grande mutation, l'Asie, Th ese, Universit e Paul Sabatier, La boratoire d'A eroologie.
- Mie G. (1908), "Beitrgze zue Optik trber Medien Speziell Kolloidaler Metallungen", *Ann. Phys.* 25, 337-445.
- Minnaert M. G. J. (1993), *Light and Color int the Outdoors*, Springer-Verlag, Berlin.
- Minvielle et al. (2004), Modelling the transport of aerosols during INDOEX 1999 and comparison with experimental data. Part 2 : Continental aerosols and their optical depth, *Atmospheric Environment* 38 (2004) 1823-1837.
- Morioka, H., M. Fujiwara, M. Shiotani, A. M. Thompson, J. C. Witte, S. J. Oltmans (2001), Interannual variations of ozone in the tropical troposphere and tropopause region from the SHADOZ and other ozonesonde data sets, *J. Geophys. Res.*, doi : 10.1029/2010JD016407, submitted.
- Morisette, Jeffrey T., Louis Giglio, Ivan Csizsar, Alberto Setzer, Wilfrid Schroeder, Douglas Morton, Christopher O. Justice (2005), Validation of MODIS Active Fire Detection Products Derived from Two Algorithms, *Earth Interact.*, 9, 1-25.
- Morys et al. (2001), Design, calibration, and performance of MICROTOPS II handheld ozone monitor and Sun photometer, *J. Geophys. Res.*, 106, D13, PAGES 14,573-14,582.
- Mller, D., K. Franke, F. Wagner, D. Althausen, A. Ansmann, and J. Heintzenberg (2001), Vertical profiling of optical and physical particle properties over the tropical Indian Ocean with six-wavelength lidar : 2. Case studies, *J. Geophys. Res.*, 106(D22), 28,577-28,595.
- Mller, D., A. Ansmann, I. Mattis, M. Tesche, U. Wandinger, D. Althausen, and G. Pisani (2007), Aerosol-type-dependent lidar ratios observed with Raman lidar, *J. Geophys. Res.*, 112, D16202, doi :10.1029/2006JD008292.
- Nakajima, T., Tanaka, M. and Yamauchi, T. (1983), Retrieval of the optical properties of the aerosols from aureole and extinction data. *Appl. Opt.*, 22, 2951-2959.
- Nakajima, T., Tonna, G., Rao, R., Boi, P., Kaufman, Y. and Holben, B. (1996), Use of sky brightness measurements from ground for remote sensing of particulate polydispersions. *Appl. Opt.*, 35, 2672-2686.
- Nakajima, T. et al. (2001), A possible correlation between satellite-derived cloud and aerosol microphysical parameters, *Geophys. Res. Lett.*, 28, 1171-1174.
- Nichitiu F., Drummond J.R., Kar J. and Zou J., An extreme CO pollution event over Indonesia measured by the MOPITT instrument (2009), *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 1211-1233.
- Nicolet, M. (1984), On the molecular scattering in the terrestrial atmosphere, *Planet. Space Sci.*, 32, 1467.
- Novakov, T., Hegg, D. A. and Hobbs, P. V. (1997), Airborne measurements of carbonaceous aerosols on the East Coast of the United States, *J. Geophys. Res.*, 102, 30023-30030.
- Ohara T. et al. (2007), An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2020, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 4419-4444.
- Olivier, J., J. Van Aardenne, F. Dentener, V. Pagliari, L. Ganzeveld, and J. Peters (2005), Recent trends in global greenhouse gas emissions : Regional trends 1970-2000 and spatial distribution of key sources in 2000, *Environ. Sci.*, 2(2), 81-99.
- Pak, B. C., et al. (2003), Measurements of biomass burning influences in the troposphere over southeast Australia during the SAFARI 2000 dry season campaign, *J. Geophys. Res.*, 108(D13), 8480, doi :10.1029/2002JD002343.
- Park, M., W. J. Randel, A. Gettelman, S. T. Massie, and J. H. Jiang (2007), Transport above the Asian summer monsoon anticyclone inferred from Aura Microwave Limb Sounder tracers, *J. Geophys. Res.*, 112, D16309, doi :10.1029/2006JD008294.
- Pelon, J. et al. (2001), Characterization of aerosol spatial distribution and optical properties over the Indian Ocean from airborne lidar and radiometry during INDOEX99, *J. Geophys. Res.*, 107, 10.1029/2001JD000402.
- Pietras, C., K. D. Knobelspiesse, R. Frouin, B. Holben, and K. Voss (2002), Calibration of sun photometers and sky radiance sensors. *Ocean Optics Protocols for Satellite Ocean Color Sensor Validation, Revision 3, Vol. 1*, L. Mueller and G. S. Fargion, Eds., NASA Tech. Memo. 20021-210004, NASA Goddard Space Flight Center, Greenbelt, MD, 76-90.
- Piketh S.J., Annegarn H.J. and Tyson P.D. (1999), Lower tropospheric aerosol loadings over South Africa : The relative contribution of aeolian dust, industrial emissions, and biomass burning, *J. Geophys. Res.*, 104, D1, PAGES 1597-1607.
- Randriambelo, T., J. L. Baray, and S. Baldy (2000), The effect of biomass burning, convective venting, and transport on tropospheric O3 over the Indian ocean : Reunion Island field observations, *J. Geophys. Res.*, 105(D9), 11,813-11,832.
- Rajeev K., V. Ramanathan, and J. Meywerk (2000), Regional aerosol distribution and its long-range transport over the Indian Ocean, *J. Geophys. Res.*, 105, D02, 0148-0227, 00.
- Ramanathan et al. (2001), Indian Ocean Experiment : An integrated analysis of the climate forcing and effects of the great Indo-Asian haze, *J. Geophys. Res.*, 106, D22, 371-28, 398.
- Rasch P. J., Collins W. D., and Eaton B. E. (2001), Understanding the Indian Ocean Experiment (INDOEX) aerosol distributions with an aerosol assimilation, *J. Geophys. Res.*, 106, D07, 0148-0227, 01.
- Raut J.C. (2008), Synergie exp erimentale impliquant la mesure lidar pour la caract erisation optique et microphysique de la erosol : applications  a la qualit e de l'air et au transfert radiatif, Th ese de doctorat de l'Universit e Paris VI.
- Ridley, B. A., S. Madronich, R. B. Chatfield, J. G. Walega, R. E. Shetter, M. A. Carroll, and D. D. Montzka (1992), Measurements and model simulations of the photostationary state during the Mauna Loa Observatory Photochemistry Experiment : Ozone production and loss rates, *J. Geophys. Res.*, 97, 10,275-10,388.
- Rinsland, C. P., M. A. H. Smith, P. L. Rinsland, A. Goldman, J. W. Brault, et G. M. Stokes, Ground-based infrared spectroscopic measurements of atmospheric hydrogen cyanide, *J. Geophys. Res.*, 87, 11,119-11,125, 1982.
- Rinsland, C. P., R. E. Boughner, J. C. Larsen, G. M. Stokes, et J. W. Brault, Diurnal variations of atmospheric nitric oxide : Ground-based infrared spectroscopic measurements and their interpretation with time-dependent photochemical model calculations, *J. Geophys. Res.*, 89, 9613-9622, 1984.
- Rodgers, C. D., Retrieval of atmospheric temperature and composition from remote measurements of thermal radiation, *Reviews of Geophysics and Space Physics*, 14, 609-624, 1976.

- Rodgers, C. D., Characterisation and error analysis of profiles retrieved from remote sounding measurements, *J. Geophys. Res.*, 95, 5587-5595, 1990.
- Rodgers, C. D., Inverse methods for atmospheric sounding : Theory and Practice, Series on Atmospheric, Oceanic and Planetary Physics - Vol. 2, World Scientific, Singapore, New Jersey, London, Hong Kong, 238pp., 2000.
- Rosen et al. (2000), Springtime aerosol layers in the free troposphere over Australia : Mildura Aerosol Tropospheric Experiment (MATE 98), *J. Geophys. Res.*, vol. 105, no. d14, pages 17,833-17,842.
- Rosenfeld, D. (1999), TRMM observed first direct evidence of smoke from forest fires inhibiting rainfall, *Geophys. Res. Lett.*, 26, 3105-3108.
- Rosenfeld, D. (2000), Suppression of rain and snow by urban and industrial air pollution, *Science*, 287, 1793-1796.
- Ross, J. L., Hobbs, P. V. and Holben, B. (1998), Radiative characteristics of regional hazes dominated by smoke from biomass burning in Brazil : closure tests and direct radiative forcing, *J. Geophys. Res.*, 103, 31925-31941.
- Royer, P., Chazette, P., Lardier, M., Sauvage, L. (2010), Aerosol content survey by mini N2-Raman lidar : Application to local and long-range transport aerosols, *Atmospheric Environ.*, accepted.
- Russell L. M., D. H. Lenschow, K. K. Laursen, P. B. Krummel, S. T. Siems, A. R. Bandy, D. C. Thornton, T. S. Bate (1998), Bidirectional mixing in an ACE I marine boundary layer overlain by a second turbulent layer, *J. Geophys. Res.*, 103, D13, 411-16,43.
- Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N., (2006), *Atmospheric chemistry and physics : from air pollution to climate change*, 2nd ed., J. Wiley, New York, Chichester.
- Senten, C., et al. (2008), Technical Note : New ground based FTIR measurements at Ile de La Réunion : Observations, error analysis, and comparisons with independent data, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 3483-3508.
- Smirnov A., Y. Villevalde, N.T. O'Neill, A. Royer, and A. Tarussov (1995), Aerosol optical depth over the oceans : Analysis in terms of synoptic air mass types, *J. Geophys. Res.*, 100, D8, 639-16, 650.
- Smirnov, A., B. N. Holben, A. Lyapustin, I. Slutsker, and T. F. Eck (2004), AERONET processing algorithm refinement, paper presented at AERONET Workshop, NASA, El Arenosillo, Spain.
- Smirnov et al. (2009), Maritime Aerosol Network as a component of Aerosol Robotic Network, *J. Geophys. Res.*, VOL. 114, D06204, doi :10.1029/2008JD011257.
- Stevenson, D. S., Dentener, F. J., Schultz, M. G., Ellingsen, K., van Noije, T. P. C., Wild, O., Zeng, G., Amann, M., Atherton, C. S., Bell, N., Bergmann, D. J., Bey, I., Butler, T., Cofala, J., Collins, W. J., Derwent, R. G., Doherty, R. M., Drevet, J., Eskes, H. J., Fiore, A. M., Gauss, M., Haugeustaine, D. A., Horowitz, L. W., Isaksen, I. S. A., Krol, M. C., Lamarque, J.-F., Lawrence, M. G., Montanaro, V., Müller, J.-F., Pitari, G., Prather, M. J., Pyle, J. A., Rast, S., Rodriguez, J. M., Sanderson, M. G., Savage, N. H., Shindell, D. T., Strahan, S. E., Sudo, K., and Szopa, S. (2006) : Multimodel ensemble simulations of presentday and near-future tropospheric ozone, *J. Geophys. Res.*, 111, D08301, doi :10.1029/2005JD006338.
- Stohl, A., Hittenberger, M., and Wotawa, G. : Validation of the Lagrangian particle dispersion model FLEXPART against large scale tracer experiment data, *Atmos. Environ.*, 24, 4245-4264, 1998.
- Stohl, A. et al. (2005), Technical Note : The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2., *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 2461-2474.
- Swap, R. J., H. J. Annegarn, J. T. Suttles, M. D. King, S. Platnick, J. L. Privette, and R. J. Scholes (2003), Africa burning : A thematic analysis of the South African Regional Science Initiative (SAFARI 2000), *J. Geophys. Res.*, 108(D13), 8465, doi :10.1029/2003JD003747.
- Tanré, D. et al. (2001), Climatology of dust aerosol size distribution and optical properties derived from remotely sensed data in the solar spectrum, *J. Geophys. Res.*, 106, 18205-18218.
- Tansey, K., et al. (2004), Vegetation burning in the year 2000 : Global burned area estimates from SPOT VEGETATION data, *J. Geophys. Res.*, 109, D14S03, doi :10.1029/2003JD003598.
- Taupin, F. G., M. Bessafi, S. Baldy, and P. J. Bremaud (1999), Tropospheric O3 above the southwestern Indian Ocean is strongly linked to dynamical conditions prevailing in the tropics, *J. Geophys. Res.*, 104(D7), 8057-8066.
- Thompson, A. M. (1992), The Oxidizing Capacity of the Earths Atmosphere - Probable Past and Future Changes, *Science*, 256, 1157- 1165.
- Thouret, V., Saunio, M., Minga, A., Mariscal, A., Sauvage, B., Solete, A., Agbangla, D., Nédélec, P., Mari, C., Reeves, C. E., and Schlager, H. : An overview of two years of ozone radio soundings over Cotonou as part of AMMA, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 6157-6174, doi :10.5194/acp-9-6157-2009, 2009.
- Twomey, S. A., Piepgrass, M. and Wolfe, T. L. (1984), An assessment of the impact of pollution on the global albedo. *Tellus* 36B, 356-366.
- Twomey, S. (1997), The influence of pollution on the short-wave albedo of clouds, *J. Atmos. Sci.*, 34, 1149- 1152.
- Van der Werf, G. R., Randerson, J. T., Giglio, L., Collatz, G. J., and Kasibhatla, P. S. : Interannual variability in global biomass burning emission from 1997 to 2004 (2006), *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3423-3441.
- Van Loon and Rogers (1983), Interannual variations in the half-yearly cycle of pressure gradients and zonal wind at sea level on the Southern Hemisphere, *Tellus*, 36A, 7686.
- Vigouroux, C., et al. (2009), Ground-based FTIR and MAX-DOAS observations of formaldehyde at Réunion Island and comparisons with satellite and model data, *Atm. Chem. Phys.*, 9, 15,891-15,957.
- Villiers, M. (2004), D'o vient le vent ?, *Science et Vie* n1036.
- Welton, E. J., K. J. Voss, P. K. Quinn, P. J. Flatau, K. Markowicz, J. R. Campbell, J. D. Spinhirne, H. R. Gordon, and J. E. Johnson (2002), Measurements of aerosol vertical profiles and optical properties during INDOEX 1999 using micropulse lidars, *J. Geophys. Res.*, 107, 8019, doi :10.1029/2000JD000038.
- White R. (1990), *Chromatography/Fourier transform infrared spectroscopy and its applications*, M. Dekker.
- World Health Organization (WHO) (1987), *Air Quality Guidelines for Europe*, WHO Reg. Publ., Eur. Ser. 23, Copenhagen, Denmark, 1987.
- WMO (1999), *Introduction to World Meteorological Organization/United Nations Environment Programme report, Scientific Assessment of Ozone Depletion : 1998* (WMO Global Ozone Research and Monitoring Project-Report No. 44, Geneva, 1999).
- Wolfe W.L. (2008), "Infrared radiation," in *AccessScience*, McGraw-Hill Companies, 2008, <http://www.accessscience.com>.
- Xianglei Huang, Yuk Ling Yung (2004) : A Common Misunderstanding about the Voigt Line Profile. *J. Atmos. Sci.*, 61, 1630-1632. doi : 10.1175/1520-0469(2004)061
- Zachariasse, M., P. van Velthoven, H. Smit, J. Lelieveld, T. Mandal, and H. Kelder (2000), Influence of stratospheric ?troposphere exchange on tropospheric ozone over the tropical Indian Ocean during the winter monsoon, *J. Geophys. Res.*, 105(D12), 15,403-15,416.

8. RÉFÉRENCES

9

**Annexe A : Article Duflot et al.
(2010)**

Analysis of the origin of the distribution of CO in the subtropical southern Indian Ocean in 2007

V. Dufлот,¹ B. Dils,² J. L. Baray,¹ M. De Mazière,² J. L. Attié,^{3,4} G. Vanhaelewyn,² C. Senten,² C. Vigouroux,² G. Clain,¹ and R. Delmas¹

Received 2 February 2010; revised 19 July 2010; accepted 28 July 2010; published 17 November 2010.

[1] We show carbon monoxide (CO) distributions at different vertical levels over the subtropical southern Indian Ocean, analyzing an observation campaign using Fourier transform infrared (FTIR) solar absorption spectrometry performed in 2007 at Reunion Island (21°S, 55°E). The CO pollution levels detected by the FTIR measurements during the campaign show a doubling of the CO total columns during the Southern Hemisphere biomass burning season. Using correlative data from the Measurement of Pollution in the Troposphere instrument and back trajectories analyses, we show that the potential primary sources for CO throughout the troposphere in 2007 are southern Africa (June–August) and South America (September–October). A secondary potential contribution from Southeast Asia and Indonesia-Malaysia was identified in the upper troposphere, especially in July and September. We examine the relation between the Asian monsoon anticyclone seasonal cycle and this result. We also investigate the relative contribution of different areas across the globe to the CO concentration in the subtropical southern Indian Ocean in 2007 using backward simulations combining the Lagrangian model FLEXPART 6.2, the Global Fire Emissions Database (GFEDv2.1) and the Emission Database for Global Atmospheric Research (EDGARv3.2-FT2000). We confirm the predominance of the African and South American contributions in the CO concentration in the southern subtropical Indian Ocean below 11 km. We show that CO transported from Australia makes only a small contribution to the total CO concentration observed over Reunion Island, and that the long-range transport of CO coming from Southeast Asia and Indonesia-Malaysia is important, especially from June until September in the upper troposphere.

Citation: Dufлот, V., B. Dils, J. L. Baray, M. De Mazière, J. L. Attié, G. Vanhaelewyn, C. Senten, C. Vigouroux, G. Clain, and R. Delmas (2010), Analysis of the origin of the distribution of CO in the subtropical southern Indian Ocean in 2007, *J. Geophys. Res.*, 115, D22106, doi:10.1029/2010JD013994.

1. Introduction

[2] Carbon monoxide (CO) is an atmospheric pollutant produced by oxidation of methane and other biogenic hydrocarbons, fossil fuel combustion, biofuel use, and biomass burning (BB) [Galanter *et al.*, 2000; Intergovernmental Panel on Climate Change, 2001], the latter two being the major sources in tropical areas. CO is a precursor of ozone (O₃) [Daniel and Solomon, 1998], especially in the tropical lower troposphere because of an abundance of water vapor (H₂O)

and the strong solar flux [Ridley *et al.*, 1992], and can affect the oxidizing capacity of the atmosphere by reacting with the hydroxyl (OH) radical [Logan *et al.*, 1981; Kanakidou and Crutzen, 1999]. Aside from its chemical properties, CO is an interesting tracer for studying atmospheric transport: having a lifetime of weeks to a few months, it is an effective indicator of how the large-scale distribution of atmospheric pollutants is influenced by long-range transport of biomass and fossil fuel burning.

[3] At Reunion Island in the subtropical southern Indian Ocean (21°S, 55°E), the influence of BB on the tropical tropospheric composition and the associated transport schemes has been mainly determined by analyzing O₃ measurements [Randriambelo *et al.*, 2000; Clain *et al.*, 2009]. However, it is difficult in case of O₃ to distinguish between the contributions of anthropogenic sources and the contributions of stratosphere-troposphere exchange which can be induced, in this region, by the subtropical jet stream [Baray *et al.*, 1998] and by the tropical convection [Zachariasse *et al.*, 2000; Leclair De Bellevue *et al.*, 2006]. Since CO is mainly produced in the lower troposphere, investigating its distribution in the

¹Laboratoire de l'Atmosphère et des Cyclones, Université de la Réunion, UMR CNRS-Météo-France 8105, Saint-Denis de la Réunion, France.

²Institut d'Aéronomie Spatiale de Belgique, Brussels, Belgium.

³Laboratoire d'Aérodynamique, UMR 5560, Université de Toulouse, CNRS/UPS, Toulouse, France.

⁴CNRM-GAME Météo-France and CNRS URA 1357, Toulouse, France.

subtropical southern Indian Ocean increases our understanding of pollutant transport phenomena. *Bremer et al.* [2004] pointed out that on Reunion Island, O_3 columns are highest in September–October, in phase with the CO peak occurring in this period because of BB in South Africa and Madagascar. High concentrations of O_3 precursors from these fires are vented into the upper troposphere by deep convection and are subsequently advected into the Indian Ocean region by westerly winds. The 2000 Southern African Regional Science Initiative (SAFARI 2000 [*Annegarn et al.*, 2002; *McMillan et al.*, 2003; *Swap et al.*, 2003]) indicated that low-latitude transport of biomass burning pollution from the African continent to the Indian Ocean takes place along in the “river of smoke” exiting southern Africa. The biomass burning pollution from Africa could be traced as far as southeast Australia [*Pak et al.*, 2003] and likely contributed to the enhanced CO levels observed by the Measurement of Pollution in the Troposphere (MOPITT) instrument at Reunion Island [*Bremer et al.*, 2004]. Moreover, *Edwards et al.* [2006a] have shown that the Southern Hemisphere (SH) transport is governed to a large extent by the three anticyclonic circulations over the Atlantic Ocean, the African continent, and the Indian Ocean that are dominant features during austral spring. They also pointed out that southern African BB emissions mostly find their way into the Indian Ocean and follow the five transportation modes identified by *Garstang et al.* [1996]. In addition, a recent study based on CO observations by the Aura Microwave Limb Sounder (MLS), airborne Measurement of Ozone and Water Vapor by Airbus In-Service Aircraft (MOZAIC) observations, and the chemistry transport model Modélisation de la Chimie Atmosphérique Grande Echelle (MOCAGE) has shown episodes of transport of CO in the Northern Hemisphere (NH) coming from eastern Asia and reaching northern Africa’s upper troposphere during the Asian summer monsoon (ASM) [*Barret et al.*, 2008]. Using a chemistry general circulation model and Indian Ocean Experiment (INDOEX) data obtained during February and March 1999, *De Laat et al.* [2001] report that CO from India and Southeast Asia is advected in the marine boundary layer toward the Intertropical Convergence Zone (ITCZ), where it is lifted into the free troposphere by convection. At high tropospheric altitudes, CO spreads out, with most of it being transported back to the NH, and only a small part ends up getting mixed into the SH.

[4] These studies have documented the CO distribution and sources in the Indian Ocean, but the limited vertical resolution of the satellite retrievals and the few in situ measurement stations in this area are inadequate to yield a more detailed CO vertical distribution. Furthermore, some evidence of the possibility of transport of Southeast Asian CO far from the emission sources into the subtropical southern Indian Ocean has been put forward during late austral summer [*De Laat et al.*, 2001], but their occurrence during austral winter and their impact on the contaminated area still have to be investigated.

[5] Being located in the subtropical southern Indian Ocean at around 800 km east of Madagascar, Reunion Island is a good location to study the effect of long-range transport on the southern Indian Ocean atmospheric composition. Two measurement campaigns with Fourier transform infrared (FTIR) solar absorption spectrometry have been performed at Reunion Island in 2002 and 2004 covering the end of the

SH BB season (October 2002 and August to October 2004). A third FTIR campaign was organized from May to October 2007 to obtain measurements before and during the whole SH BB season. Using the acquired data, *Senten et al.* [2008] and *Vigouroux et al.* [2009] were able to detect the seasonal variation of CO and HCHO in the SH BB season, as well as the impact of particular BB events in Africa and Madagascar on the atmospheric composition above Reunion Island.

[6] The objectives of this paper are to document the time evolution of the vertical distribution of the abundance of CO above Reunion Island in 2007, to determine the sources which govern this time evolution, and to examine if air masses coming from Southeast Asia can be identified and how they affect the CO distribution in the subtropical southern Indian Ocean area. In this work, we exploit the FTIR measurements of CO from the 2007 campaign in combination with global fire pixels from the Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) and MOPITT remote sensing data for detecting fires and monitoring CO concentrations, respectively. We have also performed a set of back trajectory simulations to investigate the origin of the air masses passing over Reunion Island and a set of backward simulations combining the Lagrangian model FLEXPART, the Global Fire Emissions Database (GFEDv2.1), and the Emission Database for Global Atmospheric Research (EDGARv3.2-FT2000) to evaluate the relative contribution from different emission areas.

[7] Section 2 describes the FTIR experiments and the CO retrieval method, the MOPITT and MODIS data as well as the back trajectory calculation software, the FLEXPART model and the GFED and EDGAR databases. In section 3, we show the results of the FTIR CO retrievals and MOPITT measurements in order to describe the evolution of the CO abundance and vertical distribution in the subtropical southern Indian Ocean area. The dynamical processes that govern this CO distribution are discussed in section 4, and the relative contributions of different areas across the globe to CO variations observed at Reunion Island in 2007 are detailed in section 5.

2. Experiments and Models

2.1. FTIR Campaigns and Retrievals of CO Vertical Profiles

[8] The solar absorption FTIR experiments were performed using a Bruker 120M interferometer. The instrument was installed in a temperature-controlled container placed on the roof of a building at the University of Reunion Island campus at Saint-Denis (50 m above sea level, 20°54’S and 55°29’E). Solar absorption measurements were performed from 8 August until 25 October 2004 and from 24 May until 15 October 2007, whenever the sky was clear. The spectra were recorded between 600 and 4300 cm^{-1} (2300 to 17000 nm) with a maximal spectral resolution of 0.0036 cm^{-1} (0.0143 nm) (maximum optical difference = 250 cm).

[9] The FTIR experiment configuration and technical features for the 2004 campaign are described in *Senten et al.* [2008]; the FTIR 2007 campaign configuration was almost identical.

[10] CO total column amounts and volume mixing ratio (vmr) profiles were retrieved using the Spectral Least Squares Fitting (SFIT-2) algorithm using the optimal estimation method developed by *Rodgers* [2000]. A detailed description

Table 1. Summary of the Retrieval Characteristics for CO for the FTIR Campaigns at Reunion Island^a

Molecule	CO
Microwindows (cm ⁻¹)	2057.70–2057.91
	2069.55–2069.72
	2157.40–2159.20
	2140.40–2141.40
	2165.37–2165.85
	2168.84–2169.02
Variability (%)	20%
SNR	150
HWHM (km)	4
Spectral resolution (cm ⁻¹)	0.0036
Interfering species	O ₃ , OCS, CO ₂ , N ₂ O, H ₂ O, solar CO
DOFS mean	2.96 (2004); 3.06 (2007)

^aVariability represents the diagonal elements of the a priori profile's covariance matrix (Sa) and HWHM the interlayer correlation length in Sa. The first, fifth, and sixth rows list the spectral microwindows that are fitted simultaneously, the associated spectral resolution, and the main interfering species. SNR is the ad hoc signal-to-noise ratio adopted in the retrievals. The last row provides the mean DOFS achieved in 2004 and 2007.

of the SFIT-2 program can be found in *Senten et al.* [2008] and references therein.

[11] In the current work, the retrieval strategy for CO was slightly improved compared to the one described in *Senten et al.* [2008] in order to increase the degrees of freedom for signal (DOFS) [Rodgers, 2000] and improve the retrieval error budget. Table 1 lists the most important retrieval parameters: the microwindows in which the spectra were analyzed and the interfering molecules which were fitted simultaneously by profile scaling as well as the spectral resolution and effective signal-to-noise ratio (SNR). Also listed are the diagonal elements and the half-widths at half-maximum defining the Gaussian interlayer correlation length of the a priori profile's covariance matrix adopted in the retrieval. The a priori profile is the same as in *Senten et al.* [2008]. The achieved mean DOFS are 2.96 and 3.06 for the 2004 and 2007 campaigns, respectively, indicating that there are approximately three independent pieces of information contained in the measurement. In order to exploit the FTIR profiles, it is necessary to determine to which extent the retrievals in each altitude layer result from the measurement, meaning not from the a priori profile, and are uncorrelated to the other layers. The eigenvectors and associated eigenvalues of the averaging kernel matrix provide this information: the structures in the profile corresponding to these eigenvectors can be thought of as being measured independently [Rodgers, 2000]. In Figure 1a we show the three most representative eigenvectors of the averaging kernels matrix for the 2004 and 2007 campaigns, associated to the three largest eigenvalues. The vectors' shapes depict the CO profile's independent layers that can be considered: 0–5 km, 5–11 km, and 11–17 km. Figure 1b presents the averaging kernels corresponding to each of these three layers. The FTIR measurements are especially sensitive to the 0–3 km, 7–11 km, and 13–17 km layers. Figure 1c shows the so-called sensitivity curve, which, at each altitude, corresponds to the sum of the averaging kernel elements for that altitude. We can see in Figure 1 that measurements contribute more than 90% to the retrievals up to about 17 km. Hence, in the remainder of this paper information from FTIR will only be taken into account up to 17 km.

[12] Table 2 summarizes the evaluation of the error budget for the 2007 FTIR campaign data. Evaluation of the error budget for the 2004 FTIR campaign data as well as the description of each contribution and details about their calculation can be found in *Senten et al.* [2008].

2.2. Data and Back Trajectory Models

2.2.1. MODIS Fire Detection

[13] The MODIS instrument on board the Terra and Aqua satellites (<http://modis.gsfc.nasa.gov/>) enables active fire detection based on the high infrared emissions of the fires [Giglio et al., 2003]. This information is available via the Fire Information for Resource Management System (FIRMS) site developed by the University of Maryland (<http://maps.geog.umd.edu/firms/>). FIRMS delivers active fire spots using the MODIS active fire locations processed by the MODIS Rapid Response System using the standard MODIS MOD14 Fire and Thermal Anomalies product. Each active fire location represents the center of a 1 km pixel that is flagged by the algorithm as containing a fire within the pixel.

2.2.2. MOPITT

[14] MOPITT (<http://www.acd.ucar.edu/mopitt/>) [Drummond and Mand, 1996] is a nadir-pointing instrument on NASA's EOS Terra spacecraft that has been operational since March 2000, measuring tropospheric CO on the global scale. The ground pixel size (or footprint) is 22 × 22 km, and the vertical profiles are retrieved on seven pressure levels (surface, 850, 700, 500, 350, 250, and 150 hPa). MOPITT CO retrievals are based on the maximum likelihood method, which uses a statistical combination of the measurements and a priori information [Rodgers, 2000]. In this study, we consider MOPITT CO (version 3) daytime retrievals which have a better DOFS than nighttime retrievals [Deeter et al., 2004a]. Furthermore, only retrievals with less than 50% a priori contamination are exploited to ensure a consistent and good quality of the data set.

[15] MOPITT retrievals provide average CO values in two relatively broad layers of the atmosphere: in the lower troposphere from about 850 to 500 hPa, and in the upper troposphere from about 300 to 200 hPa [Deeter et al., 2004a; Kar et al., 2004]. Detailed reports on validation exercises can be found in *Deeter et al.* [2004b] and *Emmons et al.* [2004, 2007, 2009]. Figure 2 shows the 700 and 250 hPa MOPITT-averaging kernels in 2007 over a surface of 300 km diameter around Reunion Island. The averaging kernels have been grid normalized with respect to the considerations stated in *Deeter et al.* [2007]. Because of the size of Reunion Island being ~72 km across, the MOPITT retrievals over Reunion Island are mainly retrievals over sea which reduces the MOPITT sensitivity to the low troposphere [Deeter et al., 2007]. One can see on Figure 2 that the 700 hPa MOPITT retrievals are mainly impacted by the CO concentration in the ~2–8 km (~850–350 hPa) layer while the 250 hPa retrievals are representative of the CO concentration in the ~8–13 km (~350–150 hPa) layer.

2.2.3. FLEXPART, GFED, and EDGAR

[16] FLEXPART version 6.2 is a Lagrangian particle dispersion model [Stohl et al., 1998, 2005], which simulates the transport and dispersion of linear tracers and treats advection and turbulent diffusion by calculating the trajectories for a multitude of particles. Stochastic fluctuations, obtained by solving Langevin equations [Stohl and Thompson, 1999], are

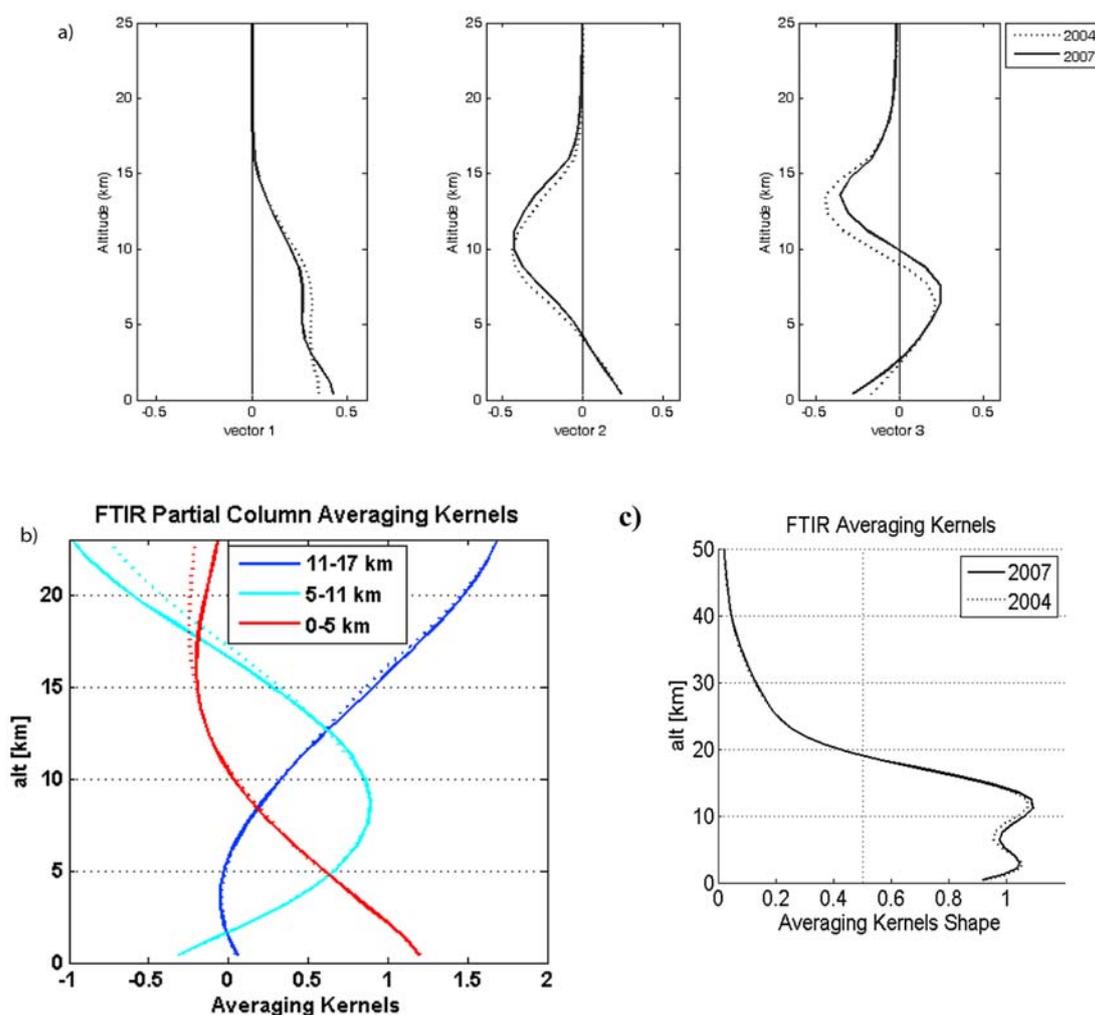


Figure 1. (a) FTIR eigenvectors of the 2004 (dotted lines) and 2007 (solid lines) averaging kernels matrices respectively associated to the eigenvalues 0.99, 0.98, and 0.78 (2004) and 0.99, 0.97, and 0.71 (2007). For both campaigns, the first eigenvector gives the 0–5 km independent layer while vectors 2 and 3 give the 5–11 km and 11–17 km independent layers. (b) FTIR CO partial columns' averaging kernels (in $\text{mol cm}^{-2}/\text{mol cm}^{-2}$ dimensionless units) for the 2004 (dotted lines) and 2007 (solid lines) campaigns. (c) FTIR sensitivity curve for the 2004 (dotted lines) and 2007 (solid lines) campaigns.

superimposed on the grid-scale winds from the European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF) data set to represent transport by turbulent eddies. The FLEXPART model was driven by global wind field data from ECMWF, with a spatial resolution of $1^\circ \times 1^\circ$ and a temporal

resolution of 3 h. The back trajectories calculation period has been set to 50 days. This period might be too long for lower tropical CO lifetimes, but it is adequate for the higher troposphere where lifetimes are longer.

Table 2. Summary of the Error Budget Evaluations (%) for the Total and Partial Columns From the 2007 FTIR Campaign Data^a

Columns (km)	Temperature Error	Interfering Species Error	FM Parameters Error	Measurement Error	Smoothing Error	Solar Angle Error	Total Random Error	Line Intensity Error	Air Broadening Error	Total Systematic Error
0–5	2.26	0.31	1.03	0.73	3.81	0.36	4.63	4.29	3.55	5.57
5–11	0.86	0.43	1.62	1.25	5.18	0.32	5.66	5.94	4.23	7.29
11–17	0.45	0.50	1.54	1.79	4.97	0.37	5.55	11.78	3.79	12.37
17–100	1.35	1.74	0.44	1.71	6.51	0.16	7.09	8.26	1.50	8.40
0–100	1.10	0.06	0.27	0.15	0.11	0.34	1.20	2.40	0.42	2.44

^aThe listed error contributions are (from left to right): temperature error, interfering species error, forward model parameters error, measurement noise error, smoothing error, solar zenith angle error, total random error, line intensity error, air broadening error, and total systematic error.

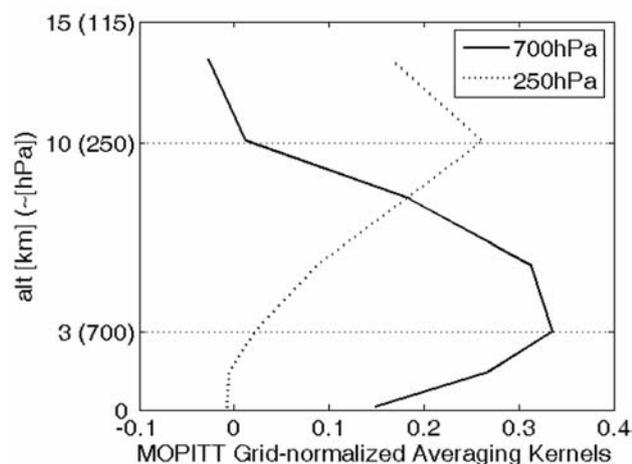


Figure 2. Grid-normalized MOPITT averaging kernels (in vmr/vmr dimensionless units) over Reunion Island for the 700 hPa (solid line) and 250 hPa (dotted line) retrieval levels.

[17] GFEDv2.1 [van der Werf *et al.*, 2006] consists of 8-day time step $1^\circ \times 1^\circ$ degree gridded fire emissions of CO. The data set was compiled using satellite data and the Carnegie-Ames-Stanford approach (CASA) biogeochemical model.

[18] EDGAR stores global emission inventories of greenhouse gases and air pollutants from anthropogenic sources. We used in this paper anthropogenic CO emissions from EDGARv3.2-FT2000 (year 2000) [Olivier *et al.*, 2005]. The EDGARv3.2-FT2000 data is available on a $1^\circ \times 1^\circ$ grid.

2.2.4. LACYTRAJ

[19] LACYTRAJ is a kinematic back trajectory code using ECMWF wind fields. This code is used to determine the sources of the air masses arriving above Reunion Island. The back trajectories presented in this paper were calculated using a 15 min time step. The start grid is defined with 0.5° latitude and longitude steps around Reunion Island, and the maximum period that has been used for calculation of the back trajectories is 10 days. This duration is long enough to reach areas as far as South America. Details on this code can be found in Clain *et al.* [2010].

3. Observed Total Columns and Vertical Distributions of CO in the Subtropical Southern Indian Ocean

3.1. Ground-Based FTIR Observations at Reunion Island

[20] The time series of CO total columns retrieved from FTIR solar absorption measurements at Reunion Island during the 2007 campaign are shown in Figure 3; 2004 campaign data are included in Figure 3 for comparison. During the 2007 campaign, a stable CO background concentration around $1.5 \pm 0.07 \times 10^{18}$ molecules/cm² is observed until the beginning of August. Later, a significant increase in the total columns occurs during both campaigns, with peaks in October corresponding to twice the CO background concentration ($\sim 3 \pm 0.15 \times 10^{18}$ molecules/cm²) measured during June to

mid-August. The major sink for CO is reaction with OH radicals. High UV and humidity promote the formation of OH radicals from the photolysis of O₃ [Logan *et al.*, 1981; Thompson, 1992] during tropical summer. The CO lifetime is then longer in winter, and CO could accumulate. However, this cannot explain the observed CO increase: the period studied here (June to October 2007) is an austral winter time period, so the CO lifetime has already been lengthened. The observed CO increase coincides with the known SH BB seasonality: BB emissions occur mainly from August to October [Marenco *et al.*, 1990; Cooke *et al.*, 1996; Generoso *et al.*, 2003; Edwards *et al.*, 2006b]. Figure 4 shows the BB areas from June to October 2007 as detected by MODIS. During the campaign period, the most important fire areas are located in the SH (South America, especially Brazil; southern Africa; and Madagascar). Note that only few fires occur in Southeast Asia during this period, although BB activity is noteworthy in Indonesia and Malaysia, especially in September. Figure 5 shows the variability of the 2007 CO partial columns corresponding to the three independent layers identified in section 2.1 (0–5 km, 5–11 km, and 11–17 km). The CO concentration increase, occurring from August as well as some peak increase occurring during September and October, is visible in the two lowest partial columns. Table 3 gives the CO concentration increase between the CO background value (calculated as the mean CO concentration from the beginning of the campaign to mid-July) and the mean CO concentration value at the end of the campaign (calculated as the mean CO concentration during the last 10 days of the campaign). Although CO is slightly more abundant in the 0–5 km layer at the beginning of the campaign, Table 3 shows that the 5–11 km layer is likely to present the most important CO increase ($158.21\% \pm 65.77\%$). This CO increase seen in Figure 5 and mainly occurring above 5 km might be explained by the trade winds inversion occurring around 4 km above Reunion Island with easterly trade winds below 4 km and westerly flow above [Taupin *et al.*, 1999]. A more recent analysis based on GPS measurements over Reunion Island showed that the altitude of this inversion of wind direction depends on the season and varies between 3 km in austral winter and 5 km in austral summer [Clain *et al.*, 2009]. The westerly flow above the inversion enables transport of

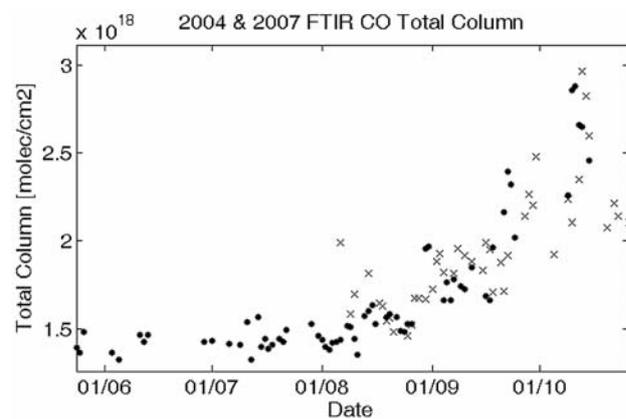


Figure 3. CO total columns (in molecules/cm²) retrieved from the FTIR measurements during the 2004 (gray crosses) and 2007 (black dots) campaigns.

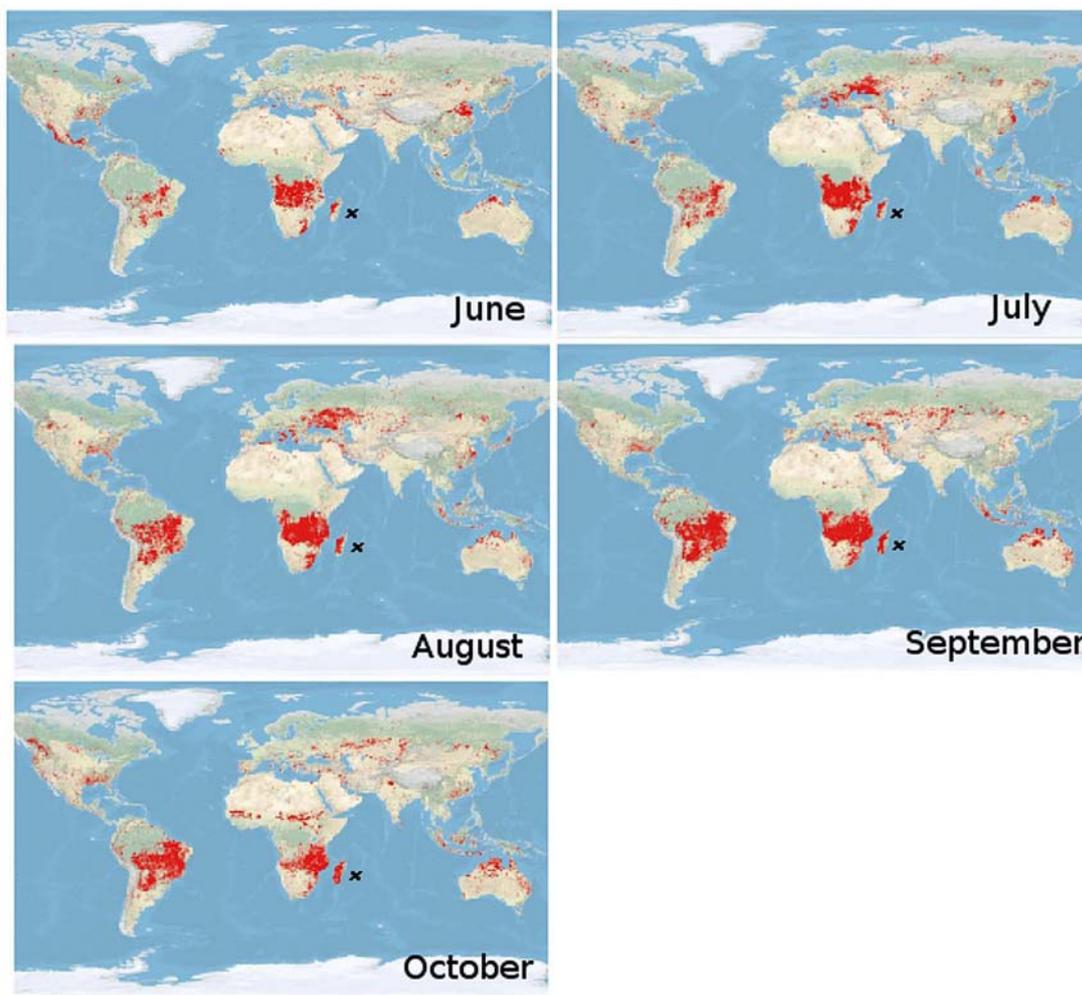


Figure 4. Active fires, shown in red, are detected using MODIS data on board the Terra satellite for June, July, August, September, and October 2007. Source: MODIS Rapid Response (<http://rapidfire.sci.gsfc.nasa.gov/>), Fire Information for Resource Management System (FIRMS) (<http://maps.geog.umd.edu/>). Black crosses locate Reunion Island.

air masses coming from Africa and Madagascar which are enhanced in CO compared to easterly flow below the trade wind inversion.

[21] The CO partial column value in the 0–5 km layer at the beginning of the 2007 measurement campaign is relatively high ($5.51 \pm 0.56 \times 10^{17}$ molecules cm^{-2} which represents 67.78 ± 6.91 ppbv as a vmr value averaged over the whole partial column). The local air quality monitoring agency (Observatoire Réunionnais de l’Air (ORA), <http://www.atmo-reunion.net/>) indicates a mean ground CO vmr in Saint-Denis of around 110 ppbv. This CO concentration is measured close to the ground and is therefore more impacted by the local traffic pollution than the mean CO vmr given by the FTIR which is for the whole 0–5 km layer. The CO enhancement then visible in the 0–5 km layer (reaching by the end of the campaign $9.08 \pm 0.93 \times 10^{17}$ molecules cm^{-2} which represents 125.72 ± 12.82 ppbv as a vmr value averaged over the whole partial column) could come from dynamic exchanges between the low-tropospheric (0–5 km)

and the midtropospheric (5–11 km) layers. This phenomenon has already been explained in the case of O_3 at Reunion Island [*Clain et al.*, 2009].

3.2. MOPITT Observations

[22] In order to analyze the variation in vertical CO distribution during the SH BB season, Figure 6 provides the monthly mean ratios between the 250 and 700 hPa MOPITT CO measurements from June to October 2007. A ratio value greater than 1 (smaller than 1) corresponds to more CO at the 250 hPa retrieval level than at the 700 hPa retrieval level (more CO at the 700 hPa retrieval level than at the 250 hPa retrieval level). No data are shown for cloudy pixels. For July, August, September, and October, the ratio value is small (~ 0.5) close to the continental source areas (southern Africa and South America). Ratio values around 0.7 can be observed in the known air transport pathway from South America and southern Africa to Australia (southern Atlantic Ocean and subtropical southern Indian Ocean) during the

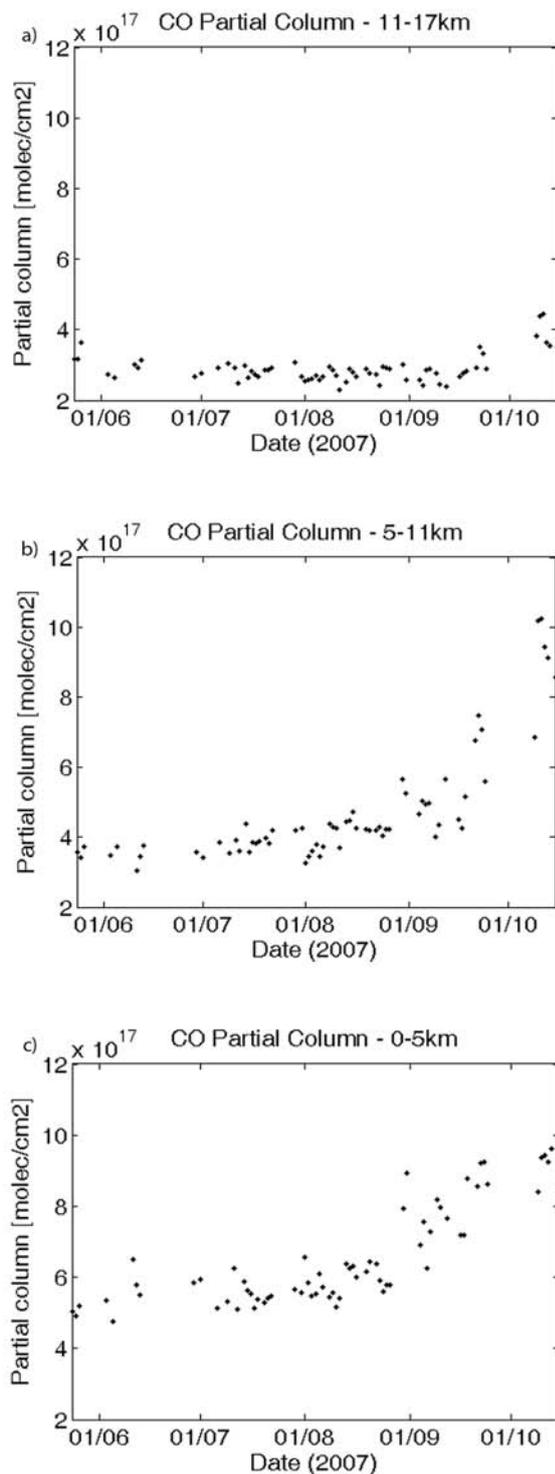


Figure 5. FTIR CO partial column's variability during the 2007 FTIR measurement campaign: (a) 11–17 km, (b) 5–11 km, and (c) 0–5 km.

whole period of study [Edwards *et al.*, 2006a]. While the BB activity increases, the ratio values in this long-range transport of CO over sea decrease from 0.8 in June and July to 0.6 in August, September, and October. The same

observation can be made around Reunion Island, where the ratio values decrease from 0.9 to 0.7 during the period. Taking into consideration the MOPITT averaging kernels (Figure 2), it shows that CO-enriched air masses in this intercontinental transport pathway travel preferentially in the 700 hPa retrieval level, meaning in the ~2–8 km layer. Over the equatorial southern Indian Ocean, the 250/700 ratio values are much greater than 1 (~1.4) during the whole period of study and especially in June, July, and August, probably indicative for lifting boundary layer CO to high altitudes by deep convection over emission regions and subsequent transport. These results are discussed in the next section.

4. Origin of the Air Masses Passing Over Reunion Island

[23] The aim of this section is to identify the dynamical processes that govern the air masses transport to the Reunion Island areas and to identify the main potential source areas for CO-enriched air masses in the Reunion Island zone. The focus in this section is on the 2007 FTIR measurement campaign period (June to October). Figure 7 shows the areas defined and used for the following analysis: Area SAM stands for South America, area AFM stands for Africa and Madagascar, area SEA stands for Southeast Asia, area I-M stands for Indonesia and Malaysia, and area AUS stands for Australia. We calculated retroplumes using the Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2 [Stohl *et al.*, 1998, 2005]. These calculations provide information on the origin of the air masses and give an estimate on the amount of time the air masses have spent in proximity to the Earth's surface. Knowledge of this residence time helps in identifying the potential contribution of each area to the CO concentration over Reunion Island. For our calculations we released 200,000 particles into each of the three layers identified in section 2.1 and corresponding to the FTIR partial columns (0–5 km, 5–11 km, and 11–17 km) over Reunion Island for each measurement day of the studied period (1 June to 31 October 2007). Each release lasted for 602 seconds, and each CO retroplume was traced back in time for 50 days. Figure 8 shows the geographical distribution of the mean residence time near the surface (<1000 m) in seconds of particles ending over Reunion Island in the 0–5 km, 5–11 km, and 11–7 km layers. Residence times are averaged per surface unit and per day. For the 0–5 km layer, the main potential contributive areas are areas SAM and AFM all along the period. The AFM contribution comes mainly from Madagascar and southern Africa. Also clearly visible is the roundabout pathway to the SAM region, where air masses leaving SAM gain altitude near Antarctica, descend again in the southern Indian Ocean where they ultimately arrive at Reunion from the southeast. For the 5–11 km layer, although potential contribution from areas SEA and I-M gain importance, areas SAM and AFM remain the main potential contributive areas for the whole period. This time AFM gains dominance over SAM and its main contributing areas shift to central Africa. There is no longer a clear indication of an arctic pathway to SAM, and indeed the LACYTRAJ simulations (see section 5) confirm that SAM contributions stem from more direct west to east pathways. For the 11–17 km layer, potential contributions of areas SEA and I-M clearly become prominent from June to September. Note also that

Table 3. CO Concentration Increase Between the CO Background Value and the Mean CO Concentration Value at the End of the Campaign for Each Partial Column During the 2007 Ground-Based FTIR Campaign^a

Altitude Range (km)	CO Concentration (10^{17} molecules/cm ²)		CO Increase (%)
	Background	End of Campaign	
11–17	2.93 ± 0.53	3.89 ± 0.70	41.61 ± 49.17
5–11	3.63 ± 0.47	9.06 ± 1.17	158.21 ± 65.77
0–5	5.51 ± 0.56	9.08 ± 0.93	68.40 ± 34.00

^aCO background value calculated as the mean CO concentration from the beginning of the campaign to mid-July. Mean CO concentration value at the end of the campaign calculated as the mean CO concentration during the ten last days of the campaign.

the SEA and I-M air masses reaching the 11–17 km area have a strong residence time signature near the surface in the northern Indian Ocean, indicating that they get pushed upward by the southeastern lower-tropospheric (mostly SAM) and western (mostly AFM) flows into the upper tro-

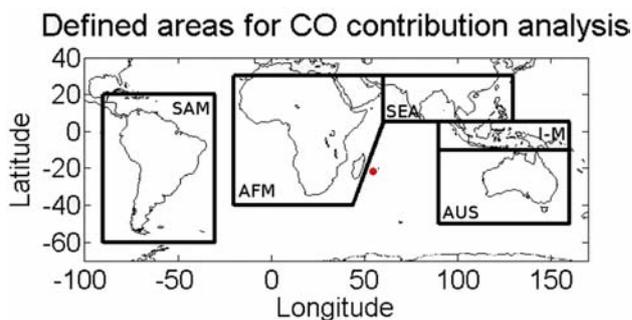


Figure 7. Areas defined and used for the CO contribution analysis. The measurement location (Reunion Island) is shown by the red dot.

posphere. This process takes place relatively close to Reunion Island.

[24] Figure 9 shows the quantitative estimation of these residence times by area for each month and for each of the

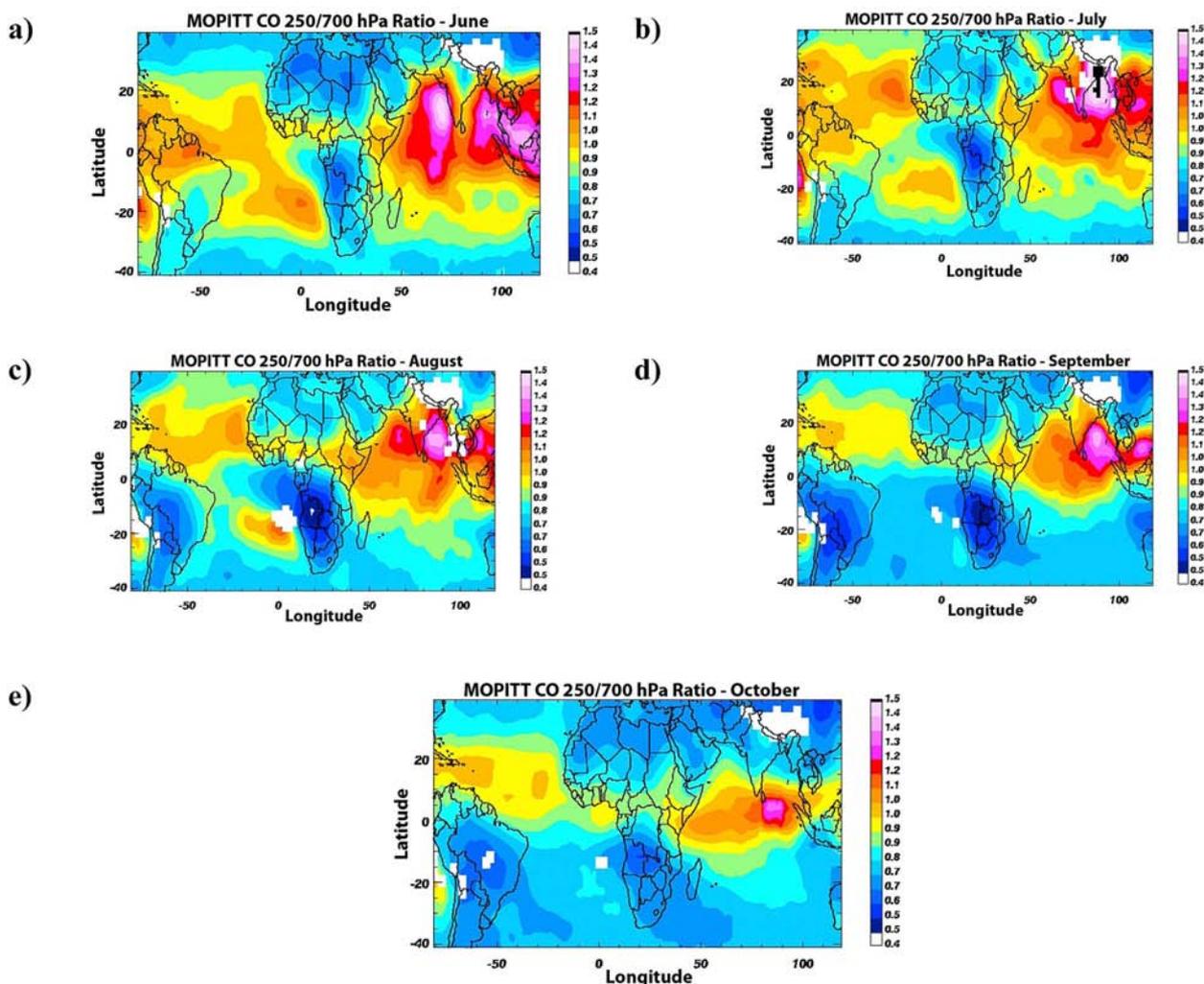


Figure 6. Monthly mean CO concentration ratios between 250 hPa and 700 hPa calculated from MOPITT CO retrievals for (a) June, (b) July, (c) August, (d) September, and (e) October 2007.

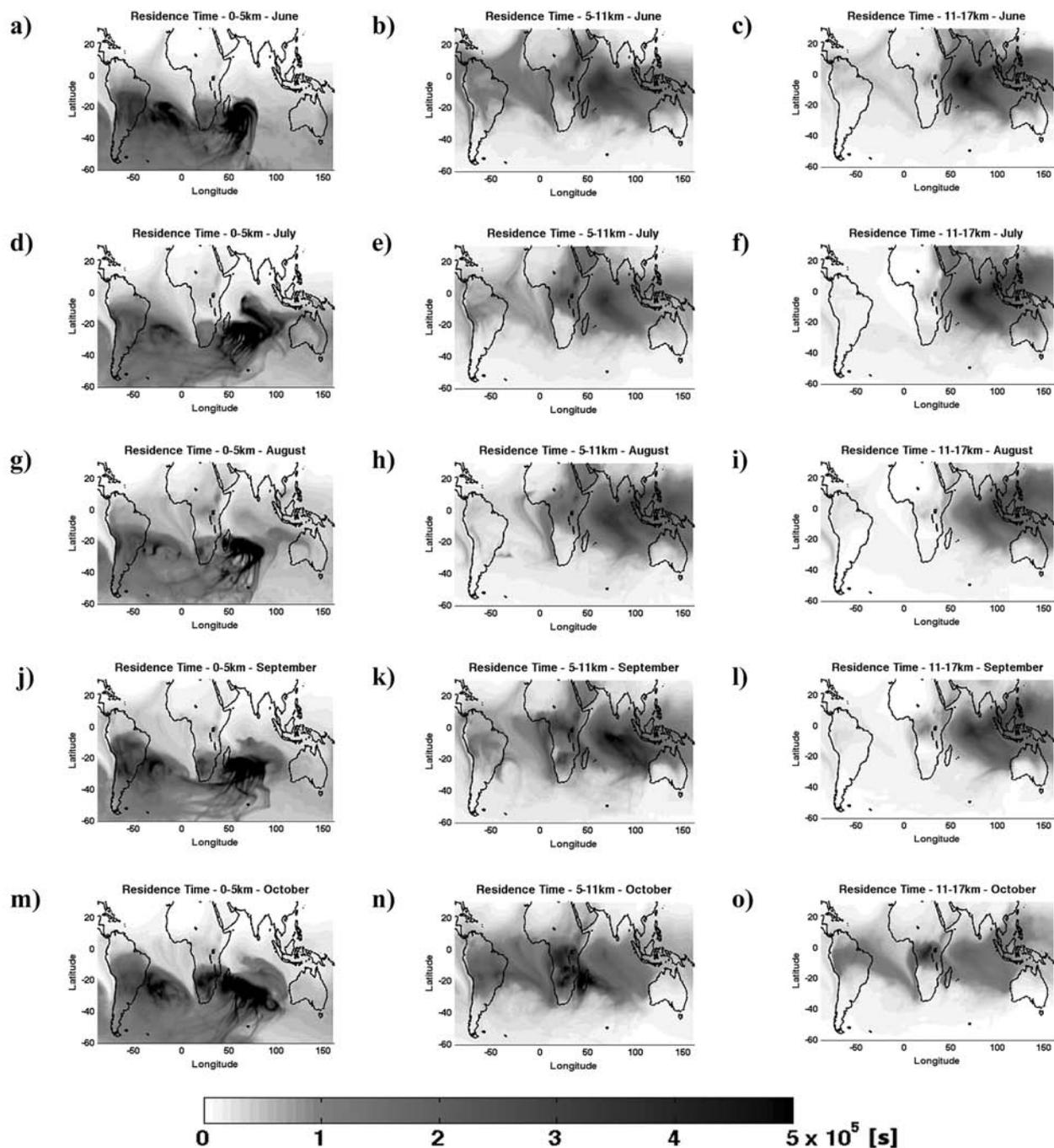


Figure 8. (left) Mean residence time of particles ending over Reunion Island in the 0–5 km layer during (a) June, (d) July, (g) August, (j) September, and (m) October 2007. (middle) Mean residence time of particles ending over Reunion Island in the 5–11 km layer during (b) June, (e) July, (h) August, (k) September, and (n) October 2007. (right) Mean residence time of particles ending over Reunion Island in the 11–17 km layer during (c) June, (f) July, (i) August, (l) September, and (o) October 2007. Color bar is limited to 5×10^5 s for clarity.

three partial columns. It confirms the main importance of areas SAM and AFM for the 0–5 km and 5–11 km layers for the whole period. However, areas SEA and I-M have mean residence times higher than the one of area SAM in August

for the 5–11 km layer. For the 11–17 km layer and from June to September, potential contributions of areas SEA and I-M are more important than the potential contribution of area SAM and are even higher than the AFM potential con-

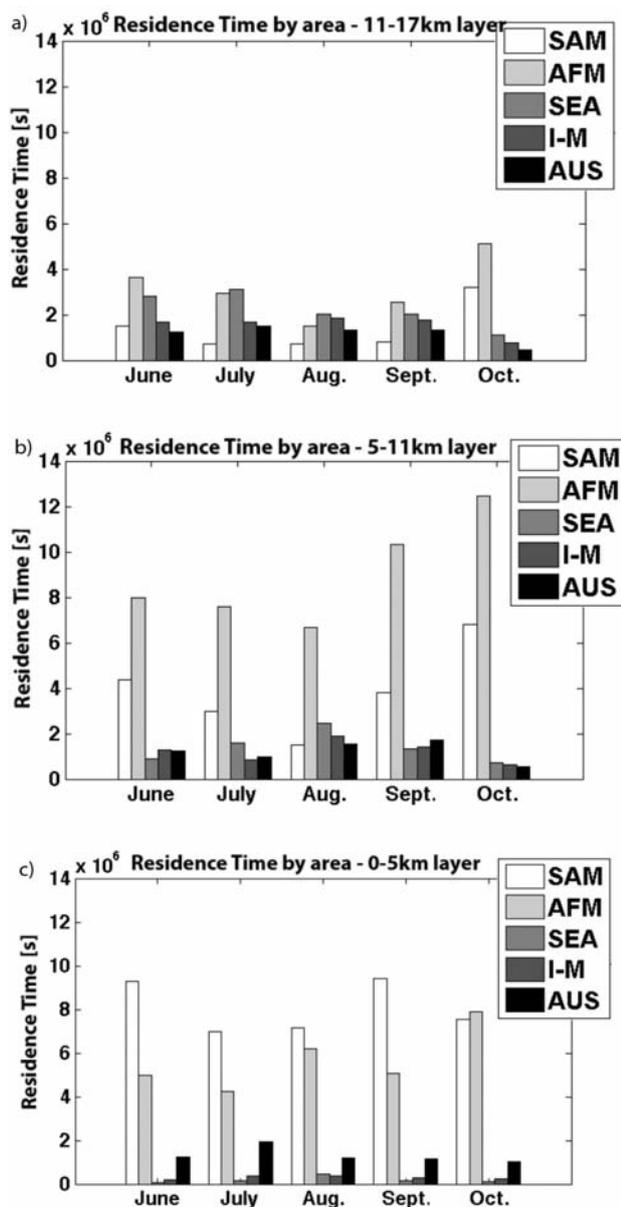


Figure 9. Mean residence time by area of particles ending over Reunion Island between June and October 2007. Back trajectories have been calculated over 50 days using FLEXPART for an ending in the (a) 11–17 km, (b) 5–11 km, and (c) 0–5 km layers.

tribution in August. Potential contribution of area SEA is also higher than the AFM potential contribution in July. Figure 10 shows the monthly evolution of the mean residence time over areas SEA + I-M of particles ending over Reunion Island in the 0–5 km, 5–11 km, and 11–17 km layers. The cumulative residence time of the three partial columns increases until its maximum in July and August and then decreases until its minimum in October. One can also notice that the residence times are the highest for particles ending in the 11–17 km layer, except in August when residence time for the 5–11 km layer is similar to the 11–17 km layer residence time. This might be related to the fact that the I-M SEA pathway

remains close to the surface from a more prolonged period of time.

[25] To gain more insight into the processes taking place in the upper troposphere, we used LACYTRAJ to perform a set of back trajectories ending at Reunion Island at the 400 hPa (7 km), 300 hPa (9 km), and 200 hPa (12 km) levels (Figure 11). Each back trajectory has been computed over 10 days by LACYTRAJ during June, July, August, September, and October 2007. The 10 day duration for back trajectories is far enough to reach areas as far as South America. Each back trajectory has been superimposed to the other ones with a fixed transparency. The darkest regions are the ones over which pass the highest number of back trajectories. At the 300 and 400 hPa levels, the main crossed areas are clearly area AFM and area SAM, except in August for the 300 hPa level when a wide bundle of back trajectories comes from areas SEA and I-M. The westerly winds coming from Africa and South America are observable at the 400 and 300 hPa levels and agree well with the known air transport pathway from South America and southern Africa to Australia [Edwards *et al.*, 2006a]. At the 200 hPa level, one can notice that area SEA and area I-M are the second main air mass passing areas after area AFM, which confirms results from Figures 8 and 9. In October, Asian overpasses become less prominent while southern African and South American overpasses gain importance. It seems, therefore, that there is a “channel” linking Southeast Asia, Indonesia, and Malaysia to Reunion Island at 200 hPa from June to September which does not exist at the two lowest altitudes. This June to September channel would follow the main bundle of back trajectories shown on Figures 8c, 8f, and 8i. These observations are in accordance with the Asian monsoon anticyclone (AMA) seasonal cycle. During Northern Hemisphere summer, the AMA is the dominant circulation feature in the Indian-Asian upper troposphere lower-stratosphere (UTLS) region, located between 10°N and 40°N and forced by persistent deep convection coupled with circulation [Hoskins and Rodwell, 1995]. The strong anticyclonic circulation and the north-easterly winds blowing southeast of the AMA create favorable dynamic conditions to create the channel between

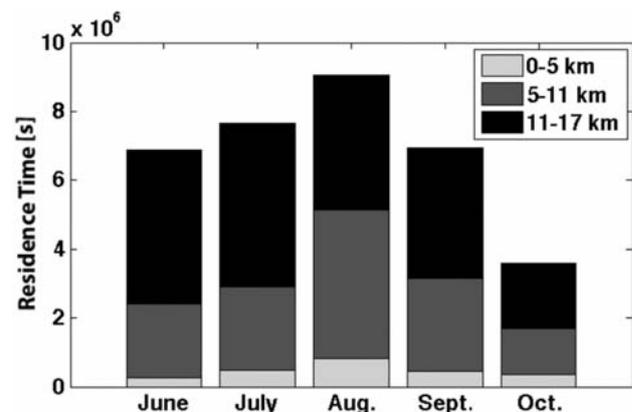


Figure 10. Evolution between June and October 2007 of the mean residence time over areas SEA + I-M of particles ending over Reunion Island in the 0–5 km, 5–11 km, and 11–17 km layers. Back trajectories have been calculated over 50 days using FLEXPART.

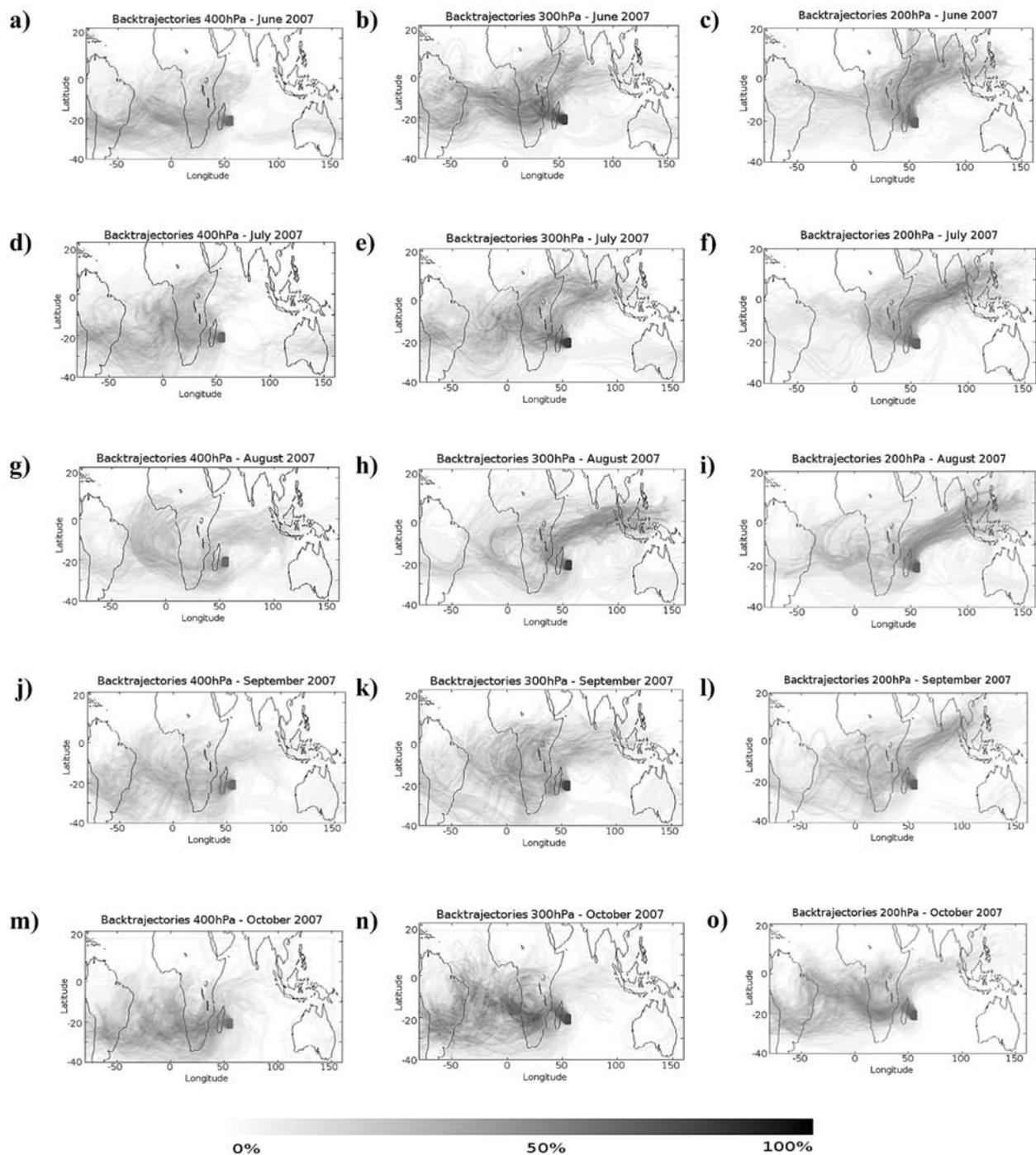


Figure 11. (left) LACYTRAJ 10 days back trajectories ending over Reunion Island at 400 hPa during (a) June, (d) July, (g) August, (j) September, and (m) October 2007. (middle) LACYTRAJ 10 days back trajectories ending over Reunion Island at 300 hPa during (b) June, (e) July, (h) August, (k) September, and (n) October 2007. (right) LACYTRAJ 10 days back trajectories ending over Reunion Island at 200 hPa during (c) June, (f) July, (i) August, (l) September, and (o) October 2007. Opacity gives occurrences.

Southeast Asia, Indonesia, Malaysia, and Reunion Island. Numerous recent studies have pointed out the strong uplift of boundary layer polluted air from India, Southeast Asia, and south China to the Asian UT during the ASM [Li *et al.*, 2001, 2005; Lelieveld *et al.*, 2002; Fu *et al.*, 2006; Park

et al., 2007; Berthet *et al.*, 2007]. In particular, within the monsoon anticyclone, UTLS CO can reach 140 ppbv at 200 hPa [Li *et al.*, 2005; Park *et al.*, 2007; Barret *et al.*, 2008]. This CO-enriched air mass could be then transported by the Hadley cell toward the subtropical southern Indian

Table 4. Vertical Distribution of the Emitted CO by Area According to the Fractional Distribution of Emission Heights for Wild Land Fires Recommended by *Dentener et al.* [2006]

Region	Tropical	Temperate	Eurasia	Canada
Latitude range	30°S; 30°N	60°S; 30°S 30°N; 60°N	60°N; 90°N	60°N; 90°N
Longitude range	180°W; 180°E	180°W; 180°E	30°E; 180°E	180°W; 30°E
Emitted CO in the 0–100 m range (%)	20	20	10	10
Emitted CO in the 100–500 m range (%)	40	20	10	10
Emitted CO in the 500–1000 m range (%)	40	20	20	10
Emitted CO in the 1000–2000 m range (%)	-	40	20	10
Emitted CO in the 2000–3000 m range (%)	-	-	40	20
Emitted CO in the 3000–6000 m range (%)	-	-	-	40

Ocean, in particular toward Reunion Island. This is in agreement with Figure 6 showing that CO concentrations at 250 hPa are greater than the 700 hPa CO concentrations between Southeast Asia and the subtropical southern Indian Ocean, especially from June to September.

5. Impact of CO-Enriched Air Masses on the CO Distribution Above Reunion Island

[26] In section 4, we pointed out the main potential source areas for CO-enriched air masses in the Reunion Island zone. We now want to investigate their impact on the locally observed CO concentrations. To do so, we used the calculated air mass folded residence time (in $\text{s m}^3 \text{kg}^{-1}$) with CO emissions (in $\text{kg m}^{-3} \text{s}^{-1}$) data from GFEDv2.1 for BB emissions and from EDGARv3.2-FT2000 for anthropogenic emissions (section 2.2.3). A mass mixing ratio (kg/kg) at the receptor point is then obtained and can be converted into partial column unit (molecules/cm²). Table 4 shows how the emitted BB CO mass was distributed in altitude according to the fractional distribution of emission heights for wild land fires recommended in *Dentener et al.* [2006]. The anthropogenic emissions were distributed as follows: 20% between 0 and 100 m, 40% between 100 and 500 m, and 40% between 500 and 1000 m.

[27] Figure 12 shows the BB CO emitted by area from June to October for the year 2007 as well as the mean emitted BB CO from June to October over the years 2001 to 2006 according to GFEDv2.1 data. June to October anthropogenic

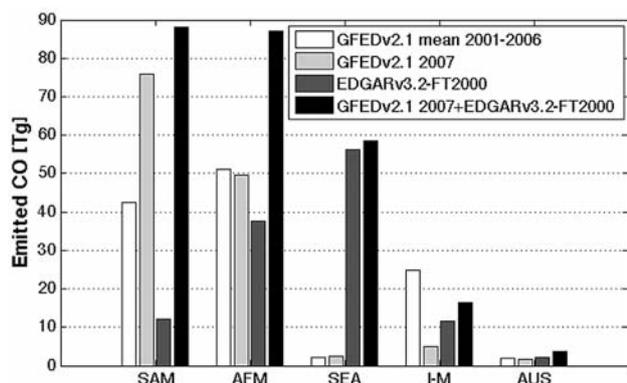


Figure 12. Mean emitted BB CO from June to October over the year 2001 to 2006 (GFEDv2.1 data), BB CO emitted by area from June to October 2007 (GFEDv2.1 data), and anthropogenic CO emitted from June to October 2000 (EDGARv3.2-FT2000 data). Emissions are given by area.

CO emissions by area (EDGARv3.2-FT2000 data) are also given. While 2007 BB CO emissions by areas AFM, SEA, and AUS agree with their mean emissions over the 6 previous years, 2007 SAM BB emissions are especially high, and 2007 I-M BB emissions are especially low. The high SAM BB emissions can be explained by the fact that South America endured an especially high number of fires, in particular in Brazil, in the July–September period of 2007 [*Bevan et al.*, 2009; <http://news.mongabay.com/2007/1021-amazon.html>]. In total, CO emissions from areas SAM and AFM are the greatest ones, followed by emissions from areas SEA (mainly anthropogenic emissions), I-M, and AUS.

[28] Figure 13 shows the correlation between the total CO emitted and transported to Reunion Island as seen by FLEXPART (with GFEDv2.1 and EDGARv3.2-FT2000 data) versus the CO observed by FTIR in the partial column 0–17 km. The correlation coefficient is 0.94 (number of points is 64), showing that the CO enhancements simulated by the method described above are in line with the ground-based FTIR observations. Performing the same analysis on the three partial columns 0–5 km, 5–11 km, and 11–17 km, the correlation coefficients are 0.92, 0.87, and 0.82, respectively (not shown). The CO increase (calculated as the difference between the mean CO concentration during the

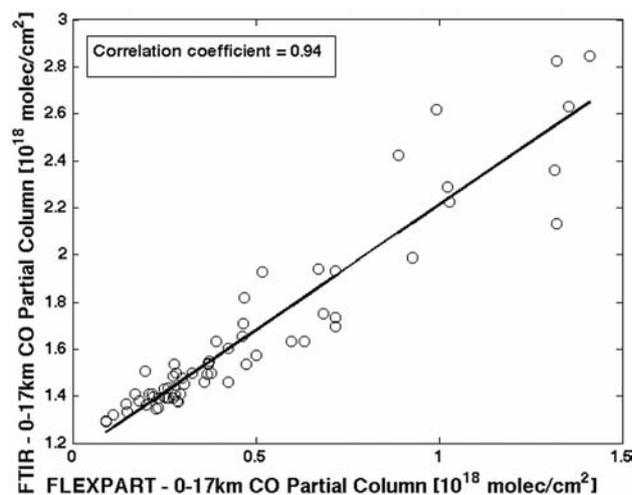


Figure 13. Correlation plot between the total BB (GFEDv2 data) and anthropogenic (EDGAR v3.2-FT2000) CO emitted and transported to Reunion Island as simulated by FLEXPART versus the CO observed by FTIR in the partial column 0–17 km for the June–October 2007 period. The correlation coefficient equals 0.94.

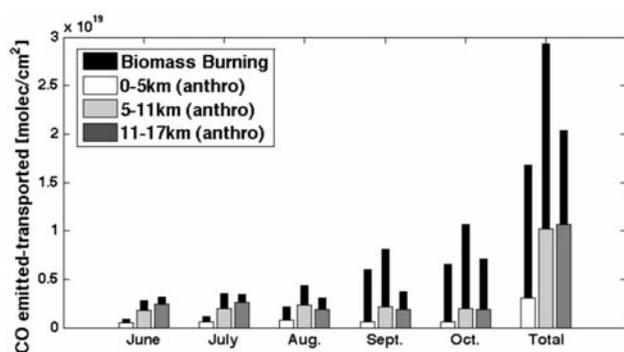


Figure 14. Cumulative BB (black bars) and anthropogenic (white and gray bars) CO concentration emitted/transported to Reunion Island in the 0–5 km, 5–11 km, and 11–17 km layers during the June to October 2007 period as inferred from FLEXPART simulations.

10 last days of the campaign and the mean CO concentration from the beginning of the campaign to mid-July) as simulated by FLEXPART equals 8.60×10^{17} molecules/cm², and the one observed by FTIR equals 9.96×10^{17} molecules/cm². This difference between the FLEXPART simulations and the ground-based FTIR observations can be due to the fact that the simulation does not include any chemical reactions. The oxidation source of CO from methane and other hydrocarbons is especially not considered.

[29] Figure 14 shows the cumulative BB and anthropogenic CO concentration emitted/transported to Reunion Island in the 0–5 km, 5–11 km, and 11–17 km layers during the June to October 2007 period as inferred from FLEXPART simulations. In total, the 5–11 km layer presents the most important CO increase, which agrees with the FTIR observations (section 3.1).

[30] Figure 15 shows the relative contribution of each of the areas defined in Figure 7 on the CO concentration at Reunion Island for each of the three partial columns. In the 0–5 km layer, area AFM is the main CO contributor for the whole period except in September and October when contribution from area SAM clearly increases because of the especially high 2007 wildfire activity in South America (Figure 12). The three remaining areas (SEA, I-M, and AUS) only have a small contribution in this low tropospheric layer. In the 5–11 km layer, area AFM is the main CO contributor during the whole period except in October when contribution from area SAM becomes larger. Areas SEA and I-M contribute more than in the 0–5 km layer, especially in August when their contributions are higher than the SAM area. These results confirm the predominance of the African and South American contributions in the CO concentration over Reunion Island below 11 km, because of the westerly winds (section 4) and the strength of BB (Figures 4 and 12).

[31] The situation is different in the 11–17 km layer: areas AFM and SAM are the two main contributors only in October. Moreover, from June to September, areas SEA and I-M are the two main contributors. In October, contributions from areas SAM and AFM increase while contributions from areas SEA and I-M decrease. Contribution in the CO concentration in Reunion Island from Southeast Asia and from Indonesia and Malaysia is then far more important in

the 11–17 km layer than below 11 km, even outweighing the AFM contribution from June to September, whereas SEA and I-M CO emissions are below the AFM ones (Figure 12). This confirms the dynamic analysis (section 4) showing a pathway between Southeast Asia, Indonesia, and Malaysia and the subtropical southern Indian Ocean in the upper troposphere from June to September. Furthermore, this upper tropospheric long-range transport of CO is in agreement with the values of the monthly mean ratios of MOPITT CO retrievals between 250 hPa and 700 hPa which are greater than 1 along this pathway in June, July, and August (Figure 6). However, the 250/700 ratio over Reunion Island remains lower than 1 (~ 0.9) during this period, showing a greater CO concentration in the lower troposphere than in the upper troposphere. This is due to the mixing with CO-enriched air masses coming from Africa/Madagascar and South America travelling in the lower troposphere.

[32] While Southeast Asia and Indonesia-Malaysia are significantly contributing areas, Australia remains the zone which contributes the least for the whole SH BB season and for the whole troposphere.

[33] One can also notice in Figure 15 the importance of the transport of CO from South America, especially in October when this source dominates the African source in the three partial columns. This is explained by the especially high 2007 South American BB CO emissions (Figure 11).

[34] We thus infer that the Australian emission sources contribute little to the CO concentration observed over Reunion Island. The main contributors to the CO variations are southern Africa and South America throughout the entire column, and also Southeast Asia, Indonesia, and Malaysia in the 11–17 km layer from June to September. Given the low I-M BB CO emissions during the 2007 SH BB season compared to the mean emissions over the 6 previous years (Figure 12), this I-M upper tropospheric contribution could be more important during other years.

6. Conclusions

[35] The objectives of this paper were to document the evolution of the vertical distribution of the abundance of CO above Reunion Island with time and to determine the sources which govern this evolution. We have focused especially on the impact of CO-enhanced air masses coming from Southeast Asia, Indonesia, and Malaysia on the CO distribution in the subtropical southern Indian Ocean area.

[36] Data from an FTIR campaign performed in 2007 indicate a doubling of CO total columns in the course of the SH BB season, consistent with measurements from a similar campaign that took place in 2004. The influence of different source areas (southern Africa, South America, Southeast Asia, Indonesia and Malaysia, and Australia) has been discussed using LACYTRAJ back trajectory analyses and FLEXPART modeling combined with GFEDv2.1 fire emission data and EDGARv3.2-FT2000 anthropogenic emission data for CO. The main sources of CO for Reunion Island in austral spring are southern Africa and South America. We have shown that the areas of Southeast Asia and Indonesia-Malaysia are potential extra sources for CO in the upper troposphere, especially in July and August, when upper tropospheric dynamical conditions are propitious to bring into being a channel linking Southeast Asia to the southern Indian

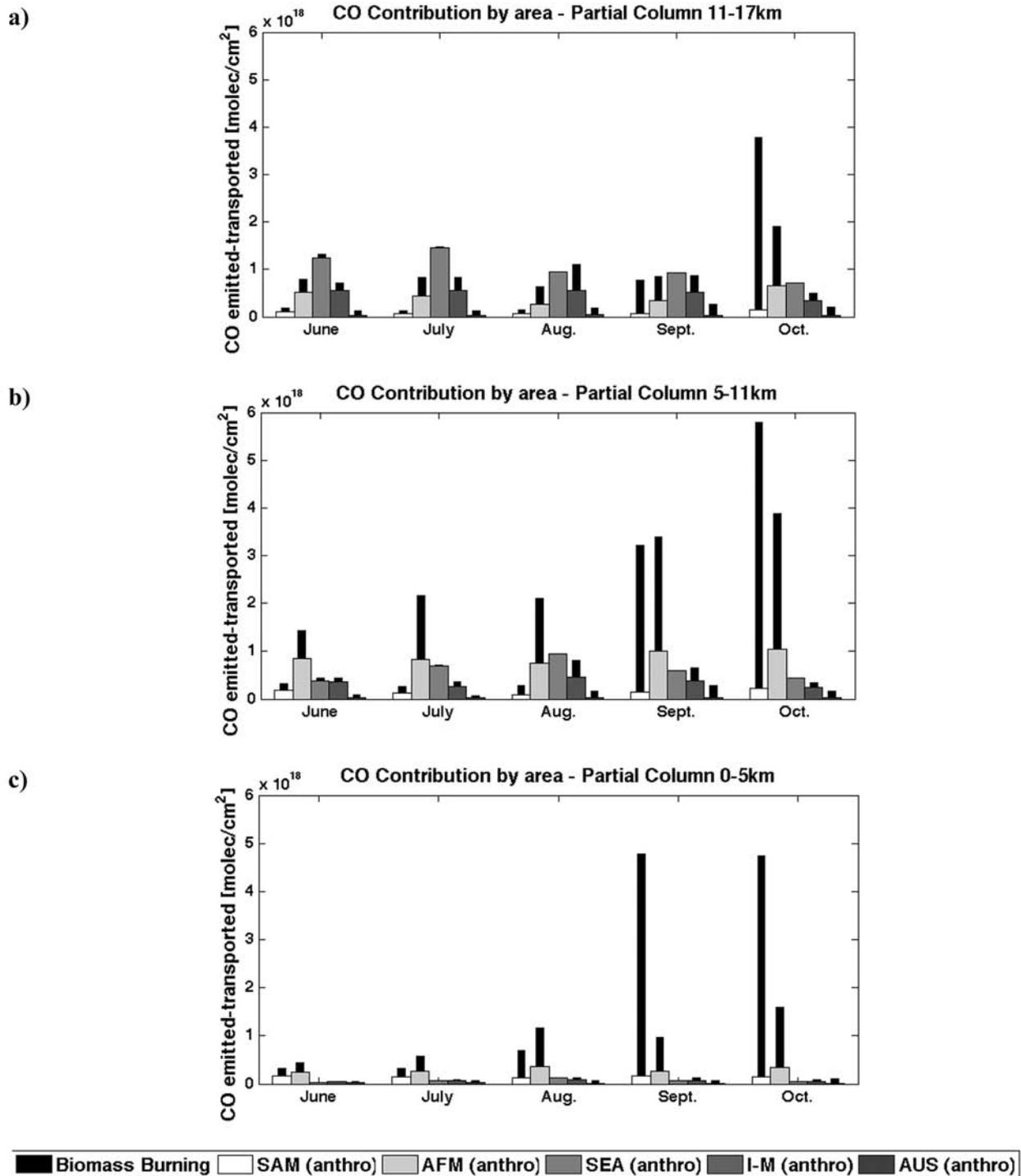


Figure 15. Cumulative BB (black bars) and anthropogenic (white and gray bars) CO concentration emitted/transported to Reunion Island by area in the (a) 11–17 km layer, (b) 5–11 km layer, and (c) 0–5 km layer for June, July, August, September, and October 2007 as inferred from FLEXPART simulations.

Ocean. We have shown that in the upper tropospheric layer (11–17 km) from June to September, Southeast Asia and Indonesia-Malaysia are the main contributing areas to the CO enhancement occurring in the subtropical southern Indian

Ocean. This is, therefore, a new identified long-range transport pathway of CO significantly affecting the subtropical southern Indian Ocean area.

[37] Our further objective is now to establish continuous FTIR measurements in order to complete the characterization of the CO distribution over Reunion Island over a longer measurement period thanks to the permanent installation of the ground-based FTIR since May 2009 in Reunion Island. We also plan to extend the study to other pollutants emitted from BB, including observation of aerosols by lidar over Reunion Island and in the Indian Ocean with additional shipborne lidar campaign measurements in the Mozambique Channel, toward the Kerguelen Islands and close to Indonesia.

[38] **Acknowledgments.** The authors thank the French regional, national (INSU, CNRS), and international (NASA/GFSC) organizations for supporting the OPAR (Observatoire de Physique de l'Atmosphère de la Réunion) station. The Centre National de Recherche Scientifique (CNRS) and the Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME) provide funding to V. Duflot for his Ph.D. The FTIR campaigns at Reunion and FLEXPART analyses are supported by the Belgian Science Policy via the Science for a Sustainable Development program (contract AGACC) and the ESA/PRODEX program (contract SECPEA), as well as by the EU project SCOUT-O3. MOPITT mission and data analysis are supported by the Canadian Space Agency, the Natural Sciences and Engineering Research Council (NSERC), and the National Aeronautics and Space Administration (NASA). MOPITT retrievals are performed by NCAR. We thank the ECMWF center for supplying global model data. We thank the MODIS team (NASA) and the University of Maryland for providing fires detection data. We also wish to thank the Observatoire Réunionnais de l'Air (ORA) for local ground CO concentration data. Jean-Marc Metzger (OPAR), Francis Scolas, and Christian Hermans (BIRA-IASB) also receive our gratitude for supporting the FTIR operation.

References

- Annegarn, H. J., L. Otter, R. J. Swap, and R. J. Scholes (2002), Southern Africa's ecosystem in a test-tube: A perspective on the Southern African Regional Science Initiative (SAFARI 2000), *S. Afr. J. Sci.*, **98**, 111–113.
- Baray, J. L., G. Ancellet, F. G. Taupin, M. Bessafi, S. Baldy, and P. Keckhut (1998), Subtropical tropopause break as a possible stratospheric source of O₃ in the tropical troposphere, *J. Atmos. Sol. Terr. Phys.*, **60**(1), 27–36.
- Barret, B., et al. (2008), Transport pathways of CO in the African upper troposphere during the monsoon season: A study based upon the assimilation of spaceborne observations, *Atmos. Chem. Phys.*, **8**, 3231–3246.
- Berthet, G., J. G. Esler, and P. H. Haynes (2007), A Lagrangian perspective of the tropopause and the ventilation of the lowermost stratosphere, *J. Geophys. Res.*, **112**, D18102, doi:10.1029/2006JD008295.
- Bevan, S. L., P. R. J. North, W. M. F. Grey, S. O. Los, and S. E. Plummer (2009), Impact of atmospheric aerosol from biomass burning on Amazon dry-season drought, *J. Geophys. Res.*, **114**, D09204, doi:10.1029/2008JD011112.
- Bremer, H., et al. (2004), Spatial and temporal variation of MOPITT CO in Africa and South America: A comparison with SHADOZ ozone and MODIS aerosol, *J. Geophys. Res.*, **109**, D12304, doi:10.1029/2003JD004234.
- Clain, G., J. L. Baray, R. Delmas, R. Diab, J. Leclair de Bellevue, P. Keckhut, F. Posny, J. M. Metzger, and J. P. Cammas (2009), Tropospheric O₃ climatology at two Southern Hemisphere tropical/subtropical sites, (Reunion Island and Irene, South Africa) from ozonesondes, LIDAR, and in situ aircraft measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, **9**, 1723–1734.
- Clain, G., J. L. Baray, R. Delmas, P. Keckhut, and J.-P. Cammas (2010), A Lagrangian approach to analyse the tropospheric ozone climatology in the tropics: Climatology of stratosphere-troposphere exchange at Reunion Island, *Atmos. Environ.*, **44**, 968–975.
- Cooke, W. F., B. Koffi, and J. M. Grégoire (1996), Seasonality of vegetation fires in Africa from remote sensing data and application to a global chemistry model, *J. Geophys. Res.*, **101**, 21,051–21,065.
- Daniel, J. S., and S. Solomon (1998), On the climate forcing of carbon monoxide, *J. Geophys. Res.*, **103**, 13,249–13,260.
- Deeter, M. N., L. K. Emmons, D. P. Edwards, J. C. Gille, and J. R. Drummond (2004a), Vertical resolution and information content of CO profiles retrieved by MOPITT, *Geophys. Res. Lett.*, **31**, L15112, doi:10.1029/2004GL020235.
- Deeter, M. N., et al. (2004b), Evaluation of operational radiances for the Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT) instrument CO thermal band channels, *J. Geophys. Res.*, **109**, D03308, doi:10.1029/2003JD003970.
- Deeter, M. N., D. P. Edwards, J. C. Gille, and J. R. Drummond (2007), Sensitivity of MOPITT observations to carbon monoxide in the lower troposphere, *J. Geophys. Res.*, **112**, D24306, doi:10.1029/2007JD008929.
- De Laat, A. T. J., J. Lelieveld, G. J. Roelofs, R. R. Dickerson, and J. M. Lobert (2001), Source analysis of carbon monoxide pollution during INDOEX 1999, *J. Geophys. Res.*, **106**, 28,481–28,495.
- Dentener, F., et al. (2006), Emissions of primary aerosol and precursor gases in the years 2000 and 1750 prescribed data-sets for AeroCom, *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, 4321–4344.
- Drummond, J. R., and G. S. Mand (1996), The Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT) instrument, Overall performance and calibration requirements, *J. Atmos. Oceanic Technol.*, **13**, 314–320.
- Edwards, D. P., et al. (2006a), Satellite-observed pollution from Southern Hemisphere biomass burning, *J. Geophys. Res.*, **111**, D14312, doi:10.1029/2005JD006655.
- Edwards, D. P., G. Pétron, P. C. Novelli, L. K. Emmons, J. C. Gille, and J. R. Drummond (2006b), Southern Hemisphere carbon monoxide inter-annual variability observed by Terra/Measurement of Pollution in the Troposphere (MOPITT), *J. Geophys. Res.*, **111**, D16303, doi:10.1029/2006JD007079.
- Emmons, L. K., et al. (2004), Validation of Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT) CO retrievals with aircraft in situ profiles, *J. Geophys. Res.*, **109**, D03309, doi:10.1029/2003JD004101.
- Emmons, L. K., G. G. Pfister, D. P. Edwards, J. C. Gille, G. Sachse, D. Blake, S. Wofsy, C. Gerbig, D. Matross, and P. Nédélec (2007), Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT) validation exercises during summer 2004 field campaigns over North America, *J. Geophys. Res.*, **112**, D12S02, doi:10.1029/2006JD007833.
- Emmons, L. K., D. P. Edwards, M. N. Deeter, J. C. Gille, T. Campos, P. Nédélec, P. Novelli, and G. Sachse (2009), Measurements of Pollution in The Troposphere (MOPITT) validation through 2006, *Atmos. Chem. Phys.*, **9**, 1795–1803.
- Fu, R., Y. Hu, J. S. Wright, J. H. Jiang, R. E. Dickinson, M. Chen, M. Filipiak, W. G. Read, J. W. Waters, and D. L. Wu (2006), Short circuit of water vapor and polluted air to the global stratosphere by convective transport over the Tibetan Plateau, *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.*, **103**, 5664–5669.
- Galanter, M., H. Levy, and G. R. Carmichael (2000), Impacts of biomass burning on tropospheric CO, NO_x, and O₃, *J. Geophys. Res.*, **105**, 6633–6653.
- Garstang, M., P. D. Tyson, R. Swap, M. Edwards, P. Kallberg, and J. A. Lindsay (1996), Horizontal and vertical transport of air over southern Africa, *J. Geophys. Res.*, **101**, 23,721–23,736.
- Generoso, S., F.-M. Bréon, Y. Balkanski, O. Boucher, and M. Schulz (2003), Improving the seasonal cycle and interannual variations of biomass burning aerosol sources, *Atmos. Chem. Phys.*, **3**, 1211–1222.
- Giglio, L., J. Descloitres, C. O. Justice, and Y. J. Kaufman (2003), An enhanced contextual fire detection algorithm for MODIS, *Remote Sens. Environ.*, **87**, 273–282.
- Hoskins, B. J., and M. J. Rodwell (1995), A model of the Asian summer monsoon. Part I: the global scale, *J. Atmos. Sci.*, **52**, 1329–1340.
- Intergovernmental Panel on Climate Change (2001), *Climate Change 2001*, edited by J. T. Houghton et al., Cambridge Univ. Press, New York.
- Kanakidou, M., and P. J. Crutzen (1999), The photochemical source of carbon monoxide: Importance, uncertainties and feedbacks, *Chemosphere*, **1**, 91–109.
- Kar, J., et al. (2004), Evidence of vertical transport of carbon monoxide from Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT), *Geophys. Res. Lett.*, **31**, L23105, doi:10.1029/2004GL021128.
- Leclair De Bellevue, J., A. Réchou, J. L. Baray, G. Ancellet, and R. D. Diab (2006), Signatures of stratosphere to troposphere transport near deep convective events in the southern subtropics, *J. Geophys. Res.*, **111**, D24107, doi:10.1029/2005JD006947.
- Lelieveld, J., et al. (2002), Global air pollution crossroads over the Mediterranean, *Science*, **298**, 794–799.
- Li, Q. L., et al. (2001), A tropospheric ozone maximum over the Middle East, *Geophys. Res. Lett.*, **28**(D17), 3235–3238.
- Li, Q. L., et al. (2005), Convective outflow of South Asian pollution: A global CTM simulation compared with EOS MLS observations, *Geophys. Res. Lett.*, **32**, L14826, doi:10.1029/2005GL022762.
- Logan, J. A., M. J. Prather, S. C. Wofsy, and M. B. McElroy (1981), Tropospheric chemistry: A global perspective, *J. Geophys. Res.*, **86**, 7210–7254.
- Marenco, A., J. C. Medale, and S. Prieur (1990), Study of tropospheric ozone in the tropical belt (Africa, America) from STRATOZ and TROPOZ campaigns, *Atmos. Environ.*, **11**, 2823–2834.
- McMillan, W. W., et al. (2003), Tropospheric carbon monoxide measurements from the Scanning High-Resolution Interferometer Sounder on 7 September 2000 in southern Africa during SAFARI 2000, *J. Geophys. Res.*, **108**(D13), 8492, doi:10.1029/2002JD002335.

- Olivier, J., J. Van Aardenne, F. Dentener, V. Pagliari, L. Ganzeveld, and J. Peters (2005), Recent trends in global greenhouse gas emissions: Regional trends 1970–2000 and spatial distribution of key sources in 2000, *Environ. Sci.*, 2(2), 81–99.
- Pak, B. C., et al. (2003), Measurements of biomass burning influences in the troposphere over southeast Australia during the SAFARI 2000 dry season campaign, *J. Geophys. Res.*, 108(D13), 8480, doi:10.1029/2002JD002343.
- Park, M., W. J. Randel, A. Gettelman, S. T. Massie, and J. H. Jiang (2007), Transport above the Asian summer monsoon anticyclone inferred from Aura Microwave Limb Sounder tracers, *J. Geophys. Res.*, 112, D16309, doi:10.1029/2006JD008294.
- Randriambelo, T., J. L. Baray, and S. Baldy (2000), The effect of biomass burning, convective venting, and transport on tropospheric O₃ over the Indian ocean: Reunion Island field observations, *J. Geophys. Res.*, 105(D9), 11,813–11,832.
- Ridley, B. A., S. Madronich, R. B. Chatfield, J. G. Walega, R. E. Shetter, M. A. Carroll, and D. D. Montzka (1992), Measurements and model simulations of the photostationary state during the Mauna Loa Observatory Photochemistry Experiment: Ozone production and loss rates, *J. Geophys. Res.*, 97, 10,275–10,388.
- Rodgers, C. (2000), *Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice, Series on Atmospheric, Oceanic and Planetary Physics*, vol. 2, World Sci., Singapore.
- Senten, C., et al. (2008), Technical Note: New ground-based FTIR measurements at Ile de La Réunion: Observations, error analysis, and comparisons with independent data, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 3483–3508.
- Stohl, A., and D. J. Thomson (1999), A density correction for Lagrangian particle dispersion models, *Boundary Layer Meteorol.*, 90(1), 155–167.
- Stohl, A., M. Hittenberger, and G. Wotawa (1998), Validation of the Lagrangian particle dispersion model FLEXPART against large-scale tracer experiment data, *Atmos. Environ.*, 32, 4245–4264.
- Stohl, A., C. Forster, A. Frank, P. Seibert, and G. Wotawa (2005), Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2., *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 2461–2474.
- Swap, R. J., H. J. Annegarn, J. T. Suttles, M. D. King, S. Platnick, J. L. Privette, and R. J. Scholes (2003), Africa burning: A thematic analysis of the South African Regional Science Initiative (SAFARI 2000), *J. Geophys. Res.*, 108(D13), 8465, doi:10.1029/2003JD003747.
- Taupin, F. G., M. Bessafi, S. Baldy, and P. J. Bremaud (1999), Tropospheric O₃ above the southwestern Indian Ocean is strongly linked to dynamical conditions prevailing in the tropics, *J. Geophys. Res.*, 104(D7), 8057–8066.
- Thompson, A. M. (1992), The oxidizing capacity of the Earth's atmosphere: Probable past and future changes, *Science*, 256, 1157–1165.
- van der Werf, G. R., J. T. Randerson, L. Giglio, G. J. Collatz, P. S. Kasibhatla, and A. F. Arellano Jr. (2006), Interannual variability in global biomass burning emission from 1997 to 2004, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3423–3441.
- Vigouroux, C., et al. (2009), Ground-based FTIR and MAX-DOAS observations of formaldehyde at Réunion Island and comparisons with satellite and model data, *Atm. Chem. Phys. Disc.*, 9, 15,891–15,957.
- Zachariasse, M., P. van Velthoven, H. Smit, J. Lelieveld, T. Mandal, and H. Kelder (2000), Influence of stratosphere-troposphere exchange on tropospheric ozone over the tropical Indian Ocean during the winter monsoon, *J. Geophys. Res.*, 105(D12), 15,403–15,416.
-
- J. L. Attié, Laboratoire d'Aérodologie, UMR 5560, Université de Toulouse, CNRS/UPS, F-31400 Toulouse, France.
- J. L. Baray, G. Clain, R. Delmas, and V. Duflot, Laboratoire de l'Atmosphère et des Cyclones, Université de la Réunion, UMR CNRS-Météo-France 8105, F-97715 Saint-Denis de la Réunion, France. (vduflot@univ-reunion.fr)
- M. De Mazière, B. Dils, C. Senten, G. Vanhaelewyn, and C. Vigouroux, Institut d'Aéronomie Spatiale de Belgique, 3 Av. Circulaire, B-1180 Bruxelles, Belgium.

10

**Annexe B : Article Duflot et al.
(2011)**

Marine and biomass burning aerosols in the southern Indian Ocean: Retrieval of aerosol optical properties from shipborne lidar and Sun photometer measurements

V. Duflot,¹ P. Royer,^{2,3} P. Chazette,² J.-L. Baray,¹ Y. Courcoux,¹ and R. Delmas¹

Received 23 February 2011; revised 31 May 2011; accepted 29 June 2011; published 27 September 2011.

[1] We document aerosol extinction properties in the southern Indian Ocean. A unique data set of shipborne measurements has been collected with a dual Rayleigh-Mie lidar aboard the research vessel Marion Dufresne during two campaigns: one around Madagascar during the Southern Hemisphere late summer and one close to the Kerguelen Islands during the biomass burning (BB) season. During this latter, a layer containing a mix of BB and marine aerosols extending up to ~ 3 km above mean sea level (amsl) has been observed from $[31^\circ\text{S}, 69^\circ\text{E}]$ to $[24^\circ\text{S}, 59^\circ\text{E}]$. Both vertical structure and aerosol optical properties have been retrieved from the inversion of the lidar signals. Sun photometer-derived aerosol optical thickness (AOT) at 355 nm is used to constrain the lidar inversion. We obtain a mean integrated value of backscatter-to-extinction ratio (BER) (extinction-to-backscatter ratio, or so-called lidar ratio, LR) of $0.039 \pm 0.009 \text{ sr}^{-1}$ ($26 \pm 6 \text{ sr}$) and $0.021 \pm 0.006 \text{ sr}^{-1}$ ($48 \pm 12 \text{ sr}$) for the marine aerosols layer, and for the mixing between BB and marine aerosols with an uncertainty of 0.009 sr^{-1} (6 sr) and 0.004 sr^{-1} (9 sr), respectively. Lidar calibration is used to inverse data without any simultaneous Sun photometer measurements (as nighttime data), and the temporal evolution of the optical properties and vertical extension of the BB aerosol plume is documented. The presence of BB aerosols is in agreement with Lagrangian model GIRAFE v3 (reGlonal ReAl time Fire plumEs) simulations, which show the South American and Southern African BB origin of the encountered aerosol layer.

Citation: Duflot, V., P. Royer, P. Chazette, J.-L. Baray, Y. Courcoux, and R. Delmas (2011), Marine and biomass burning aerosols in the southern Indian Ocean: Retrieval of aerosol optical properties from shipborne lidar and Sun photometer measurements, *J. Geophys. Res.*, 116, D18208, doi:10.1029/2011JD015839.

1. Introduction

[2] Aerosols are efficient scatters of solar radiation. Consequently, they often have a large impact on local and regional visibility, contribute to the planetary albedo and affect regional and global climate [Crutzen and Andreae, 1990; Andreae, 1996]. Spatially and temporally resolved information on the atmospheric burden and radiative properties of aerosol is needed to estimate radiative forcing [Intergovernmental Panel on Climate Change, 2007]. Moreover, many of the pyrogenic particles can act as cloud condensation nuclei (CCN) [Rogers *et al.*, 1991] and thereby change the radiative properties of clouds. Local fossil fuel and agricultural biomass burning (BB) cause a high aerosol loading over the Indian Ocean [Lelieveld *et al.*, 2001]. Aerosol loading and extinction properties have been intensely studied over the region of the northern Indian

Ocean and Arabian sea in the framework of the INdian Ocean EXperiment (INDOEX) during the winter monsoon [Rajeev *et al.*, 2000; Léon *et al.*, 2001; Pelon *et al.*, 2002; Ramanathan *et al.*, 2001; Rasch *et al.*, 2001; Welton *et al.*, 2002; Chazette, 2003; Forêt *et al.*, 2006].

[3] However, compared to the Northern Hemisphere and to the northern Indian Ocean, the southern Indian Ocean is quite an aerosol-clean area, except during the Southern Hemisphere BB season. The Southern African Regional Science Initiative (SAFARI 2000) experiment showed pronounced smoke and haze exiting off the South-Southeast Africa during the Southern Hemisphere BB season going from July to October. Such plumes are advected over southern Indian Ocean [Annegarn *et al.*, 2002] and can attain Australia [Rosen *et al.*, 2000] and New Zealand [Edwards *et al.*, 2006]. Long-range transports of BB pollution can also occur from South America and Southeast Asia into the southern Indian Ocean during the Southern Hemisphere BB season [Edwards *et al.*, 2006; Duflot *et al.*, 2010]. The resulting aerosol loading causes an increase of the aerosol optical thickness (AOT_λ) and modifies the extinction properties of the low troposphere. Since this seasonal variation of the tropospheric aerosol loading in the southern Indian Ocean

¹Laboratoire de l'Atmosphère et des Cyclones, Université de la Réunion, UMR CNRS-Météo-France 8105, Saint-Denis, Réunion, France.

²Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, UMR CEA-CNRS-UVSQ 8212, Gif-sur-Yvette, France.

³LEOSPHERE, Paris, France..

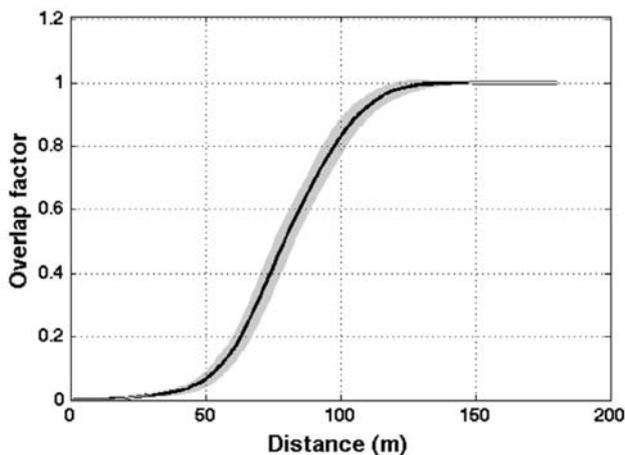


Figure 1. Lidar mean overlap factor F (black solid line) and its standard deviation (gray shaded area) as a function of the distance from the laser source.

is due to agricultural needs and cultural habits, it occurs every year, and should last still for a long time.

[4] Due to few ground-based measurement points, only big scale means such as MODerate-resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) onboard Terra and Aqua platforms and the Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization (CALIOP) lidar onboard Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation (CALIPSO) are available to study the BB aerosol optical properties over the southern Indian Ocean. However, the effect of aerosols on climate strongly depends on their optical properties and tridimensional distribution, and these parameters cannot be easily retrieved from spaceborne instruments, mainly in presence of low AOT, which is often associated with measurements performed with a small signal-to-noise ratio. Ground-based lidars offer the opportunity to measure simultaneously the vertical structure and the extinction coefficient of the atmospheric aerosol layers with a high vertical and temporal resolution, and are complementary to satellite observations.

[5] The data presented here give detailed information on the vertical distribution and optical properties over southern Indian Ocean's marine and BB aerosols. These data have been acquired during two ship-based experiments: one around Madagascar in late austral summer 2009 and another one between La Réunion (21°S, 55°E) and the Kerguelen Islands (50°S, 70°E) in austral winter 2009 during the Southern Hemisphere BB season. In Section 2 the experimental set up involved in this experiment is detailed. The method and the results are presented in Section 3 and discussed in Section 4 taking into account uncertainties on retrievals.

2. Data and Numerical Tools

2.1. Experimental Set Up and Networks

2.1.1. Rayleigh-Mie Lidar

[6] The Rayleigh-Mie lidar used is a LEOSPHERE ALS450[®] based on a Nd:Yag laser producing pulses with a mean energy of 16 mJ at 355 nm and a frequency of 20 Hz. The system was installed in an air-conditioned box adapted

for use in severe conditions. Lidar measurements have been averaged over 2 min with a vertical resolution of 15 m. The lidar profiles enable to retrieve aerosol optical properties (extinction and backscatter coefficient in synergy with Sun photometer measurements) and atmospheric structures (boundary layer heights, aerosol layers and clouds). It is particularly well-adapted to open ocean experiment and MBL study thanks to its full-overlap height reached at ~120 m (Figure 1). The overlap factor (F) has been retrieved using horizontal laser shots both before and after the campaigns as described by Chazette [2003] assuming the atmosphere stable horizontally.

2.1.2. Sun Photometer, AERONET, and Maritime AERONET

[7] AOT measurements were performed in clear-sky condition using a MICROTOPS II Sun photometer instrument (Solar Light, Inc.). The instrument field of view is about 1°. The AOT (AOT_λ) is measured at five wavelengths (λ) in the visible spectrum (380, 500, 675, 870 and 1020 nm). The measurements realized with the Sun photometer during the two campaigns are part of the Maritime Aerosol Network (MAN) data. MAN is a component of the Aerosol Robotic Network (AERONET), affiliated with the AERONET calibration and data processing, and deploys ship-based handheld Sun photometers to complement measurements where no islands exist [Smirnov *et al.*, 2009]. The instrument was calibrated at the NASA Goddard Space Flight Center against the AERONET reference CIMEL Sun/sky radiometer. The data presented here have been quality- and cloud-screened following the methodology of Smirnov *et al.* [2000] and the mean uncertainty on the AOT measurements equals 0.015 [Pietras *et al.*, 2002]. The AOT at the lidar wavelength of 355 nm (AOT_{355}) was calculated from AOT_{380} using the Ångström exponent [Ångström, 1964] between 380 and 500 nm. The uncertainty on the retrieved AOT_{355} has been computed following a similar approach showed by Hamonou *et al.* [1999].

2.1.3. MODIS

[8] The MODIS instrument onboard the Terra and Aqua satellites (<http://modis.gsfc.nasa.gov/>) enables active fire detection based on the high infrared emissions of the fires [Giglio *et al.*, 2003]. This information is available via the FIRMS site (Fire Information for Resource Management System) developed by the University of Maryland (<http://maps.geog.umd.edu/firms/>). FIRMS delivers active fires spots using the MODIS active fire locations processed by the MODIS Rapid Response System using the standard MODIS MOD14 Fire and Thermal Anomalies Product. Each active fire location represents the center of a 1 km pixel that is flagged by the algorithm as containing a fire within the pixel.

[9] We also have used AOT_{500} as retrieved by MODIS on board the Terra spacecraft with a $10 \times 10 \text{ km}^2$ horizontal resolution (at nadir, level 3 data). The retrieval of aerosol properties over both land [Kaufman *et al.*, 1997] and ocean [Tanré *et al.*, 1997] makes use of seven spectral channels in the solar spectrum (0.47–2.1 mm).

2.1.4. Ship Plan

[10] Lidar and Sun photometer measurements were performed aboard the French research vessel Marion Dufresne around Madagascar from 19 April to 13 May, 2009, during the so-called Measurement of Aerosols in the Mozambique

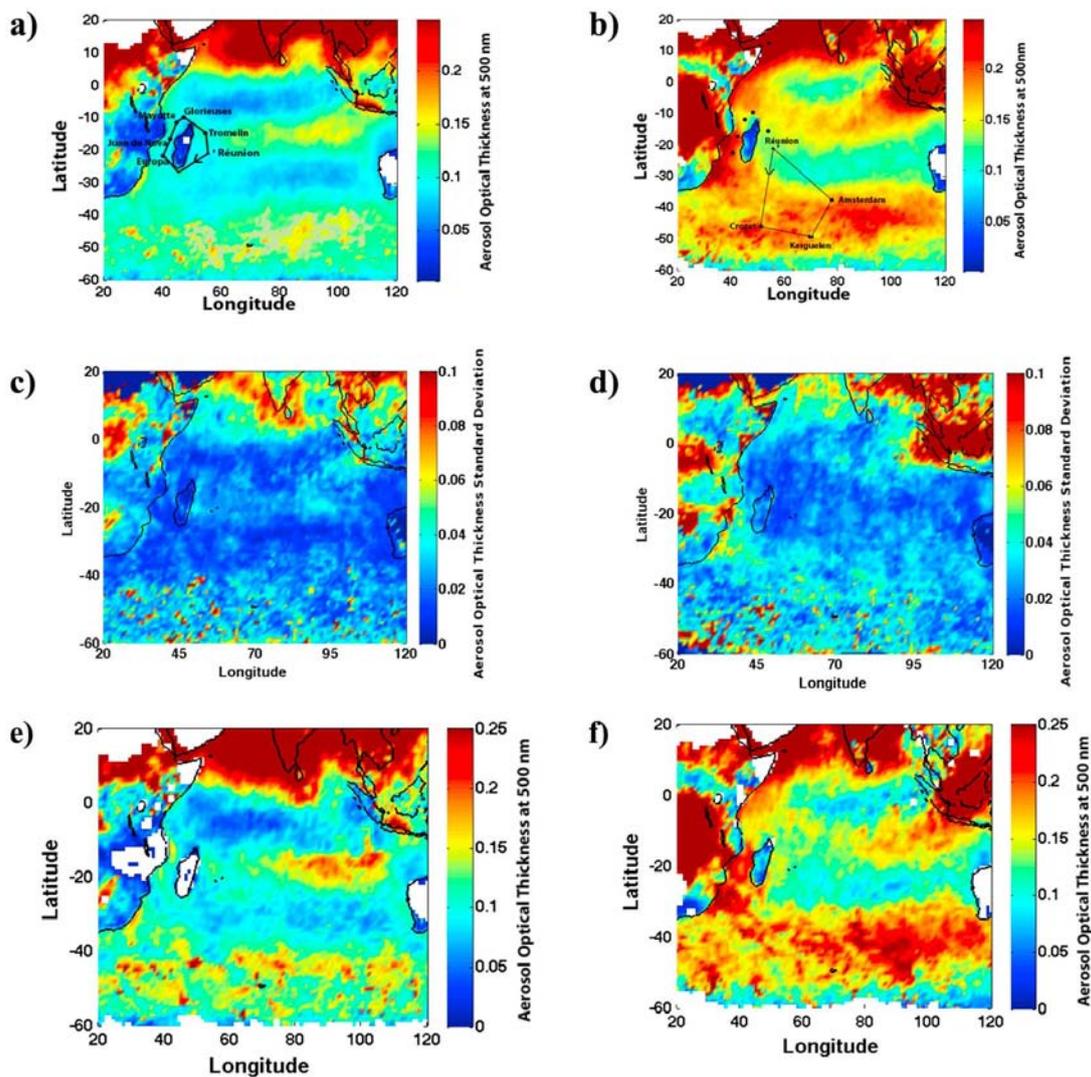


Figure 2. (a) Monthly mean AOT_{500} retrieved from MODIS for the month of April over the years 2002 to 2009 and track of the research vessel Marion Dufresne around Madagascar in April–May 2009. (b) Monthly mean AOT_{500} retrieved from MODIS for the month of September over the years 2002 to 2009 and track of the research vessel Marion Dufresne in August–September 2009. (c) Standard deviation of the monthly mean AOT_{500} retrieved from MODIS for the month of April over the years 2002 to 2009. (d) Standard deviation of the monthly mean AOT_{500} retrieved from MODIS for the month of September over the years 2002 to 2009. (e) Monthly mean AOT_{500} retrieved from MODIS for the month of April 2009. (f) Monthly mean AOT_{500} retrieved from MODIS for the month of September 2009.

Channel (MACAMOZ) campaign, and from La Réunion (21°S, 55°E) to Kerguelen Islands (50°S, 70°E) from 21 August to 17 September, 2009, during the so-called Kerguelen Aerosols Measurement from African Sources and pUmes Trajectory Reverse Analysis (KAMASUTRA) campaign. Figures 2a and 2b show the tracks of the two campaigns superimposed on the mean AOT at 500 nm retrieved over Indian Ocean from MODIS Aqua in April (Figure 2a) and September (Figure 2b) from 2002 to 2009. Such information gives climatology of the aerosol loading in the area for the two periods. One can see that the aerosol loading in April (Figure 2a) around Madagascar is low ($AOT_{500} < 0.1$): this is not the Southern Hemisphere BB season and the free

troposphere is quite clean of aerosol. The main contribution in the central Indian Ocean is due to emissions from the Indian subcontinent and Southeast Asia with a mean $AOT_{500} \sim 0.15 \pm 0.04$.

[11] A more important aerosol loading is noticed between La Réunion and Kerguelen Islands in September (Figure 2b) characterized by higher mean $AOT_{500} \sim 0.2$ and a larger footprint on the southern part of the Indian Ocean. Note that the contribution of Indonesia is enhanced compared with the previous period. The two plumes are mainly due to the contributions of biomass burning that occur during this season. One can notice the stream of air masses loaded in BB smoke exiting off the South-Southeast Africa toward

south Australia [Annegarn *et al.*, 2002] and the one going from Indonesia–Malaysia to the La Réunion area during the Southern Hemisphere BB season [Dufлот *et al.*, 2010].

[12] Figures 2c and 2d show the standard deviation of the monthly mean AOT_{500} over the years 2002–2009: this gives the temporal variability of the aerosol loading patterns from one year to another for the two periods. The standard deviation of AOT_{500} along the MACAMAZ campaign's track (Figure 2c) is low (<0.03), which suggests that the low aerosol loading in this area in April is quite constant from one year to another. Figure 2e shows that the situation is quite similar to the climatological pattern for April 2009. The standard deviation of AOT_{500} along the KAMASUTRA campaign's track (Figure 2d) is below 0.05; as the mean AOT_{500} in the plume exiting off the South-Southeast Africa toward the Southwestern Indian Ocean is larger than 0.15 and can reach 0.3 in the plume center, this suggests that this plume is present every year in September. Figure 2e shows that the situation is very close to the climatological pattern for September 2009.

[13] Consequently, the MACAMAZ campaign around Madagascar in April 2009 was focused on testing the instrumental set up and on retrieving the optical properties of the marine aerosols trapped in the marine boundary layer (MBL) while the KAMASUTRA campaign between La Réunion and Kerguelen Islands in September 2009, taking place during the Southern Hemisphere BB season, was focused on retrieving the optical properties of the BB aerosols.

2.2. GIRAFE-FLEXPART

[14] The GIRAFE (reGlonal ReAl time Fire plumEs) v3 model combines the MODIS fire counts system with the FLEXPART 6.2 Lagrangian model: at each fire pixel location detected by MODIS, a number of numerical particles is emitted and advected by the FLEXPART 6.2 code. The 0.5×0.5 gridded fire-counts are corrected for spatial variability in the frequency of satellite overpasses and missing observations. FLEXPART version 6.2 is a Lagrangian particle dispersion model [Stohl *et al.*, 2005], which simulates the transport and dispersion of linear tracers and treats advection and turbulent diffusion by processing the trajectories of a multitude of particles. The FLEXPART model was driven by global wind field data from ECMWF, with a horizontal resolution of 1×1 degree and 60 vertical levels, and a temporal resolution of 4 h. During the measurement campaign, daily GIRAFE simulations over 5 days in forecast mode were performed in order to anticipate the crossing of a BB plume. The particles were injected above fire pixels for 6 h. As recommended by Dentener *et al.* [2006], particles were emitted up to 2000 m agl (above ground level) for each fire pixel detected by MODIS.

3. Data Analysis

[15] In this section, the lidar calibration is first explained (Section 3.1). We then present the method used to inverse the lidar signal using the AOT simultaneously measured by Sun photometer (Section 3.2). Only marine aerosols were encountered during the MACAMAZ campaign around Madagascar during the early winter season. We thus use the acquired data to characterize the MBL and the optical properties (i.e., the vertical profile of aerosol extinction

coefficient and the representative backscatter-to-extinction ratio BER_λ at the wavelength λ , as well as the lidar ratio LR_λ – which is the inverse of the BER_λ) of the marine aerosols in this part of the Indian Ocean (Section 3.2.1). A BB aerosol layer was encountered during the KAMASUTRA campaign toward Kerguelen Islands during the Southern Hemisphere BB season. We use the AOT simultaneously measured by Sun photometer to characterize the vertical expansion of the BB aerosol loaded layer, as well as its optical properties (Section 3.2.2.1). In Section 3.2.2.2, we use the instrumental constant computed in Section 3.1 to inverse nighttime lidar profiles (and other times without Sun photometer) and to access the evolution with time of the aerosols optical properties and extinction profiles during the crossing of the encountered BB aerosol plume.

3.1. Lidar Calibration

[16] After correction of the sky radiance, the lidar equation gives the range-corrected signal $S(z)$ for the emitted wavelength of $\lambda = 355$ nm as a function of the range z , the total (molecular and aerosol) backscatter $\beta_{355}(z)$ and extinction coefficients $\alpha_{355}(z)$ [Measures, 1984]:

$$S(z) = \frac{C_\lambda}{(z_0 - z)^2} \cdot F(z) \cdot \beta_{355}(z) \cdot \exp\left(-\frac{2}{\cos\theta} \cdot \int_{z_0}^z \alpha_{355}(z') \cdot dz'\right) \quad (1)$$

where θ is the pointing angle, C_λ is a constant which characterizes the overall efficiency of the lidar system implemented at the altitude z_0 and $F(z)$ is the overlap factor (see Figure 1). In analog mode the instrumental constant is a function of optical efficiency, reception area, laser energy, amplification and photomultiplier gain.

[17] In order to calibrate the lidar (i.e., compute the instrumental constant C_λ), we used simultaneously (5 min around the lidar acquisition time) Sun photometer-derived AOT_{355} . In clear sky condition, above the aerosol layers where only molecular scattering occurs at the altitude z_m , the lidar equation becomes for a vertically pointing lidar:

$$S(z_m) = \frac{C_\lambda}{(z_0 - z)^2} \beta_{355}^m(z_m) \cdot \exp\left[-2 \left(\underbrace{\tau_{355}^a(z_0, z_m)}_{AOT_{355}} + \tau_{355}^m(z_0, z_m) \right)\right] \quad (2)$$

where $\beta_{355}^m(z_m)$ is the molecular backscatter and $\tau^m(z_0, z_m)$ the optical thickness at 355 nm between z_0 and z_m which are determined from climatological radiosounding profiles (pressure, temperature) using the polynomial approximation proposed by Nicolet [1984].

[18] Then, C_λ is given against the Sun photometer measurements by:

$$C_\lambda = \frac{(z_0 - z)^2}{\beta_{355}^m(z_m)} S(z_m) \cdot \exp[2(AOT_{355} + \tau_{355}^m(z_0, z_m))] \quad (3)$$

Figure 3a shows the mean vertical profile of the apparent backscatter coefficient derived from the lidar signals used for the calibration superimposed on the simulated pure molecular backscatter coefficient. The altitude reference at which only molecular scattering occurs was taken between 3 and 4 km.

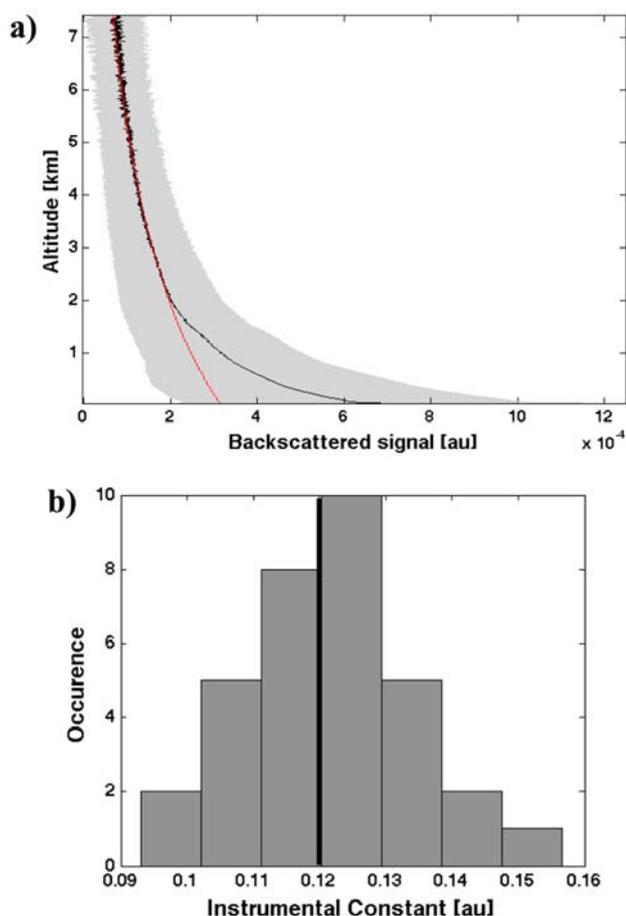


Figure 3. (a) Mean (black line) and standard deviation (gray area) of the vertical profile of the apparent backscatter coefficient used for the lidar calibration. The red line shows the simulated pure molecular scattering signal used for the calibration. (b) Histogram of the retrieved C_λ . The mean C_λ (0.12 [au]) is given by the black vertical bar.

[19] Figure 3b shows the histogram of the retrieved C_λ . The mean C_λ is 0.12 [au] with a standard deviation of 0.014 [au]. The mean C_λ will be used in Section 3.2.2.2 to inverse lidar signals without any simultaneous Sun photometer measurements.

3.2. Lidar-Derived Aerosol Optical Properties

[20] In this section, Sun photometer measurements are used to constrain the lidar inversion [Chazette, 2003]. The backscatter lidar equation is underdetermined due to its dependence on two unknowns: aerosol backscatter (or extinction) coefficient and BER_{355} [Klett, 1985; Chazette, 2003]:

$$\beta_{355}^m(z) = \frac{(z - z_0)^2 \cdot S(z) \cdot Q(z)}{(z_r - z_0)^2 \cdot \frac{S(z_r)}{\beta_{355}^m(z_r)} + \frac{2}{BER_{355}} \cdot \int_z^{z_r} (z' - z_0)^2 \cdot S(z') \cdot Q(z') \cdot dz'} \quad (4)$$

with $Q(z) = \exp\left[2 \cdot \left(\frac{3}{8\pi \cdot BER_{355}} - 1\right) \cdot \int_z^{z_r} \alpha_{355}^m(z') \cdot dz'\right]$

where z_r is the reference altitude corresponding to the integration constant of the Bernoulli differential equation.

[21] Hence, lidar data are inverted to retrieve both the vertical profile of the aerosol extinction coefficient and BER_{355} using the Bernoulli's differential form of the propagation equation [Klett, 1985] and a dichotomous approach where BER_{355} is increased (decreased) if the lidar-derived optical thickness is larger (lower) than the Sun photometer-derived AOT_{355} simultaneously acquired. The dichotomous approach is stopped when the difference between estimated and calculated optical thickness becomes less than the error on AOT_{355} . It is noteworthy that this method gives access to a height-independent BER_{355} value.

[22] Hereafter, we investigate the data acquired during the MACAMAZ and KAMASUTRA campaigns to document the optical properties of the marine and BB aerosols. We used two criteria to discriminate the cases containing only marine aerosols from the cases containing marine and another type of aerosols: 1) the shape of each lidar range-corrected signal (corrected from the sky background and the solid angle) is compared to the shape of a simulated signal assuming only Rayleigh backscattering; 2) the simultaneously (5 min around the lidar acquisition time) acquired Sun photometer-derived AOT_{355} is compared to a threshold equal to 0.10. If the Sun photometer-derived AOT_{355} is below this threshold and if the shape of the simultaneously acquired lidar signal matches the shape of the pure Rayleigh simulated signal except in the MBL (supposed to be less than 1 km thick), then the case is classified as containing only marine aerosols. Using this approach, it appears that no BB aerosols events have been detected during the MACAMAZ campaign, and that a BB aerosols plume was crossed during the KAMASUTRA campaign. Thus, we use the data acquired during the MACAMAZ campaign to document only the optical properties of the marine aerosols (Section 3.2.1), and we use the data acquired during the KAMASUTRA campaign to document the optical properties of the BB and marine aerosols (Section 3.2.2).

3.2.1. MACAMAZ Campaign: Optical Properties of the Marine Aerosols

[23] Figure 4 (top left) shows the synthesis of the Sun photometer measurements during the whole MACAMAZ campaign. We use two independent variables: AOT_{380} and Ångström exponent (a) between 500 and 675 nm. Mean AOT_{380} is 0.08 and mean a is 0.63. One can notice that all AOT_{380} are below 0.1 and most a are between 0.2 and 1, which correspond to typical values of optical thickness and Ångström exponent for marine aerosols [Smirnov *et al.*, 1995] in open ocean. Despite the occurrence of some cases with $a > 1$ - which could correspond to BB aerosols events - no such event has been encountered using the approach described here above.

[24] Figure 5a shows the histogram of the BER_{355} (LR_{355}) retrieved during the MACAMAZ campaign for the whole troposphere. The mean BER_{355} (LR_{355}) is 0.039 sr^{-1} (26 sr) with a variability of 0.009 sr^{-1} (6 sr). The sources of uncertainties are discussed in section 4.2.

[25] The mean value of $BER_{355} = 0.039 \text{ sr}^{-1}$ (mean $LR_{355} = 26 \text{ sr}$) is used to assess the vertical profile of aerosol extinction coefficient in the MBL during the campaign (Figure 4, bottom left). No extinction is given below the full-overlap height (120 m, Figure 1). One can observe that the MBL aerosol layer extends up to $\sim 0.7 \text{ km}$ above mean sea level (amsl). This result agrees with the works of Flamant

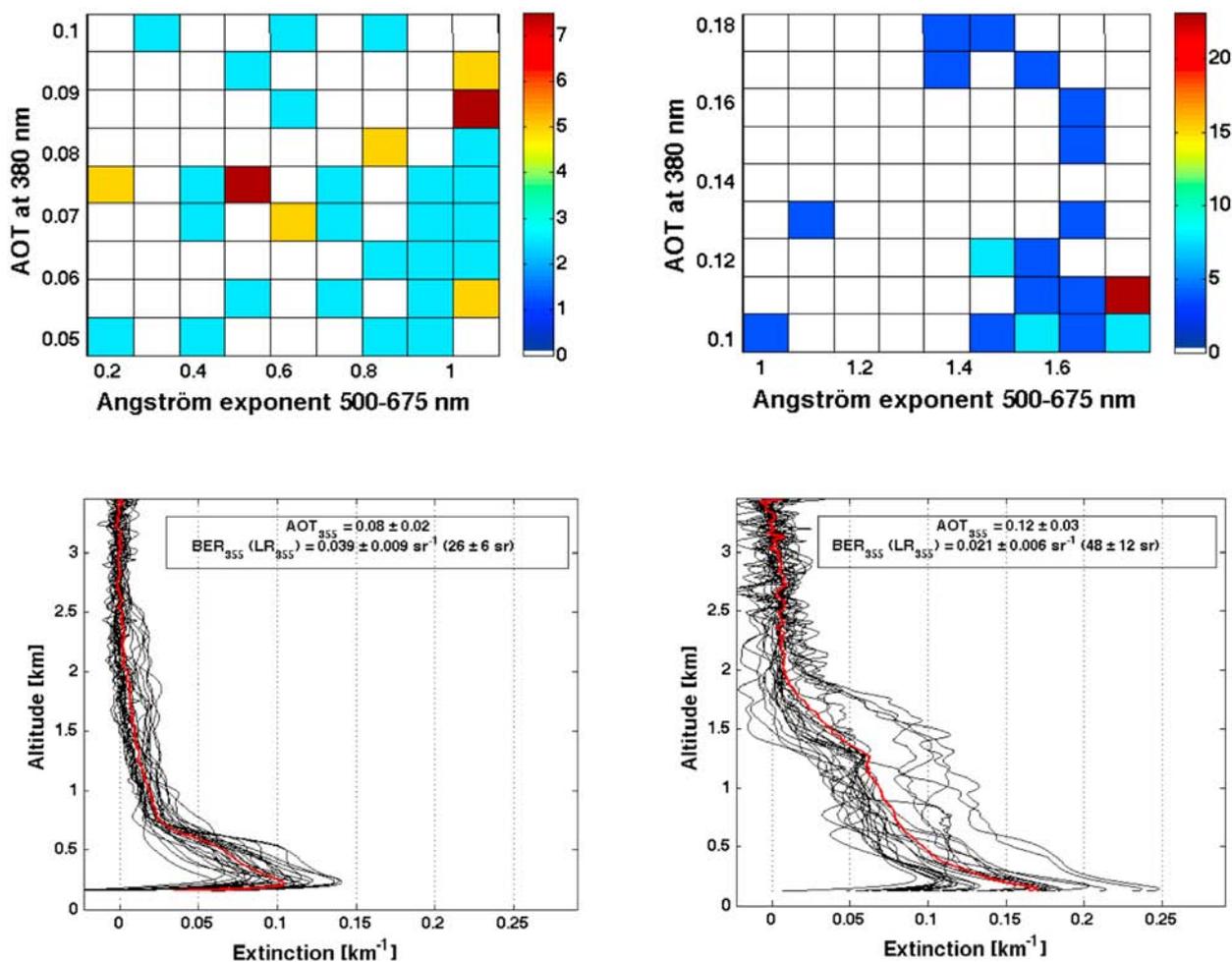


Figure 4. (left) MACAMOZ campaign; (right) KAMASUTRA campaign. (top) Cross histogram of the AOT at 380 nm and the Ångström exponent between 500 and 675 nm (relative occurrence in [%], 26 measurements for each campaign). (bottom) Aerosol extinction coefficient profiles (black) and mean aerosol extinction coefficient profile (red).

et al. [1998], *Russell et al.* [1998], and *Welton et al.* [2002] showing a MBL height in open ocean between ~ 0.45 and ~ 1 km.

3.2.2. KAMASUTRA Campaign: Optical Properties of the Biomass Burning Aerosols

[26] The KAMASUTRA campaign was characterized by almost steady cloudy conditions. However, using the same approach as described here above (Section 3.2), a BB aerosols plume event was identified during the campaign between 14th and 16th September from (31°S, 69°E) to (24°S, 59°E). We focus in this section on the data collected during the crossing of this BB plume. We use two different methods to constrain the lidar data inversion: we first use simultaneously acquired Sun photometer measurements (Section 3.2.2.1) and we then use calibration values to derive AOT at times without Sun photometer, such as nighttime (Section 3.2.2.2).

[27] We assume hereafter that the marine aerosols are mixed with the BB aerosols above, i.e., that the MBL is not isolated from the free troposphere. The validity of this

hypothesis depends on the amount of turbulence at the layer interface [*Russell et al.*, 1998]. As we do not have data giving information on the (un)stability of the interface MBL-free troposphere, we chose to consider the most observed case in open ocean: the mixing between the two layers [*Russell et al.*, 1998; *Rasch et al.*, 2001; *Bates et al.*, 2002; *Welton et al.*, 2002; *Forêt et al.*, 2006]. Thus, we consider in the following a single aerosol layer containing mixed marine and BB aerosols.

3.2.2.1. Using Sun Photometer Measurements

[28] Figure 5 (top right) shows the synthesis of the Sun photometer measurements during the BB aerosols plume event using AOT_{380} and a as two independent variables. Over this period, the vessel track crossed a BB aerosol plume associated with $AOT_{380} = 0.12 \pm 0.03$ and $a = 1.52 \pm 0.21$.

[29] Figure 5b shows the histogram of the BER_{355} (LR_{355}) retrieved during the crossing of the BB aerosol plume (14–16 September) using the Sun photometer-derived AOT_{355} as a constraint for the inversion. A mean BER_{355} (LR_{355}) value of

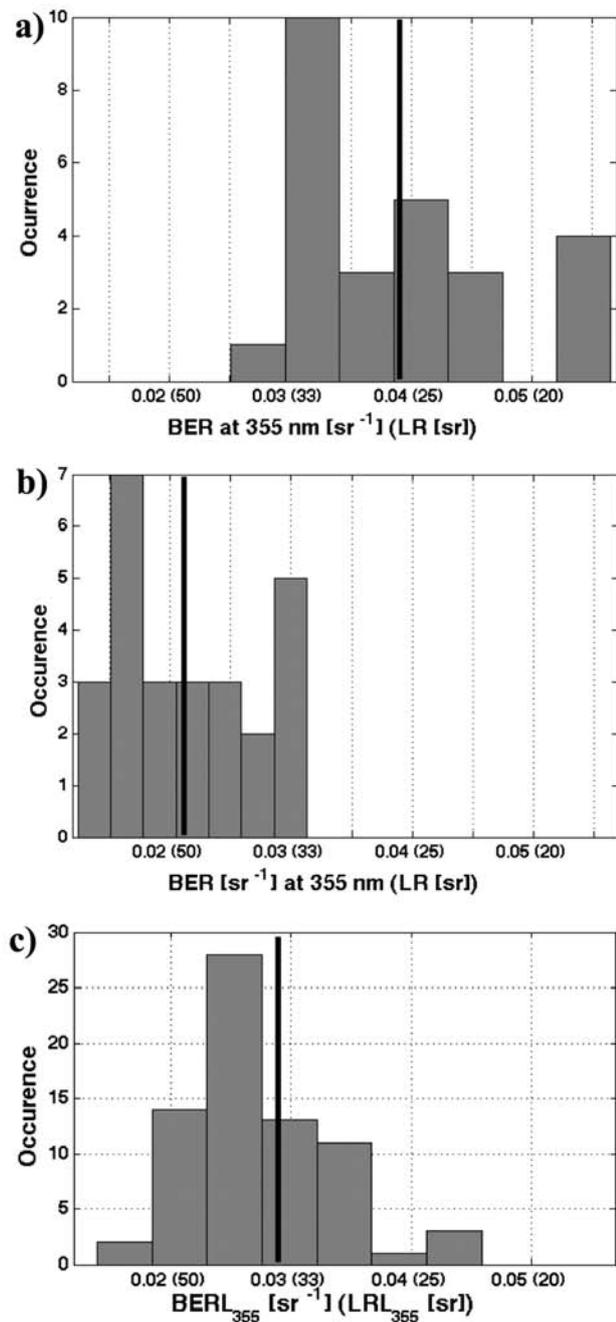


Figure 5. (a) Histogram of the BER_{355} (LR_{355}) retrieved during the MACAMOZ campaign. The mean BER_{355} (0.039 sr^{-1}) (mean $LR_{355} = 26 \text{ sr}$) is given by the black vertical bar. (b) Histogram of the BER_{355} retrieved during the crossing of the BB aerosol plume (14–16 September – KAMASUTRA campaign). The mean BER_{355} (0.021 sr^{-1}) (mean $LR_{355} = 48 \text{ sr}$) is given by the black vertical bar. (c) Histogram of the $BERL_{355}$ (LRL_{355}) retrieved during the crossing of the BB plume (14–16 September – KAMASUTRA campaign). The mean $BERL_{355}$ (0.029 sr^{-1}) (mean $LRL_{355} = 34 \text{ sr}$) is given by the black vertical bar.

0.021 sr^{-1} (48 sr) with a variability of 0.006 sr^{-1} (12 sr) has been calculated for the whole troposphere. As previously, the sources of uncertainties are discussed in section 4.2. This value is significantly different from the previous BER_{355} (LR_{355}) value determined during MACAMOZ campaign for marine aerosols ($BER_{355} = 0.039 \pm 0.009 \text{ sr}^{-1}$ or $LR_{355} = 26 \pm 6 \text{ sr}$). Comparing Figures 5a and 5b, one can see that the distributions of retrieved BER_{355} (LR_{355}) values are different, with little to no overlap between the two distributions.

[30] The mean value of $BER_{355} = 0.021 \text{ sr}^{-1}$ ($LR_{355} = 41 \text{ sr}$) is used to assess the vertical profile of aerosol extinction coefficient during the crossing of the BB aerosol plume (14–16 September). The mean aerosol extinction coefficient profile observed during the BB aerosol event is given in Figure 5 (bottom right). No extinction is given below the full-overlap height (120 m, Figure 1). One can observe that the marine+BB aerosol (MIX aerosol) layer extends up to $\sim 2 \text{ km}$ amsl. This result is in accordance with the results of Ramanathan *et al.* [2001] showing that aerosol layers can extend as high as 3 km above the Indian Ocean.

3.2.2.2. Using Calibration Values to Derive AOT

[31] In this section, lidar data are inverted using the same dichotomous approach as in the previous section, except that the constraining AOT_{355} is not the Sun photometer-derived AOT acquired simultaneously with the lidar signal, but the AOT-lidar ($AOTL_{355}$) retrieved via lidar calibration (Section 3.1):

$$AOTL_{355} = \frac{1}{2} \left[\ln \frac{C_{\lambda} \cdot \beta_{355}^m(z_m)}{S(z_m) \cdot (z_0 - z)^2} \right] - \tau_{355}^m(z_m) \quad (5)$$

We still focus here on the section of the track crossing the BB aerosol plume. Figure 6a gives the histogram of the retrieved $AOTL_{355}$. A mean $AOTL_{355}$ value of 0.12 with a variability of 0.05 has been calculated. Figure 6b shows the correlation plot between $AOTL_{355}$ and AOT_{355} . The correlation coefficient equals 0.88 (26 points), which shows that the two approaches give consistent results. Moreover, whereas Figure 6b shows some discrepancies between $AOTL_{355}$ and AOT_{355} values due to uncertainties on C_{λ} (see Section 4.2 for discussion on uncertainties), the mean $AOTL_{355}$ value equals the mean AOT_{355} one (0.12).

[32] Derived $AOTL_{355}$ values allow us to inverse lidar data without any simultaneous Sun photometer measurements, especially lidar data acquired during nighttime. Such an extrapolation to nighttime measurements is possible because the lidar is implemented in an air-conditioned box, which avoids drifts of laser energy due to variation of temperature. We can thus reasonably suppose that the calibration constant does not change between daytime and nighttime measurements. Figure 5c shows the histogram of the $BERL_{355}$ (LRL_{355}) calculated with the $AOTL_{355}$ retrieved during the 14–16 September period. $BERL_{355}$ (LRL_{355}) values have been averaged over ten values in order to reduce the statistical error on the retrieved $BERL_{355}$ (LRL_{355}) (Section 4.2), which gives one $BERL_{355}$ (LRL_{355}) value every $\sim 20 \text{ min}$. Cloudy profiles were removed from the data set. For 80% of the remaining profiles, the procedure has been convergent and a mean $BERL_{355}$ (LRL_{355}) value of 0.029 sr^{-1} (34 sr) with a variability of 0.006 sr^{-1} (7 sr) has been calculated for the whole troposphere. Such a value is within the error bar of the

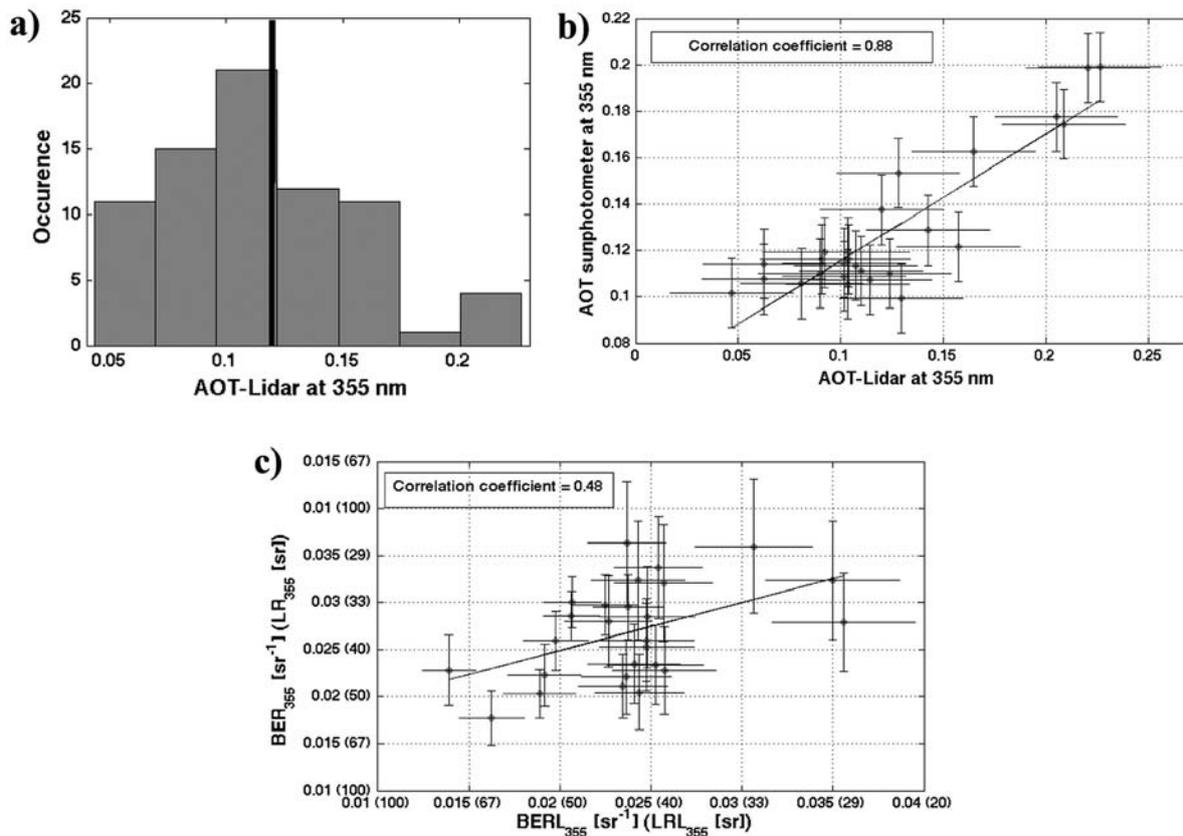


Figure 6. (a) Histogram of the $AOTL_{355}$ derived from lidar measurements and calibration. The mean $AOTL_{355}$ (0.12) is given by the black vertical bar. (b) Correlation plot between the $AOTL_{355}$ derived from lidar calibration values versus the AOT_{355} retrieved from Sun photometer measurements. The correlation coefficient equals 0.88 (26 points). (c) Correlation plot between $BERL_{355}$ (LRL_{355}) versus the BER_{355} (LR_{355}). The correlation coefficient equals 0.48 (26 points). All data were acquired during the crossing of the BB aerosol plume (14–16 September). See Section 4.2 for error bars calculation.

one deduced from the synergy between lidar and Sun photometer (see Section 4.2 for uncertainties calculation). However, the correlation coefficient between BER_{355} (LR_{355}) and $BERL_{355}$ (LRL_{355}) is 0.48 (26 points, Figure 6c), which is lower than the one between $AOTL_{355}$ and AOT_{355} (0.88). This can be explained by the high sensitivity of the BER retrieval technique to the value of the AOT used to constrain the inversion (see Section 4.2). Investigating the distribution of the retrieved $BERL_{355}$ (LRL_{355}) (Figure 5c), one can notice some cases with $BERL_{355} > 0.030$ ($LRL_{355} < 33$), which implies that the crossed plume is not uniformly loaded in aerosols. These high (low) values of $BERL_{355}$ (LRL_{355}) may also result from underestimated $AOTL_{355}$ (Figure 6b).

[33] Figure 7a shows the evolution with time of AOT_{355} and $AOTL_{355}$ during the crossing of the BB plume (values of error bars are explained in Section 4.2). One can see that AOT_{355} and $AOTL_{355}$ values are within each other's error bars. $AOTL_{355}$ values stay between 0.05 and 0.13 on the 14/09, increase to 0.2 on the 15/09 and stay around 0.15 on the 16/09. Figure 7b shows the evolution with time of the retrieved BER_{355} (LR_{355}) and $BERL_{355}$ (LRL_{355}) during the crossing of the BB plume (see Section 4.2 for the error bars calculation).

One can see that BER_{355} (LR_{355}) and $BERL_{355}$ (LRL_{355}) values are within each other's error bars. $BERL_{355}$ (LRL_{355}) evolves mostly between ~ 0.025 and ~ 0.045 sr^{-1} (~ 22 – 40 sr) on the 14/09, decreases (increases) to ~ 0.02 sr^{-1} (~ 50 sr) on the 15/09, and finally stays between ~ 0.02 and ~ 0.03 sr^{-1} (~ 33 – 50 sr) on the 16/09. It seems therefore that the part of the plume crossed on the 15/09 is the one containing the more BB aerosols (highest $AOTL_{355}$ and lowest $BERL_{355}$). One can also note that $BERL_{355}$ (LRL_{355}) decreases (increases) while $AOTL_{355}$ increases: the correlation coefficient between $BERL_{355}$ and $AOTL_{355}$ is -0.60 (72 points, Figure 7c). This suggests that the increase of the optical thickness is mainly due to the increase of the BB aerosol concentration.

[34] Three extinction profiles (one per day) have been selected and are shown in Figure 8 (no extinction is given below the full-overlap height of 120 m as shown in Figure 1). We chose extinction profiles coinciding with Sun photometer measurements to compare the results obtained from the two retrieval methods (Sun photometer measurements versus calibration values). The related time, $AOTL_{355}$, AOT_{355} , $BERL_{355}$ and BER_{355} are shown for each profile. One can first

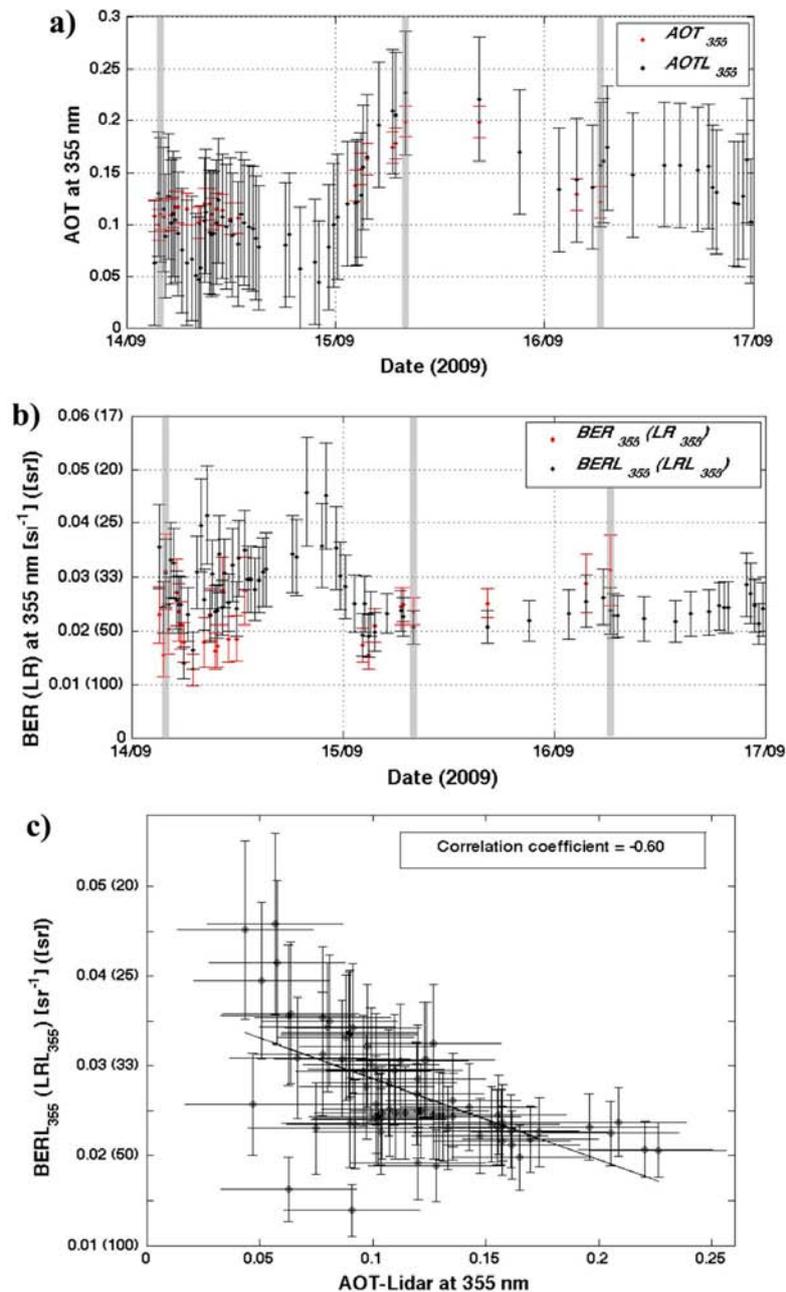


Figure 7. (a) Temporal evolution of the retrieved AOT_{355} and $AOTL_{355}$ during the crossing of the BB plume. The error bars are also given. (b) Temporal evolution of the retrieved BER_{355} and $BERL_{355}$ during the crossing of the BB plume. The gray bars stand for the extinction profiles shown in Figure 8. (c) Correlation plot between the $BERL_{355}$ (LRL_{355}) versus the $AOTL_{355}$. The correlation coefficient equals -0.60 (72 points). See Section 4.2 for error bars calculation.

notice that the shapes of the extinction profiles retrieved using the calibration values to derive the $AOTL_{355}$ are in quite good accordance with the shape of the extinction profiles retrieved using Sun photometer measurements (AOT_{355}). However, the selected profiles show a slightly higher extinction when retrieved via $AOTL_{355}$. This can be explained by the fact that the related $AOTL_{355}$ are slightly higher than the related AOT_{355} for the selected cases.

[35] The height of the aerosol layer is ~ 1.8 km on the 14/09 profile (Figure 8a), ~ 3 km on the 15/09 profile (Figure 8b) and ~ 2.5 km on the 16/09 profile (Figure 8c). This result is also in accordance with the results of Ramanathan *et al.* [2001] showing that aerosol layers can extend as high as 3 km above the Indian Ocean. The 15/09 profile (Figure 8b) shows an enhanced aerosol layer between ~ 0.7 and ~ 1.4 km amsl, which could be related to the highest $AOTL_{355}$ and

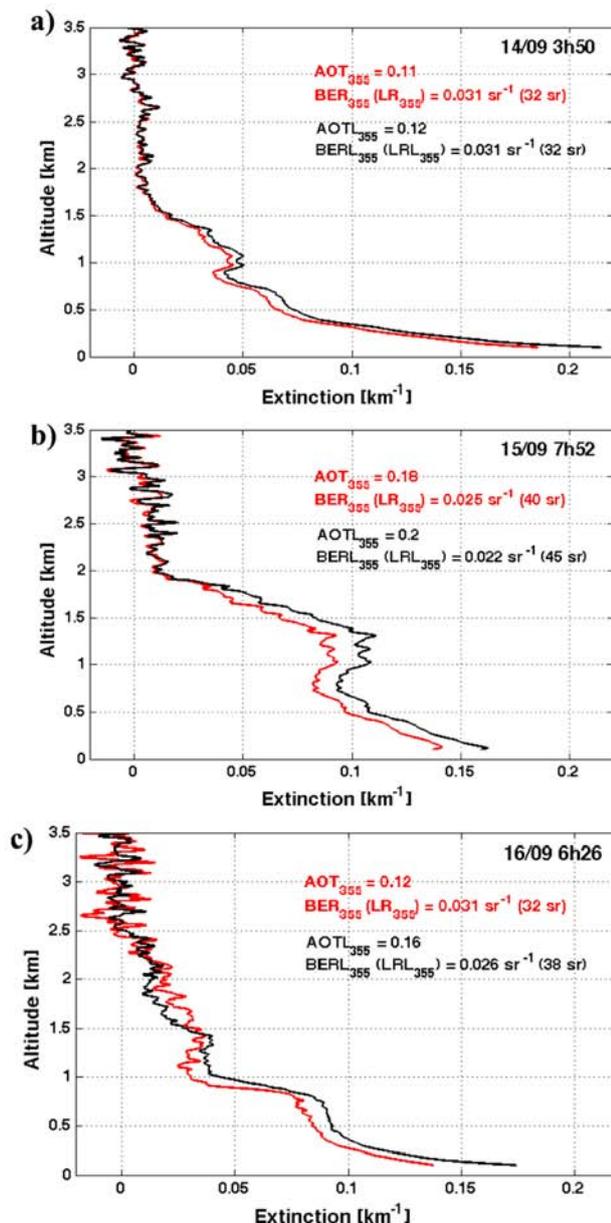


Figure 8. Aerosol extinction coefficient profiles retrieved from lidar and Sun photometer measurements (red) and aerosol extinction coefficient profiles retrieved from lidar measurements using calibration values to derive $AOTL_{355}$ (black) on (a) 14/09 3h50, (b) 15/09 7h52, and (c) 16/09 6h26. Times are Universal Time (UT).

lowest (highest) $BERL_{355}$ (LRL_{355}) observed on the 15/09 (Figure 7). This layer is therefore likely to contain mostly BB aerosols.

4. Discussion

4.1. Origin of the Aerosol Loaded Air Masses: Comparison With the GIRAFE Model

[36] The mean tropospheric lifetime of BB aerosols is usually estimated being in the 4 to 7 days range [Andreae,

1995; Rasch *et al.*, 2000; Edwards *et al.*, 2006]. In order to take into account long-range transports of aerosol plumes, seven days forward GIRAFE simulations were performed for each day from 7 to 15 September in order to compare GIRAFE results and lidar-Sun photometer observations for the 14–16 September period and to identify the origin of the air masses. Particles were emitted up to 2000 m agl (Section 2.2) for each fire pixel detected by MODIS (Section 2.1.4 and 2.2). Geographical and height (agl) distributions of the particles remaining in the troposphere between the 14 and 16 September have been averaged in a $1^\circ \times 1^\circ$ gridded map on this three day period (Figure 9). Note that the geographical distribution of the particles (number of particles in a $1^\circ \times 1^\circ$ square) is given in a log scale. The extreme ship positions during the investigated period ($[31^\circ\text{S}, 68^\circ\text{E}]$ and $[24^\circ\text{S}, 59^\circ\text{E}]$) are highlighted by the black crosses. Five main BB plumes can be identified in Figure 9: one plume exiting off southeast South America, crossing the South Atlantic ocean and joining the second plume exiting off South-Southeast Africa and Madagascar toward Australia, a third one exiting off Indonesia-Malaysia toward the southwestern Indian Ocean, a fourth exiting off northwest Australia and joining the Indo-Malaysian plume, and a fifth one exiting off northwest southern Africa toward South America. This simulated BB plume distribution is in accordance with previous studies on Southern Hemisphere pollution transportation patterns such as those by *Annegarn et al.* [2002] and *Edwards et al.* [2006]. Moreover, the long-range transport pathway at high tropospheric altitude from Southeast Asia and Indonesia-Malaysia toward the southwestern Indian Ocean is clearly visible in Figure 9b, showing a transportation altitude of ~ 13 km [Dufлот *et al.*, 2010].

[37] One can see that the ship is on the edge of the BB plume during this period and almost at the junction between the BB plumes coming from South America, Southern Africa and Southeast Asia. This confirms the BB origin of the encountered aerosol plume and can explain the relatively low AOT_{355} measured during the crossing of the plume (~ 0.1 – 0.2). To assess the relative contribution of each of the BB emission areas (South America, Southern Africa and Asia-Oceania) to the detected BB aerosol plume, we performed the same set of simulations separately for each of these three areas and counted the number of particles forming the detected plume. The resulting relative contributions are: 50% from South America, 44% from Southern Africa and 6% from Asia-Oceania. This agrees with the work of *Dufлот et al.* [2010] showing that the area contributing the most to the pollutant concentration in the Réunion Island area ($21^\circ\text{S}, 55^\circ\text{E}$), which is ~ 600 km to the location of the detected BB plume, is South America in September. However, the relative contributions by area calculated in our present work should be considered carefully for the following reasons: 1) the same number of particles was emitted from each fire, independently from the type of biomass burnt; 2) emitted particles were uniformly distributed in altitude and emitted at the same injection height (2 km agl), independently from the location of the fire; 3) the processes affecting aerosols during their transportation were not taken into account, such as chemical reactions, growth and resulting deposition. These two last limitations of the model should also be taken into account in the exploitation of the simulated vertical distribution of the aerosols. One can see in Figure 9b that the simulated mean

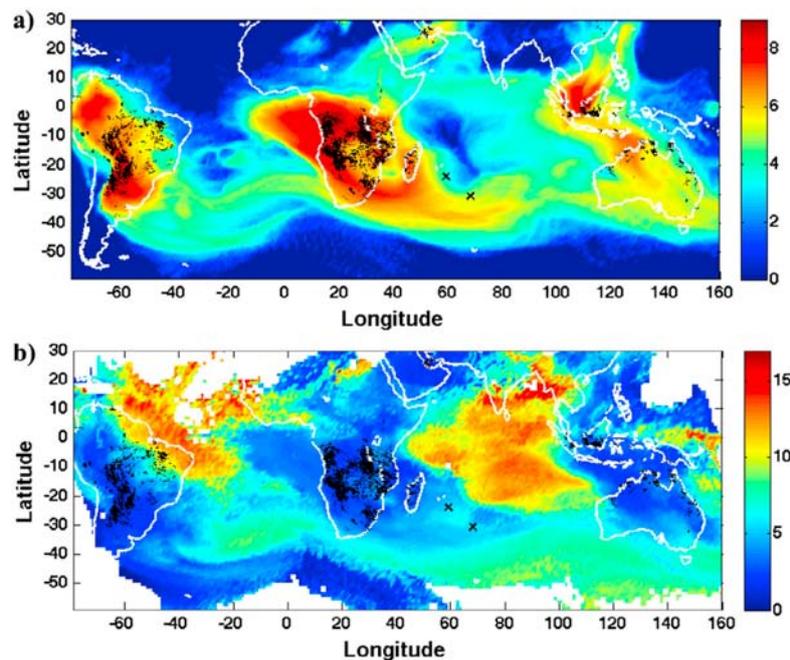


Figure 9. $1^\circ \times 1^\circ$ averaged particles (a) geographical [arbitrary unit] and (b) height [km] distributions for particles remaining in the atmosphere between 14 and 16 September, 2009 for 7 days GIRAFE simulations from 7 to 15 September, 2009. Black dots are fires detected by MODIS and black crosses are extreme ship positions on 14 and 16 September, 2009 ($[31^\circ\text{S}, 69^\circ\text{E}]$ and $[24^\circ\text{S}, 59^\circ\text{E}]$).

particles height between the two extreme ship positions is around 6 km amsl, which is not in accordance with the aerosol layer height observed from lidar measurements (up to ~ 2.7 km, Figures 4 and 8). It seems therefore that the GIRAFE model is a powerful tool to simulate the horizontal distribution of BB aerosols, but is not suitable to simulate their height distribution. A new version of GIRAFE (v4) using the FLEXPART 8.2 model should be released soon. More detailed settling parameterization for aerosols is implemented in the FLEXPART 8.2 model, which should improve the ability of GIRAFE to simulate BB aerosols height distribution.

4.2. Uncertainties on the Retrieved BER Values

[38] A direct-inverse model has been developed in order to assess uncertainties on the retrieval of marine and biomass burning aerosol optical properties.

[39] In case of marine aerosol (Section 3.2.1) a Gaussian aerosol layer has been simulated between 0 and 0.7 km amsl with an AOT_{355} of 0.08 and a BER_{355} of 0.039 sr^{-1} corresponding to the mean values observed during MACAMOZ campaign. Four sources of uncertainties have been identified: i) the uncertainty on the a priori knowledge of the vertical profile of the molecular backscatter signal, ii) the uncertainty on the lidar signal in the altitude range used for the normalization, iii) the statistical fluctuations in the lidar signal associated with random detection processes and iv) the uncertainty on AOT used to constraint lidar inversion (0.015, Section 2.1.2). The uncertainty on the a priori knowledge of the molecular contribution has been assessed to be lower than 2% [Chazette *et al.*, 2010] using a comparison

between several vertical sounding (i.e., radiosounding). The uncertainty on the lidar signal in the altitude range used for the normalization has been assessed to be lower than 6% [Royer *et al.*, 2011]. The statistical fluctuation in the lidar signal is here neglectable as Signal-to-Noise ratio of range-corrected signal is ~ 100 at the reference. The uncertainty due to AOT value has been assessed using a Monte Carlo approach as in Chazette *et al.* [2001] with 1000 realizations assuming a normal probability density function with a standard deviation of 0.015 around different values of AOT_{355} . Figure 10a shows the relative uncertainty on the retrieved BER for marine aerosols as a function of the AOT_{355} . The standard deviation of 0.015 on AOT_{355} has been found to be the major source of uncertainty (between 87 and 97% of total uncertainty). The different sources of uncertainty have been supposed to be independent which lead to an overall uncertainty corresponding to 18 to 36% (~ 0.007 to 0.014 sr^{-1}) of error on BER_{355} values for marine aerosols for a mean AOT_{355} of 0.12 and 0.04 respectively. The mean uncertainty on BER_{355} for marine aerosols equals 0.009 sr^{-1} (6 sr).

[40] In case of the mixing between BB and marine (MIX) aerosols (Section 3.2.2) a Gaussian aerosol layer has been simulated between 0 and 2 km amsl with an AOT_{355} of 0.12 and a BER_{355} of 0.021 sr^{-1} corresponding to the mean values observed during the crossing of the BB plume during the KAMASUTRA campaign. The same four sources of uncertainties as in the case of marine aerosols have been identified. Figure 10b shows the relative uncertainty on the retrieved BER for MIX aerosols as a function of the AOT_{355} . The standard deviation of 0.015 around the values of

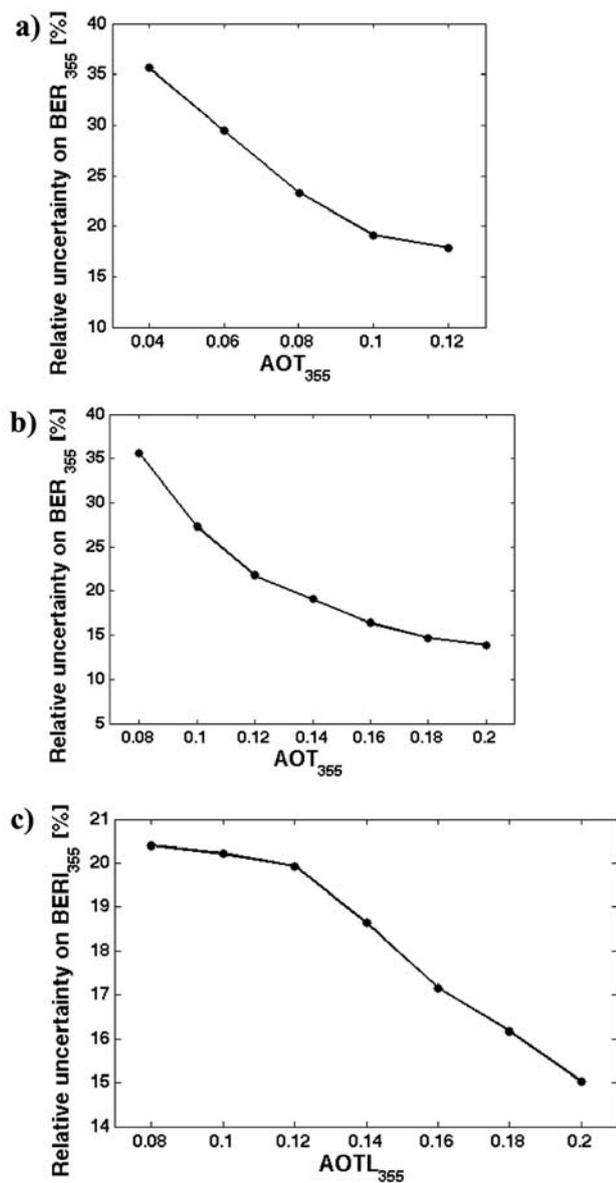


Figure 10. (a) Relative uncertainty on the retrieved BER_{355} as a function of the AOT_{355} for the marine aerosols. (b) Relative uncertainty on the retrieved BER_{355} as a function of the AOT_{355} for the MIX aerosols. (c) Relative uncertainty after temporal averaging on the retrieved BER_{355} as a function of the AOT_{355} for the MIX aerosols.

AOT_{355} has been found to be the major source of uncertainty (between 80 and 97% of total uncertainty). The different sources of uncertainty have been supposed to be independent which lead to an overall uncertainty corresponding to 14 to 36% (~ 0.003 to 0.008 sr^{-1}) of error on BER values for MIX aerosols. The mean uncertainty on BER_{355} (LR_{355}) for the mixed marine and BB aerosols equals 0.004 sr^{-1} (9 sr).

[41] In case of BER_{355} retrieved thanks to the instrumental constant C_λ through AOT_{355} for MIX aerosols (Section 3.3), a Gaussian aerosol layer has been simulated between 0 and 2 km amsl with an AOT_{355} of 0.12 and a

BER_{355} of 0.029 sr^{-1} corresponding to the mean values retrieved during the crossing of the BB plume. One additional source of uncertainty has to be considered in this case: relative uncertainty on C_λ (12%) which leads to an uncertainty on AOT_{355} of 0.06. In order to reduce the induced uncertainty on the retrieved BER_{355} , lidar profiles have been averaged over ten profiles. Uncertainty on AOT_{355} has been found to be the major source of uncertainty (>98% of total uncertainty on BER_{355}). BER_{355} have been averaged over 10 profiles in order to reduce the uncertainty of the retrieval. Figure 10c shows the final relative uncertainty after temporal averaging on the retrieved BER_{355} for MIX aerosols as a function of the AOT_{355} . The different sources of uncertainty have been supposed to be independent which lead to an overall uncertainty corresponding to 15 to 20% (~ 0.004 to 0.006 sr^{-1}) of error on BER values for MIX aerosols. The mean uncertainty on BER_{355} (LR_{355}) for the mixed marine and BB aerosols equals 0.005 sr^{-1} (6 sr).

4.3. Comparison With Other Studies

[42] Table 1 shows retrieved BER_λ (LR_λ) values from previous studies for BB and marine aerosols, as well as the used lidar wavelengths and the measurement (for marine aerosols) and source (for marine+BB aerosols) areas. Table 1 is not exhaustive, but rather a summary of what can be found in the literature about BER_λ (LR_λ) for marine aerosols and for BB aerosols coming from Southern Africa and South America. The values presented in Table 1 are from direct ground based lidar measurements that do not rely on assumptions of particle composition, shape, or size (except for data from *Catrrall et al.* [2005]). Note that no values of BER_{355} for marine aerosols or for BB aerosols coming from Southern Africa have been found in the literature. Considering the weak spectral dependence (low a) of marine aerosols in the UV and visible spectral domains, the values retrieved in the frame of this study are in agreement with the results of previous works. The mean BER_{355} (LR_{355}) of 0.039 ± 0.009 sr^{-1} (26 ± 6 sr) we derived for marine aerosols is nearly identical to the mean of those previously retrieved, which go from $BER_{523} = 0.030 \pm 0.005$ sr^{-1} ($LR_{523} = 33 \pm 6$ sr) [*Welton et al.*, 2002] to $BER_{532} = 0.043 \pm 0.009$ sr^{-1} ($LR_{532} = 23 \pm 5$ sr) [*Müller et al.*, 2007], both in the tropical northern Indian Ocean.

[43] Previous retrieved BER_{355} (LR_{355}) values for Eastern European BB aerosols range from 0.015 ± 0.006 sr^{-1} (70 ± 30 sr) [*Amiridis et al.*, 2009] to 0.017 sr^{-1} (59 sr) [*Balis et al.*, 2003]. *Chazette et al.* [2007] give BER_{355} (LR_{355}) of 0.008 ± 0.003 sr^{-1} (125 ± 35 sr) over southern Niger. For Southern African BB aerosols, previously retrieved BER_λ (LR_λ) values range from 0.016 ± 0.003 sr^{-1} (63 ± 10 sr) [*Campbell et al.*, 2003] to 0.017 ± 0.002 sr^{-1} (60 ± 8 sr) [*Catrrall et al.*, 2005] at $\lambda = 523$ and 550 nm, respectively.

[44] One can see that our retrieved BER_{355} (LR_{355}) for BB aerosols mainly coming from Southern Africa and South America and mixed with marine aerosols is within the range of the BER (LR) retrieved at 355 nm for BB aerosols coming from Eastern Europe, but slightly above (below) the range of the previously retrieved BER_λ (LR_λ) at higher λ (523 and 550 nm) for Southern African BB aerosols. This can be explained by the fact that, oppositely to these previous studies, the detected BB aerosol plume is encountered more

Table 1. Retrieved BER_{λ} (and LR_{λ}) From Previous Ground Based Studies for BB and Marine Aerosols

Reference	Wavelength [nm] ^a	Marine Aerosols		BB Aerosols	
		BER [sr ⁻¹] (LR [sr]) ^b	Measurement Area ^c	BER [sr ⁻¹] (LR [sr]) ^d	Source Area ^e
<i>Flamant et al.</i> [1998]	532	0.041 ± 0.008 (24 ± 5)	North Atlantic		
<i>Franke et al.</i> [2001]	532	>0.033 (<30)	Northern Indian Ocean		
<i>Müller et al.</i> [2001]	532	0.040 (25)	Northern Indian Ocean		
<i>Welton et al.</i> [2002]	523	0.030 ± 0.005 (33 ± 6)	Tropical Indian Ocean		
<i>Catrrall et al.</i> [2005]	550	0.036 ± 0.006 (28 ± 5)	Global	0.017 ± 0.002 (60 ± 8)	South America and Southern Africa
<i>Müller et al.</i> [2007]	532	0.043 ± 0.009 (23 ± 5)	Northern Indian Ocean	0.019 ± 0.004 (53 ± 11)	Siberia/Canada
<i>Müller et al.</i> [2007]	355 ^f			0.022 ± 0.006 (46 ± 13)	Siberia/Canada
<i>Balis et al.</i> [2003]	355			0.017 (59)	Eastern Europe
<i>Campbell et al.</i> [2003]	523			0.013 ± 0.003 (63 ± 10)	Southern Africa
<i>Chazette et al.</i> [2007]	355			0.008 ± 0.003 (125 ± 35)	Niger
<i>Amiridis et al.</i> [2009]	355			0.015 ± 0.006 (70 ± 30)	Eastern Europe
This study	355	0.039 ± 0.009 (26 ± 6)	Southwestern Indian Ocean	0.021 ± 0.006 (48 ± 12)	South America and Southern Africa

^aThe wavelength λ at which the BER_{λ} (and LR_{λ}) were retrieved.

^bThe mean BER_{λ} (and LR_{λ}) for marine aerosols with the associated standard deviation.

^cThe marine aerosols measurement area.

^dThe mean BER_{λ} (and LR_{λ}) for BB aerosols with the associated standard deviation.

^eThe identified BB aerosols source area.

^fBoldfacing indicates studies that used the same lidar wavelength as this study.

than 2500 km from its emission area, and thus can be affected by changing of the particles optical properties during the transportation. *Müller et al.* [2007] retrieved a BER_{355} (LR_{355}) value of $0.022 \pm 0.006 \text{ sr}^{-1}$ ($46 \pm 13 \text{ sr}$) – which is very close to our value – over Europe for BB aerosol plume coming from Siberia/Canada. They state that long-range transport of aerosols seems to increase (decrease) the BER (LR). This may be due, in our case, to mixing with marine particles over the South Atlantic and Southern Indian Ocean, particle growth due to uptake of water or precursor gases, photochemical reactions, and particle growth because of coagulation. This can explain the difference with the BER_{355} (LR_{355}) retrieved over Southern Niger by *Chazette et al.* [2007]. We must also consider that the present study is actually the first report (to our knowledge) on the characterization of the aerosols optical prop-

erties over the southern Indian Ocean from ground-based mobile lidar measurements, thus reference data are missing.

[45] Figure 11 displays a summary of the Ångström coefficient between 500 and 870 nm (a) versus the BER_{355} (LR_{355}) retrieved from the synergy between the lidar and the Sun photometer (Section 3.2.1 and 3.2.2.1). The BER_{355} (LR_{355}) boundary between the “marine” and “MIX” (BB+marine) types is the minimum (maximum) BER (LR) value found in the literature for marine aerosols ($BER = 0.030 \text{ sr}^{-1}$ and $LR = 33 \text{ sr}$ found by *Welton et al.* [2002] at 523 nm). The signatures of marine and MIX aerosols are well identified because little to no overlap is observed. Marine aerosols BER_{355} (LR_{355}) and a range from 0.030 to 0.057 sr^{-1} (18–33 sr) and from 0.10 to 0.95, respectively, while MIX aerosols BER_{355} (LR_{355}) and a range from 0.012 to 0.030 sr^{-1} (33–83 sr) and from 0.86 to 1.51, respectively. This is in accordance with the work of

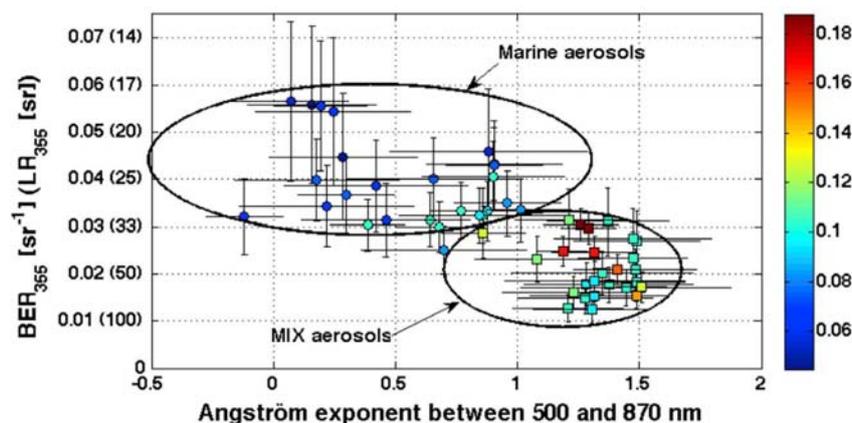


Figure 11. Ångström exponent between 500 and 870 nm versus retrieved BER at 355 nm for marine aerosols (MACAMAZ campaign, circles) and MIX aerosols (KAMASUTRA campaign, squares). Error bars on BER_{355} are from uncertainty described in Section 4.2. Error bars on Ångström exponent are from uncertainty on AOT and have been computed following a similar approach showed by *Hamonou et al.* [1999]. The gray scale gives related AOT at 380 nm.

Cattrall et al. [2005] showing a clear separation between the BER related to BB and marine aerosols. One can verify also in Figure 11 that the AOT related to BER of MIX aerosols are higher than the AOT related to BER of only marine aerosols.

5. Conclusion

[46] Lidar observations were performed on the research vessel Marion Dufresne during two ship-based opportunity experiments: one around Madagascar in late austral summer 2009 and one between La Réunion (21°S, 55°E) and the Kerguelen Islands (50°S, 70°E) in austral winter (Southern Hemisphere BB season) 2009. A BB aerosol layer has been encountered between (31°S, 69°E) and (24°S, 59°E) in mid September 2009. The Sun photometer-derived AOT_{355} has been used as a constraint to determine the mean BER_{355} (LR_{355}) in the marine aerosol layer as well as in the mixed BB+marine aerosol layer, and leads to mean value of $0.039 \pm 0.009 \text{ sr}^{-1}$ ($26 \pm 6 \text{ sr}$) and $0.021 \pm 0.006 \text{ sr}^{-1}$ ($48 \pm 12 \text{ sr}$), respectively. The mean aerosol extinction profile has been calculated which reveals an aerosol layer extending up to $\sim 3 \text{ km}$ amsl. Lidar calibration is used to inverse data without any simultaneous Sun photometer measurements (as nighttime data) and the time evolution of the aerosol extinction properties and vertical extension are documented. We used the GIRAFE/FLEXPART model to confirm the BB origin of the detected aerosol layer: the encountered aerosol plume comes mainly from BB occurring in South America and Southern Africa. However, the mean height of the encountered plume as simulated by GIRAFE is not in agreement with the altitude of the detected aerosol layer. Further studies should be performed with the next version of GIRAFE-FLEXPART (v4), which includes additional aerosols parameterization. This first (to our knowledge) direct ground-based mobile measurement of the aerosols characteristics and spatial distribution in the southern Indian Ocean can be useful for reducing uncertainties in the global climate models for the southern hemisphere.

[47] **Acknowledgments.** The MACAMOZ and KAMASUTRA campaigns were supported by the French Polar Institute (IPEV) and the Marion Dufresne is property of the Terres Australes et Antarctiques Françaises (TAAF). The Centre National de Recherche Scientifique (CNRS) and the Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME) provide funding to V. Duflot for his Ph.D. This study has been supported by the program Les Enveloppes Fluides et l'Environnement-Chimie Atmosphérique (LEFE-CHAT) of the Institut National des Sciences de l'Univers (INSU-CNRS). We thank the ECMWF center for supplying global model data. We acknowledge the MODIS mission scientists and associated NASA personnel, as well as the Giovanni online data system, developed and maintained by the NASA GES DISC, for providing MODIS AOT data. We also thank the University of Maryland for providing fires detection data. GIRAFE is supported by ETHER (CNES and INSU-CNRS). Franck Gabarrot, Martial Barblu and Patrick Hernandez also receive our gratitude for supporting the LIDAR and Sun photometer operation during the MACAMOZ campaign. We also wish to thank Franck Gabarrot for his participation in the GIRAFE model testing and set up.

References

Amiridis, V., D. S. Balis, E. Giannakaki, A. Stohl, S. Kazadzis, M. E. Koukouli, and P. Zanis (2009), Optical characteristics of biomass burning aerosols over southeastern Europe determined from UV-Raman lidar measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, *9*, 2431–2440, doi:10.5194/acp-9-2431-2009.

Andreae, M. O. (1995), Climatic effects of changing atmospheric aerosol levels, in *World Survey of Climatology*, vol. 16, *Future Climates of the*

World, edited by A. Henderson-Sellers, pp. 341–392, Elsevier Sci., New York.

- Andreae, M. O. (1996), Raising dust in the greenhouse, *Nature*, *380*, 389–390, doi:10.1038/380389a0.
- Ångström, A. (1964), The parameters of atmospheric turbidity, *Tellus*, *16*, 64–75, doi:10.1111/j.2153-3490.1964.tb00144.x.
- Annegarn, H. J., et al. (2002), Southern Africa's ecosystem in a test-tube-A perspective on the Southern African Regional Science Initiative (SAFARI 2000), *S. Afr. J. Sci.*, *98*, 111–113.
- Balis, D. S., V. Amiridis, C. Zerefos, E. Gerasopoulos, M. Andreae, P. Zanis, A. Kazantzidis, S. Kazadzis, and A. Papayannis (2003), Raman lidar and sunphotometric measurements of aerosol optical properties over Thessaloniki, Greece during a biomass burning episode, *Atmos. Environ.*, *37*, 4529–4538, doi:10.1016/S1352-2310(03)00581-8.
- Bates, T. S., D. J. Coffman, D. S. Covert, and P. K. Quinn (2002), Regional marine boundary layer aerosol size distributions in the Indian, Atlantic, and Pacific Oceans: A comparison of INDOEX measurements with ACE-1, ACE-2, and Aerosols99, *J. Geophys. Res.*, *107*(D19), 8026, doi:10.1029/2001JD001174.
- Campbell, J. R., E. J. Welton, J. D. Spinhirne, Q. Ji, S.-C. Tsay, S. J. Piketh, M. Barenbrug, and B. N. Holben (2003), Micropulse lidar observations of tropospheric aerosols over northeastern South Africa during the ARREX and SAFARI 2000 dry season experiments, *J. Geophys. Res.*, *108*(D13), 8497, doi:10.1029/2002JD002563.
- Cattrall, C., J. Reagan, K. Thome, and O. Dubovik (2005), Variability of aerosol and spectral lidar and backscatter and extinction ratios of key aerosol types derived from selected Aerosol Robotic Network locations, *J. Geophys. Res.*, *110*, D10S11, doi:10.1029/2004JD005124.
- Chazette, P. (2003), The monsoon aerosol extinction properties at Goa during INDOEX as measured with lidar, *J. Geophys. Res.*, *108*(D6), 4187, doi:10.1029/2002JD002074.
- Chazette, P., J. Pelon, and G. Mégie (2001), Determination of structural parameters of atmospheric scattering layer using spaceborne backscatter lidar, *Appl. Opt.*, *40*, 3428–3440, doi:10.1364/AO.40.003428.
- Chazette, P., J. Sanak, and F. Dulac (2007), New approach for aerosol profiling with a lidar onboard an ultralight aircraft: Application to the African Monsoon Multidisciplinary Analysis, *Environ. Sci. Technol.*, *41*, 8335–8341, doi:10.1021/es070343y.
- Chazette, P., J.-C. Raut, F. Dulac, S. Berthier, S.-W. Kim, P. Royer, J. Sanak, S. Loacé, and H. Grigaut-Desbrosses (2010), Simultaneous observations of lower tropospheric continental aerosols with a ground-based, an airborne, and the spaceborne CALIOP lidar systems, *J. Geophys. Res.*, *115*, D00H31, doi:10.1029/2009JD012341.
- Crutzen, P. J., and M. O. Andreae (1990), Biomass burning in the tropics: Impact on atmospheric chemistry and biogeochemical cycles, *Science*, *250*, 1669–1678, doi:10.1126/science.250.4988.1669.
- Dentener, F., et al. (2006), Emissions of primary aerosol and precursor gases in the years 2000 and 1750 prescribed data-sets for AeroCom, *Atmos. Chem. Phys.*, *6*, 4321–4344, doi:10.5194/acp-6-4321-2006.
- Duflot, V., B. Dils, J. L. Baray, M. De Mazière, J. L. Attié, G. Vanhalewijn, C. Senten, C. Vigouroux, G. Clain, and R. Delmas (2010), Analysis of the origin of the distribution of CO in the subtropical southern Indian Ocean in 2007, *J. Geophys. Res.*, *115*, D22106, doi:10.1029/2010JD013994.
- Edwards, D. P., et al. (2006), Satellite-observed pollution from Southern Hemisphere biomass burning, *J. Geophys. Res.*, *111*, D14312, doi:10.1029/2005JD006655.
- Flamant, C., V. Trouillet, P. Chazette, and J. Pelon (1998), Wind speed dependence of the atmospheric boundary layer optical properties and ocean surface reflectance as observed by airborne backscatter lidar, *J. Geophys. Res.*, *103*, 25,137–25,158, doi:10.1029/98JC02284.
- Forêt, G., C. Flamant, S. Cautenet, J. Pelon, F. Minvielle, M. Taghavi, and P. Chazette (2006), The structure of the haze plume over the Indian Ocean during INDOEX: Tracer simulations and lidar observations, *Atmos. Chem. Phys.*, *6*, 907–923, doi:10.5194/acp-6-907-2006.
- Franke, K., A. Ansmann, D. Müller, D. Althausen, F. Wagner, and R. Scheele (2001), One-year observations of particle lidar ratio over the tropical Indian Ocean with Raman lidar, *Geophys. Res. Lett.*, *28*, 4559–4562, doi:10.1029/2001GL013671.
- Giglio, L., et al. (2003), An enhanced contextual fire detection algorithm for MODIS, *Remote Sens. Environ.*, *87*, 273–282, doi:10.1016/S0034-4257(03)00184-6.
- Hamonou, E., P. Chazette, D. Balis, F. Dulac, X. Schneider, E. Galani, G. Ancellet, and A. Papayannis (1999), Characterization of the vertical structure of Saharan dust export to the Mediterranean basin, *J. Geophys. Res.*, *104*, 22,257–22,270.
- Intergovernmental Panel on Climatic Change (2007), *Climate Change 2007: Radiative Forcing of Climate*, Cambridge Univ. Press, New York.
- Kaufman, Y. J., D. Tanré, L. A. Remer, E. F. Vermote, A. Chu, and B. N. Holben (1997), Operational remote sensing of tropospheric aerosol over

- land from EOS moderate resolution imaging spectroradiometer, *J. Geophys. Res.*, *102*, 17,051–17,067, doi:10.1029/96JD03988.
- Klett, J. D. (1985), Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratios, *Appl. Opt.*, *24*, 1638–1643, doi:10.1364/AO.24.001638.
- Lelieveld, J., et al. (2001), The Indian Ocean Experiment: Widespread air pollution from South and Southeast Asia, *Science*, *291*, 1031–1036, doi:10.1126/science.1057103.
- Léon, J.-F., et al. (2001), Large-scale advection of continental aerosols during INDOEX, *J. Geophys. Res.*, *106*, 28,427–28,439, doi:10.1029/2001JD900023.
- Measures, R. M. (1984), *Laser Remote Sensing: Fundamentals and Applications*, Wiley-Interscience, New York.
- Müller, D., K. Franke, F. Wagner, D. Althausen, A. Ansmann, and J. Heintzenberg (2001), Vertical profiling of optical and physical particle properties over the tropical Indian Ocean with six-wavelength lidar: 2. Case studies, *J. Geophys. Res.*, *106*, 28,577–28,595, doi:10.1029/2000JD900785.
- Müller, D., A. Ansmann, I. Mattis, M. Tesche, U. Wandinger, D. Althausen, and G. Pisani (2007), Aerosol-type-dependent lidar ratios observed with Raman lidar, *J. Geophys. Res.*, *112*, D16202, doi:10.1029/2006JD008292.
- Nicolet, M. (1984), On the molecular scattering in the terrestrial atmosphere, *Planet. Space Sci.*, *32*, 1467–1468, doi:10.1016/0032-0633(84)90089-8.
- Pelon, J., C. Flamant, P. Chazette, J.-F. Leon, D. Tanre, M. Sicard, and S. K. Satheesh (2002), Characterization of aerosol spatial distribution and optical properties over the Indian Ocean from airborne lidar and radiometry during INDOEX'99, *J. Geophys. Res.*, *107*(D19), 8029, doi:10.1029/2001JD000402.
- Pietras, C., K. D. Knobelspiesse, R. Frouin, B. Holben, and K. Voss (2002), Calibration of Sun photometers and sky radiance sensors, in *Ocean Optics Protocols for Satellite Ocean Color Sensor Validation, Revision 3*, edited by L. Mueller and G. S. Fargion, *NASA Tech. Memo., TM-20021-210004*, vol. 1, 76–90.
- Rajeev, K., V. Ramanathan, and J. Meywerk (2000), Regional aerosol distribution and its long-range transport over the Indian Ocean, *J. Geophys. Res.*, *105*, 2029–2043.
- Ramanathan, V., et al. (2001), Indian Ocean Experiment: An integrated analysis of the climate forcing and effects of the great Indo-Asian haze, *J. Geophys. Res.*, *106*, 28,371–28,398.
- Rasch, P. J., et al. (2000), A comparison of scavenging and deposition processes in global models: Results from the WCRP Cambridge Workshop of 1995, *Tellus, Ser. B*, *52*, 1025–1056, doi:10.1034/j.1600-0889.2000.00980.x.
- Rasch, P. J., W. D. Collins, and B. E. Eaton (2001), Understanding the Indian Ocean Experiment (INDOEX) aerosol distributions with an aerosol assimilation, *J. Geophys. Res.*, *106*, 7337–7355.
- Rogers, C. F., J. G. Hudson, B. Zielinska, R. L. Tanner, J. Hallett, and J. G. Watson (1991), Cloud condensation nuclei from biomass burning, in *Global Biomass Burning: Atmospheric, Climatic, and Biospheric Implications*, edited by J. S. Levine, pp. 431–438, MIT Press, Cambridge, Mass.
- Rosen, J., S. Young, J. Laby, N. Kjerne, and J. Gras (2000), Springtime aerosol layers in the free troposphere over Australia: Mildura Aerosol Tropospheric Experiment (MATE 98), *J. Geophys. Res.*, *105*, 17,833–17,842.
- Royer, P., P. Chazette, M. Lardier, and L. Sauvage (2011), Aerosol content survey by mini N₂-Raman lidar: Application to local and long-range transport aerosols, *Atmos. Environ.*, doi:10.1016/j.atmosenv.2010.11.001, in press.
- Russell, L. M., D. H. Lenschow, K. K. Laursen, P. B. Krummel, S. T. Siems, A. R. Bandy, D. C. Thornton, and T. S. Bate (1998), Bidirectional mixing in an ACE 1 marine boundary layer overlain by a second turbulent layer, *J. Geophys. Res.*, *103*, 16,411–16,432.
- Smirnov, A., Y. Villevalde, N. T. O'Neill, A. Royer, and A. Tarussov (1995), Aerosol optical depth over the oceans: Analysis in terms of synoptic air mass types, *J. Geophys. Res.*, *100*, 16,639–16,650.
- Smirnov, A., B. N. Holben, T. F. Eck, O. Dubovik, and I. Slutsker (2000), Cloud screening and quality control algorithms for the AERONET database, *Remote Sens. Environ.*, *73*, 337–349, doi:10.1016/S0034-4257(00)00109-7.
- Smirnov, A., et al. (2009), Maritime Aerosol Network as a component of Aerosol Robotic Network, *J. Geophys. Res.*, *114*, D06204, doi:10.1029/2008JD011257.
- Stohl, A., et al. (2005), Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2, *Atmos. Chem. Phys.*, *5*, 2461–2474, doi:10.5194/acp-5-2461-2005.
- Tanré, D., Y. J. Kaufman, M. Herman, and S. Mattoo (1997), Remote sensing of aerosol properties over oceans using the MODIS/EOS spectral radiances, *J. Geophys. Res.*, *102*, 16,971–16,988, doi:10.1029/96JD03437.
- Welton, E. J., K. J. Voss, P. K. Quinn, P. J. Flatau, K. Markowicz, J. R. Campbell, J. D. Spinhrne, H. R. Gordon, and J. E. Johnson (2002), Measurements of aerosol vertical profiles and optical properties during INDOEX 1999 using micropulse lidars, *J. Geophys. Res.*, *107*(D19), 8019, doi:10.1029/2000JD000038.

J.-L. Baray, Y. Courcoux, R. Delmas, and V. Duflot, Laboratoire de l'Atmosphère et des Cyclones, Université de la Réunion, UMR CNRS-Météo-France 8105, Saint-Denis, Réunion F-97715, France. (vduflot@univ-reunion.fr)

P. Chazette and P. Royer, Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, UMR CEA-CNRS-UVSQ 8212, Gif-sur-Yvette F-91191, France.

Annexe C : Liste des publications et communications

Publications

Duflot, V., B. Dils, J. L. Baray, M. De Mazière, J. L. Atti, G. Vanhaelewyn, C. Senten, C. Vigouroux, G. Clain, and R. Delmas (2010), Analysis of the origin of the distribution of CO in the subtropical southern Indian Ocean in 2007, *J. Geophys. Res.*, 115, D22106, doi :10.1029/2010JD013994.

Duflot V., Royer P., Chazette P., Courcoux Y., Delmas R., Baray J-L. (2011), Marine and biomass burning aerosols in the southern Indian Ocean : retrieval of aerosol optical properties from ship-borne lidar and sun-photometer measurements, *J. Geophys. Res.*, 116, D18208, doi :10.1029/2011JD015839.

J.L. Baray, V. Duflot, F. Posny, A.M. Thompson, J.P. Cammas, J.L. Bonne, One-year ozonesonde measurements at Kerguelen island (49.2S, 70.1E) : Influence of stratosphere-to-troposphere exchange and long range transport of biomass burning plumes, submitted to *J. Geophys. Res.*

Communications

Duflot V., Baray J-L., Posny F., Cammas J-P., Thomson A. (2011), Analysis of the tropospheric ozone distribution at Kerguelen Island (49S, 69E) in 2008-2009, EGU, Vienna.

Duflot V., Baray J.L., Clain G., LeSouëf D., Tulet P., Villeneuve N. (2010), Tropospheric studies at Reunion Island : from ozone trend to volcanic plume dispersion, Institut d'Aéronomie

11. ANNEXE C : LISTE DES PUBLICATIONS ET COMMUNICATIONS

Spatiale de Belgique.

Duflot V., Royer P., Chazette P., Courcoux Y., Delmas R., Baray J-L. (2010), Ship-borne lidar-derived optical properties of southern biomass burning aerosols, International Laser Radar Conference (ILRC) 2010.

Duflot, V., B. Dils, J. L. Baray, M. De Mazière, J. L. Atti, G. Vanhaelewyn, C. Senten, C. Vigouroux, G. Clain, and R. Delmas (2010), Analysis of the origin of the distribution of CO in the subtropical southern Indian Ocean in 2007, South African Society for Atmospheric Sciences (SASAS) 2010.

J.L. Baray, G. Clain, V. Duflot, F. Posny, J.L. Bonne and R. Delmas (2010), Tropospheric ozone and stratosphere-to-troposphere exchange in the Southern Indian Ocean and South Africa, South African Society for Atmospheric Sciences (SASAS) 2010.

Duflot V., Royer P., Chazette P., Courcoux Y., Delmas R., Baray J-L. (2010), Biomass burning aerosols in the southern Indian Ocean : retrieval of optical properties, South African Society for Atmospheric Sciences (SASAS) 2010.

Duflot V., Baray J.L., Delmas R., De Mazière M., Senten C., Vigouroux C. (2009), Measurements of biomass burning constituents at Ile de la Réunion using Fourier transform infrared spectrometry (FTIR), European Research Courses on Atmospheres (ERCA) 2009.

Résumé

Ces travaux de recherche se sont focalisés sur la zone Océan Indien austral et ont permis d'améliorer les connaissances scientifiques sur la provenance des masses d'air polluées, sur leur distribution spatiale, sur la contribution relative des zones sources à la charge en polluant mesurée, et sur les propriétés optiques des aérosols détectés. La prépondérance de l'influence du transport des masses d'air polluées en provenance d'Afrique Australe et d'Amérique Latine à la concentration en polluant dans le sud-ouest de l'Océan Indien a ainsi été démontrée en utilisant des mesures par spectrométrie infrarouge à transformée de Fourier et des modèles de dispersion de panache couplés à des bases de données d'émission. Une voie de transport privilégiée reliant l'Asie du sud-est au sud-ouest de l'Océan Indien dans la haute troposphère en Juillet-Août, ainsi que l'apport en CO résultant, ont été identifiés pour la première fois. La variation saisonnière de la concentration en ozone troposphérique dans le sud de l'Océan Indien a également été mise en évidence, ainsi que son lien avec les émissions de précurseurs d'ozone provenant des feux de biomasse se produisant en Afrique Australe et en Amérique Latine. L'analyse des données photométriques AERONET a permis d'établir une climatologie des caractéristiques optiques des aérosols à la verticale de la Réunion, qui apparaît comme étant un site relativement propre dont la troposphère est principalement affectée par les aérosols marins tout au long de l'année, et également par les aérosols de feu pendant la saison des feux australe. De plus, des campagnes de mesure avec lidar et photomètre embarqués à bord d'un navire sillonnant l'Océan Indien austral a donné accès à l'évaluation de l'extension verticale et des propriétés optiques d'un panache d'aérosols de feux provenant principalement d'Amérique Latine et d'Afrique Australe, mais aussi d'Asie du sud-est.

Mots clés : Océan Indien, CO, ozone, aérosols, lidar, FTIR, photomètre, feux de biomasse, GIRAFE, FLEXPART, LACYTRAJ.

Abstract

This thesis focused on the southern Indian Ocean area and contributed to improve our scientific knowledge on the origin of polluted air masses, on their spatial distribution, on the relative contribution of the identified source regions to the measured pollutant loading, and on the optical properties of the encountered aerosols. The potential primary sources for CO throughout the south-western Indian Ocean troposphere are southern Africa and South America. A secondary potential contribution from Southeast Asia and Indonesia-Malaysia was identified in the upper troposphere, especially in July and August. The seasonal variation of tropospheric ozone concentration in the southern Indian Ocean is highlighted, and its link to wintertime long range transport of tropospheric ozone precursors emitted in biomass burning plumes from southern America and Africa is evidenced. The analysis of sun photometer measurements gave access to a climatology of the optical properties of aerosols in Reunion Island, showing this site can be considered as a clean site, mostly influenced by marine aerosols throughout the year, and also by biomass burning aerosols during the southern hemisphere biomass burning season. A unique data set of shipborne measurements has been collected with a dual Rayleigh-Mie lidar and a handheld sun photometer aboard a research vessel crossing the southern Indian Ocean, and the time evolution of the encountered marine and biomass burning aerosols extinction properties and vertical extension are documented.

Key words : Indian Ocean, CO, ozone, aerosols, lidar, FTIR, sun photometer, biomass burning, GIRAFE, FLEXPART, LACYTRAJ.