

ÉCOLE DOCTORALE SCIENCES ET TECHNOLOGIES

**LABORATOIRE DE PHYSIQUE ET CHIMIE DE L'ENVIRONNEMENT ET DE
L'ESPACE**

THÈSE présentée par :

Mirvatte FRANCIS

Soutenue le 31 mars 2011 à 14h15

A l'OSUC

pour obtenir le grade de : **Docteur de l'université d'Orléans**

Discipline : Physico-Chimie de l'atmosphère

**Contribution à la caractérisation des propriétés optiques des
sables et des suies atmosphériques avec les instruments
PROGRA2**

THÈSE dirigée par :

M. Jean-Baptiste RENARD Directeur de recherche, LPC2E

RAPPORTEURS :

M. Guy CAUTENET

Professeur, Université Blaise Pascal

M. Gérard BROGNIEZ

Professeur, Université de Lille I

JURY :

M. Jean-Baptiste RENARD

Directeur de recherche, LPC2E

M. Guy CAUTENET

Professeur, Université Blaise Pascal

M. Gérard BROGNIEZ

Professeur, Université de Lille I

M. Gilles POULET

Professeur, Université d'Orléans (président du jury)

Mme Maya MIKRENSKA

Professeur, Institute of Mechanics, Bulgarie

M. Daniel DAUGERON

Maître de conférence, Clermont I/LPC2E

M. Marc MALLET

Chargé de recherche, LA/OMP

M. François-Xavier OUF

Ingénieur-Chercheur, IRSN

Remerciements

Ce travail a été effectué au Laboratoire de Physique et de Chimie de l'Environnement et de l'Espace de l'Université d'Orléans. Je tiens à remercier, pour m'avoir accueillie dans ce laboratoire, les deux directeurs successifs du LPC2E, Messieurs Pierre-Louis Blelly et Michel Tagger ; je remercie également ce dernier, ainsi que Monsieur Gilles Poulet, directeur adjoint du LPC2E, pour leur soutien dans la conduite de ma thèse.

Cette thèse a été dirigée par Monsieur Jean-Baptiste Renard. Je suis heureuse de lui exprimer ma gratitude pour les encouragements et les précieux conseils qu'il m'a donnés ainsi que pour sa passion scientifique si enthousiaste et contagieuse. Je le remercie également pour m'avoir donné l'occasion de participer aux vols paraboliques opérés par NOVESPACE, cette expérience si fascinante reste un très beau souvenir !

Je remercie Messieurs Guy Cautenet et Gérard Brogniez pour l'honneur qu'ils m'ont fait en acceptant d'être les rapporteurs de cette thèse et pour leurs conseils pour l'amélioration de mon manuscrit. Mes remerciements s'adressent également à Madame Maya Mikrenska et à Messieurs Daniel Daugeron, Marc Mallet et François-Xavier Ouf pour avoir accepté de faire partie du jury. Je remercie également ce dernier pour ses précieuses réponses à mes nombreuses questions concernant 'les suies'.

J'exprime aussi toute ma gratitude envers François Gensdarmes pour sa collaboration et pour l'occasion qu'il m'a donnée de réaliser des expériences à l'IRSN, ce qui fut très enrichissant.

Je remercie aussi toute l'équipe PROGRA2 : Benoît Couté, Bertrand Gaubicher, Matthieu Jeannot... Mes sincères remerciements vont à Madame Edith Hadamcik pour sa collaboration et pour son intérêt envers ce projet.

Un merci amical à mes collègues de bureau Veronica et Thibaut successivement et aux autres collègues du LPC2E : Gwénael, Matthieu, Bertrand, Xavier, Fabrice, Gisèle, Christophe, Jean-Yves...

Merci à mes premiers amis en France, Ziad et Agnès, qui m'ont aidée dès mon arrivée en France. Merci à mes amis orléanais ; Momo, Joseph (et ses parents), Aziz, Eliane, Marie-Joëlle, Bérengère et Reine pour tous les moments vécus ensemble. Je vous aime tous. Vous m'êtes très précieux.

A toi, merci de me faire voir la vie en rose...

Enfin, mes remerciements les plus profonds vont à mes parents et à ma famille. Merci maman pour m'avoir répété « qui cherche trouve ».

Table des matières

Remerciements	1
Table des matières	3
Symboles.....	7
Liste des figures	10
Liste des tableaux	14
Introduction	17
Chapitre 1	21
Généralités: aérosols et techniques de mesures.....	21
1.1 Introduction.....	22
1.2 Structure verticale de l'atmosphère	22
1.3 Bilan et forçage radiatif.....	23
1.4 Aérosols.....	24
1.4.1 Origines des aérosols	24
1.4.2 Effet des aérosols sur le climat	25
1.5 Aérosols stratosphériques	27
1.5.1 Détection des aérosols volcaniques dans la stratosphère.....	28
1.5.2 Détection de poussières interplanétaires dans la stratosphère.....	28
1.5.3 Détection des aérosols carbonés dans la stratosphère.....	29
1.6 Techniques de mesures des aérosols stratosphériques (en particulier des suies).....	31
1.7 Etudes expérimentales : Instruments de mesures	32
1.7.1 Compteur d'aérosols STAC	32
1.7.2 Dépendance de l'extinction de la longueur d'onde SALOMON.....	32
1.7.3 Le radiomètre MicroRADIBAL	33
1.8 Résultats de ces instruments	33
1.9 Conclusion	34
Chapitre 2	37
Diffusion, polarisation et propriétés optiques	37
2.1 Nature de la lumière	38
2.1.1 Aspect quantique de la lumière	38
2.1.2 Aspect vibratoire de la lumière	38
2.2 Emission de la lumière et polarisation	39
2.3 La diffusion de la lumière.....	39
2.4 Définition des sections efficaces	40
2.5 Albédo d'une diffusion simple	41
2.6 Propagation d'une onde dans le vide.....	41
2.7 Etat de polarisation le plus général	43

2.7.1	Polarisation elliptique	43
2.7.2	Polarisation circulaire.....	45
2.7.3	Polarisation linéaire ou rectiligne	46
2.8	Paramètres de Stokes.....	47
2.9	Représentation de la polarisation sur la sphère de Poincaré.....	49
2.10	Degré de polarisation suivant les paramètres de Stokes.....	51
2.11	Matrice de Mueller	52
2.12	Diffusion de la lumière par des particules	53
2.12.1	Diffusion simple	53
2.12.2	Diffusion multiple.....	53
2.13	Interaction lumière-particule.....	53
2.14	Théorie de Mie.....	54
2.15	Particules non sphériques.....	55
Chapitre 3		57
L'expérience PROGRA2.....		57
Propriétés Optiques des Grains Astronomiques et Atmosphériques		57
3.1	Introduction.....	58
3.2	L'expérience PROGRA2-vis.....	60
3.2.1	Composante du dispositif.....	60
3.2.2	Principe de mesure	61
3.3	L'expérience PROGRA2-surf.....	62
3.4	Source de lumière.....	63
3.5	Technique de lévitation des particules	64
3.5.1	Technique de lévitation au sol	65
3.5.2	Technique de lévitation en microgravité.....	66
3.6	Système récepteur	69
3.6.1	Cube optique.....	69
3.6.2	Les détecteurs	70
3.7	Procédure de mesures au sol en laboratoire.....	71
3.8	Etalonnages.....	72
3.9	Traitement des données.....	73
3.9.1	Paramètres introduits par l'utilisateur avant de lancer le programme....	73
3.9.2	Traitement des images	74
3.9.3	Nettoyage des points.....	74
3.9.4	Valeurs de polarisation et de radiance pour les nuages de particules.....	74
3.9.5	Cartes de polarisation et de radiance des particules en lévitation.....	76
3.9.6	Distribution des particules en taille	78
3.9.7	Nombre de particules en fonction de leurs diamètres.....	79
3.10	Conclusion	81
Chapitre 4		83
Etudes des propriétés optiques de différents types de sable.....		83

4.1	Introduction.....	84
4.2	Echantillons étudiés	84
4.3	Résultats.....	87
4.3.1	Résultats des courbes en surface.....	87
4.3.2	Résultats des courbes des gros grains en lévitation et comparaison avec les courbes en surface.....	92
4.3.3	Résultats des courbes des petites particules en lévitation et comparaison avec les courbes en surface	96
4.4	Conclusion	99
Chapitre 5		103
	Etudes des propriétés optiques de suies et de noir de carbone.....	103
5.1	Rappel sur la formation des suies.....	104
5.1.1	Production et formation des particules de suies dans une flamme.....	104
5.1.1	La nucléation	104
5.1.2	Grossissement de surface des nucléi	104
5.1.3	La coagulation et l'agglomération	104
5.1.4	L'Oxydation.....	105
5.1.5	Structure des grains primaires.....	106
5.1.6	Diamètre et nombre des grains primaires.....	106
5.1.7	Dimension fractale et préfacteur	107
5.1.8	Le carbone élémentaire (EC) et le carbone organique (OC).....	108
5.2	Échantillons de suies.....	108
5.2.1	Suies générées par miniCAST	108
5.2.2	Suies produites dans une chambre de combustion.....	112
5.2.3	Échantillons de noir de carbone.....	115
5.3	Résultats.....	117
5.3.1	Résultats des propriétés optiques des suies produites par MiniCAST....	117
5.3.2	Résultats des propriétés optiques des suies produites dans une chambre de combustion	127
5.3.3	Courbes de polarisation produites par le noir de carbone en lévitation et effet de la taille des agglomérats	138
5.4	Conclusion	151
	Conclusions et perspectives	154

Symboles

Albédo d'une diffusion simple: π_0

Amplitudes instantanées du champ électrique suivant Ox : E_{0x}

Amplitudes instantanées du champ électrique suivant Oy : E_{0y}

Angle d'incidence: θ_1

Angle de réfraction: θ_2

Champ électrique : $\vec{E}$

Champ magnétique : $\vec{H}$

Champ électrique de l'onde incidente: E^i

Champ électrique de l'onde transmise: E^t

Champ électrique de l'onde réfléchie: E^r

Champ électrique de l'onde diffusée: E^{diff}

Composantes du champ électrique de l'onde réfléchie suivant Ox: $E_{//}^r$

Composantes du champ électrique de l'onde réfléchie suivant Oy: $E_{\perp}^r$

Composantes du champ électrique de l'onde incidente suivant Ox: $E_{//}^i$

Composantes du champ électrique de l'onde incidente suivant Oy: $E_{\perp}^i$

Composantes du champ électrique de l'onde transmise suivant Ox: $E_{//}^t$

Composantes du champ électrique de l'onde transmise suivant Oy: $E_{\perp}^t$

Composante du coefficient de réflexion suivant Ox : $r_{//}$

Composante du coefficient de réflexion suivant Oy : $r_{\perp}$

Composante du coefficient de transmission suivant Ox : $t_{//}$

Composante du coefficient de transmission suivant Oy : $t_{\perp}$

Composantes d'intensité rectiligne suivant Ox : I_x

Composantes d'intensité rectiligne suivant Oy : I_y

Composantes d'intensité rectiligne à 45° des axes Ox et Oy : I_{45}^0 et I_{-45}^0

Coefficient de réflexion : r

Coefficient de transmission : t

Densité de charge électrique : ρ
 Densité de courant : $\vec{j}$
 Déphasage à l'origine entre E_x et E_y : ϕ
 Diamètre de giration: D_g
 Diamètre de la particule : D (particule considérée sphérique)
 Diamètre des particules primaires : D_{pp}
 Différence d'intensité des composantes rectilignes suivant Ox et Oy : Q
 Différence d'intensité des composantes rectilignes à 45° des axes Ox et Oy : U .
 Dimension fractale : D_f
 Entier relatif : p
 Facteur de réflexion : f_r
 Facteur de transmission : f_t
 Global Equivalent Ratio (richesse globale) : GER
 Intensité incidente sur le milieu : I_0
 Intensité de polarisation circulaire : V
 Intensité lumineuse totale : I_t
 Intensité de la lumière polarisée : I_p
 Intensité de la lumière non polarisée : I_{np}
 Indice de réfraction d'un milieu : n
 Induction électrique : $\vec{D}$
 Induction magnétique : $\vec{B}$
 Longueur d'onde: λ
 Matrice de Mueller : S
 Masse de l'air : m_{air}
 Masse du combustible : $m_{combustible}$
 Nombre des particules primaires : N_p
 Préfacteur fractale : k_f
 Puissance diffusée : P_{diff}
 Puissance absorbée : P_{abs}
 Permittivité du vide: ϵ_0
 Perméabilité du vide: μ_0
 Phases à l'émission: ϕ_x et ϕ_y

Section efficace de l'extinction : σ_{ext}

Section efficace d'absorption : σ_{abs}

Section efficace de diffusion : σ_{diff}

Taux de polarisation: p

Vitesse angulaire: ω

Vecteur position de $\vec{E}$: $\vec{r}$

Vecteur d'onde: k

Liste des figures

Figure 1: Profil de température montrant les différentes couches atmosphériques	23
Figure 2 : Bilan d'énergie journalier dans l'atmosphère terrestre en W/m^2 pour une température de surface de $15^\circ C$. Extrait de Kiehl et Trenberth (1997).....	24
Figure 3: Diagramme montrant l'effet indirect des aérosols sur le bilan radiatif. Extrait de Haywood et Boucher (2000)	27
Figure 4: Image de microscopie électronique montrant la morphologie d'une poussière interplanétaire (d'après Brownlee, 1985).....	29
Figure 5:Image de microscopie électronique montrant la morphologie d'un agglomérat de suies collectées en haute troposphère. Extrait de D.F. Blake and K. Kato (1995).....	31
Figure 6: Répartition verticale des différents types d'aérosols stratosphériques à partir des mesures des instruments sous ballons. Extrait de Renard et al. 2008	34
Figure 7 : Schéma définissant les divers angles lorsque la lumière est diffusée.....	40
Figure 8 : Représentation du champ électrique E et du champ magnétique H par rapport à la direction de propagation (z)	42
Figure 9 : Etat de polarisation elliptique. L'extrémité du vecteur champ électrique décrit une ellipse dans le plan d'onde. (Oz) étant est la direction de l'onde.....	44
Figure 10 : Représentation elliptique et paramètres d'un état de polarisation elliptique. a et b représentent les demis axes de l'ellipse. α et ε caractérisent l'orientation et l'ellipticité de l'ellipse.	44
Figure 11 : Etat de polarisation circulaire. L'extrémité du vecteur champ électrique décrit un cercle dans le plan d'onde. (Oz) étant la direction de l'onde.....	45
Figure 12 : Cercle décrit par l'extrémité du vecteur champ électrique dans le plan d'onde. Cas d'une polarisation circulaire.....	46
Figure 13: Description du champ électrique pour un état de polarisation rectiligne. (Oz) étant la direction de l'onde.....	47
Figure 14: Champs électriques correspondant à un état de polarisation rectiligne suivant l'axe (x) et l'axe (y).....	47
Figure 15: Représentation des états de polarisation sur la sphère Poincaré.....	50
Figure 16 : Représentation des différents types de lumière sur la sphère de Poincaré	51
Figure 17 : L'interaction avec une lame à faces parallèles (Théorie de l'optique géométrique)	54
Figure 18 : Analogie entre l'interaction de la lumière avec une lame à faces parallèles et interaction de la lumière avec une grande particule.....	54
Figure 19 : Logo de PROGRA2.....	58
Figure 20 : Photographie de PROGRA2-vis	59
Figure 21 : Photographie de PROGRA2-surf	59
Figure 22 : Photographie de la caisse optique de PROGRA2-vis.....	61
Figure 23 : Principe de mesure de PROGRA2-vis.....	62
Figure 24 : Principe de mesure de PROGRA2-surf. Extrait de Hadamcik et al. 2009b	63
Figure 25 : Photographie des échantillons flottant dans la fiole et illuminés par le faisceau laser	64
Figure 26 : Photographie de la fiole utilisée au sol	65
Figure 27 : Principe de fonctionnement de lévitation des particules par jet d'azote dans la fiole	66
Figure 28 : Principe de fonctionnement du piège lumière	66

Figure 29 : Photo de l'avion A300-ZeroG. Image : Bertrand Gaubicher (LPC2E)	67
Figure 30 : Logo des vols paraboliques opérés par A300-ZeroG.Source : NOVESPACE	67
Figure 31 : Technique du vol parabolique. Source : NOVESPACE.....	68
Figure 32 : Photos des expérimentateurs avec l'instrument PROGRA2-vis lors de la phase ZeroG	68
Figure 33 : Photographie de la fiole et du bouchon utilisés en vols paraboliques	69
Figure 34 : Cube optique qui sert à séparer les composantes parallèles et perpendiculaires de la lumière au plan de diffusion.....	70
Figure 35 : Courbe de polarisation en fonction de l'angle de diffusion montrant pour chaque angle la valeur produite par une image individuelle et la valeur de polarisation globale (polarisation calculée à partir de la moyenne des composantes polarisées). Échantillon : noir de carbone	76
Figure 36 : Carte de polarisation (milieu), de radiance (haut) et de la caméra de référence (bas) du sable tunisien	77
Figure 37 : Effet de taille sur la polarisation obtenue par un échantillon de suie (issu du toluène).....	79
Figure 38 : Nombre de particules normalisées en fonction de leurs diamètres obtenus par un échantillon de carbone.....	81
Figure 39 : Image au microscope électronique du sable de Niger	86
Figure 40 : Courbes de polarisation produites par les échantillons déposés, à $\lambda = 632,8 \text{ nm}$...	88
Figure 41 : Courbes de polarisation produites par les échantillons déposés, à $\lambda = 543,5 \text{ nm}$...	88
Figure 42 : Courbes de radiance produites par les échantillons de sable déposés, à $\lambda = 632,8 \text{ nm}$	89
Figure 43 : Courbes de radiance produites par les échantillons de sable déposés, à $\lambda = 543,5 \text{ nm}$	90
Figure 44 : Courbes de polarisation produites par les échantillons de sable humides déposés mesurés à $\lambda = 632,8 \text{ nm}$	91
Figure 45 : Courbes de radiance produites par les échantillons de sable humides déposés mesurés à $\lambda = 632,8 \text{ nm}$	92
Figure 46 : Courbes de polarisation produites par les échantillons de sable en lévitation mesuré à $\lambda = 632,8 \text{ nm}$	93
Figure 47 : Courbes de polarisation produites par les échantillons de sable en lévitation mesuré à $\lambda = 543,5 \text{ nm}$	94
Figure 48 : Courbes de polarisation synthétiques des échantillons de sable à l'exception du sable noir, à $\lambda = 632,8 \text{ nm}$ et $\lambda = 543,5 \text{ nm}$. Les marges d'erreur correspondent à la dispersion des courbes individuelles.	95
Figure 49 : Courbes de polarisation produites par les échantillons de sable en lévitation, mesurées à $\lambda = 543,5 \text{ nm}$	96
Figure 50 : Courbes de radiance produites par les petits échantillons de sable en lévitation, mesurées à $\lambda = 632,8 \text{ nm}$	97
Figure 51 : Comparaison entre les courbes de polarisation produites par l'échantillon argile fine déposée et en lévitation, mesurées à $\lambda = 632,8$ et à $\lambda = 543,5 \text{ nm}$	98
Figure 52 : Comparaison entre les courbes de radiance produites par l'échantillon argile fine déposé et en lévitation, mesuré à $\lambda = 632,8$ et à $\lambda = 543,5 \text{ nm}$	99
Figure 53 : Processus de formation et d'évolution des agrégats de suie dans une flamme. Extrait de Maugendre, (2009)	105
Figure 54 : Morphologie d'agrégats de dimension fractale différente.....	107
Figure 55 : Système de combustion dans miniCAST. Extrait de Barthazy et al. (2006).....	109
Figure 56 : Distribution en taille des particules de suies générées par miniCAST avec des différents flux d'air. Les diamètres médians sont de l'ordre de 60 nm, 115 nm et 150 nm...	110

Figure 57 : Montage de l'injection de suies dans la fiole de PROGRA2.....	111
Figure 58 : Fiole utilisée pour pouvoir injecter directement les suies dans PROGRA2.....	111
Figure 59 : TEM micrographs des suies produites par la combustion de PMMA.	112
Figure 60 : TEM micrographs des suies produites par la combustion de toluène.	112
Figure 61 : Schéma descriptif du dispositif expérimental effectué pour produire les suies...	113
Figure 62 : Dépendance du taux carbone élémentaire/carbone organique de la richesse Extrait de Ouf, 2006.....	114
Figure 63 : MEB micrographs de ®Printex 90	115
Figure 64 : TEM micrographs de ®Printex 90	116
Figure 65 : MEB micrographs de ®Lamp black 101	116
Figure 66 : TEM micrographs de ®Lamp black 10	117
Figure 67 : Courbes d'intensité détectée par la caméra parallèle et la caméra perpendiculaire en fonction du nombre d'image produite par l'échantillon suie(1,5) à 150° d'angle de diffusion.	118
Figure 68 : Evolution du diamètre des particules après agglomération. Ce calcul est fait avec le programme AEROCALAC	120
Figure 69 : Courbes d'intensité détectée par la caméra parallèle et la caméra perpendiculaire en fonction du nombre d'image produite par l'échantillon suie(1,5) à 100° d'angle de diffusion	121
Figure 70 : Granulométrie pour des particules de 3,74 µm de diamètre et une distribution en taille de 1,01	122
Figure 71 : Courbe de polarisation en fonction de l'angle de diffusion produite par suie(1,5) comparée à un modèle de Mie.....	122
Figure 72 : Courbe de radiance en fonction de l'angle de diffusion produite par suie(1,5) comparée à un modèle de Mie.....	123
Figure 73 : Granulométrie pour des particules de 3 µm de diamètre et une distribution en taille de 1,03	123
Figure 74 : Courbe de polarisation en fonction de l'angle de diffusion produite par suie(1,2) comparée à un modèle de Mie.....	124
Figure 75 : Courbe de radiance en fonction de l'angle de diffusion produite par suie(1,2) comparée à un modèle de Mie.....	124
Figure 76 : Granulométrie pour des particules de 0,38 µm de diamètre et une distribution en taille de 1,01	125
Figure 77 : Courbe de polarisation en fonction de l'angle de diffusion produite par suie(1) comparé à un modèle de Mie	125
Figure 78 : Courbe de radiance en fonction de l'angle de diffusion produite par suie(1,2) comparée à un modèle de Mie.....	126
Figure 79 : Photo du support.....	127
Figure 80 : Courbes de polarisation obtenues par le support vide, des suies déposées sur le support et formant une épaisseur de : 0,5 µm et les mêmes suies formant une épaisseur de 3 µm. $\lambda=632,8$ nm	129
Figure 81 : Courbes de polarisation obtenues par le support vide, des suies déposées sur le support et formant une épaisseur de : 0,5 µm et les mêmes suies formant une épaisseur de 3 µm.....	129
Figure 82 : Courbes de radiance obtenues par le support vide, des suies déposées sur le support et formant une épaisseur de : 0,5 µm et les mêmes suies formant une épaisseur de 3 µm. $\lambda=632,8$ nm	130
Figure 83 : Courbes de radiance obtenues par le support vide, des suies déposées sur le support et formant une épaisseur de : 0,5 µm et les mêmes suies formant une épaisseur de 3 µm. $\lambda=543,5$ nm	131

Figure 84 : Courbes de polarisation à $\lambda = 632,8$ nm produites par les échantillons de suies déposées en surface	132
Figure 85 : Courbes de polarisation à $\lambda = 632,8$ nm produites par les échantillons de suies tassées en surface	133
Figure 86 : Courbes de polarisation à $\lambda = 632,8$ nm produite par les petits agglomérats de suie en lévitation.	134
Figure 87 : Courbes de polarisation à $\lambda = 632,8$ nm produite par l'ensemble complet d'agglomérats de suies en lévitation.	135
Figure 88 : Effet de taille des agglomérats sur la polarisation suivant un ajustement exponentiel pour les quatre échantillons de suie.	136
Figure 89 : Effet de la taille des agglomérats sur la polarisation suivant un ajustement exponentiel pour les quatre échantillons de suie. Les courbes sont normalisées à 52 μ m de diamètre.	137
Figure 90 : Nombre des agglomérats de suie en pourcentage en fonction de leurs diamètres.	137
Figure 91 : Courbes de polarisation à $\lambda = 632,8$ nm produite par C14 en lévitation.	138
Figure 92 : Courbes de polarisation à $\lambda = 632,8$ nm produite par C95 en lévitation.	139
Figure 93 : Courbes de polarisation à $\lambda = 632,8$ nm produites par l'ensemble complet d'agglomérats des deux échantillons de noir de carbone: C14 et C95 en lévitation.	140
Figure 94 : Effet de taille des agglomérats sur la polarisation suivant un ajustement exponentiel pour les deux échantillons de noir de carbone.	141
Figure 95 : Effet de la taille des agglomérats sur la polarisation suivant un ajustement exponentiel pour les deux échantillons de noir de carbone. Les courbes sont normalisées à 52 μ m de diamètre.	141
Figure 96 : Nombre des agglomérats en pourcentage de noir de carbone en fonction de leurs diamètres.	142
Figure 97: Courbes de polarisation en fonction de l'angle de phase produites par C14 et C95 en lévitation. Extrait de Hadamcik et al. 2006.	143
Figure 98 : Amplitudes de polarisation en fonction du diamètre des particules primaires produites par les échantillons de suie et les échantillons de noir de carbone.	144
Figure 99 : Courbes de polarisation à $\lambda = 543,5$ nm et à $\lambda = 632,8$ nm produites par l'ensemble complet d'agglomérats toluène2 en lévitation	145
Figure 100 : Courbes de polarisation à $\lambda = 543,5$ nm et à $\lambda = 632,8$ nm produites par l'ensemble complet d'agglomérats PMMA1 en lévitation	145
Figure 101 : Courbes de polarisation à $\lambda = 632,8$ nm produites par l'échantillon PMMA1 mesurée dans des différentes conditions	146
Figure 102 : Courbes de polarisation à $\lambda = 632,8$ nm produites par l'échantillon PMMA1 mesurée en surface et en lévitation	148
Figure 103 : Courbes de radiance à $\lambda = 632,8$ nm produites par l'échantillon PMMA1 mesurée en surface et en lévitation.	148
Figure 104 : Les courbes d'intensité normalisées à 90° d'angle de diffusion produite par l'ensemble complet d'agglomérats de suie en lévitation et de noir de carbone à $\lambda = 632,8$ nm.	150
Figure 105 : Les courbes de radiance normalisées à 80° d'angle de diffusion produites par les suies en surface à $\lambda = 632,8$ nm.	151
Figure 106 : courbes de radiances produites par les échantillons de suies et les échantillons de sable normalisées à 90°	158

Liste des tableaux

Tableau 1: Flux d'émission de particules en Mt/an ($1\text{Mt} = 10^6$ tonnes).....	25
Tableau 2 : L'état de polarisation déterminé par les paramètres Stokes.....	49
Tableau 3 : Nombre de particules en fonction de leurs diamètres obtenus par un échantillon de carbone	80
Tableau 4 : Origines et informations sur les échantillons de sable étudiés.....	85
Tableau 5: Rapport de la valeur de brillance à 150° sur la valeur à 90° pour le sable fin en lévitation, sable fin déposé et sable déposé et humide.....	100
Tableau 6 : Extrait de. Barthazy et al. , 2006. Composition des particules de suie en fonction du flux d'air d'oxydation.....	109
Tableau 7 : Informations détaillées sur les échantillons des suies.	115
Tableau 8 : Informations détaillées sur les échantillons du noir de carbone.....	117
Tableau 9 : Paramètres et valeurs utilisés pour calculer le diamètre des particules après agglomération. Ce calcul est fait avec le programme AEROCALAC	119
Tableau 10 : Résumé des principaux résultats obtenus avec les courbes de polarisation.....	157

Introduction

La suie est une particule noire optiquement fortement absorbante qui provient de la combustion incomplète de combustibles fossiles (essence, gazole, fioul) ou de feux de biomasse. Précisons que alors que l'on pensait que l'impact de la suie sur la composition atmosphérique était faible, de nombreuses études récentes ont montré que la suie est une espèce plus polluante que prévue, affectant la composition chimique de l'atmosphère et le bilan radiatif terrestre. Ces travaux sont maintenant principalement dédiés à l'impact de la suie sur le climat et la santé publique. Cependant ces études ne concernent pratiquement que la troposphère, tandis que la recherche de la présence de suie dans la stratosphère ne débute qu'à peine.

Dans le passé, on supposait que seules des gouttelettes liquides étaient présentes dans la stratosphère. Néanmoins, une forte éruption volcanique peut produire l'injection directe d'aérosols dans la stratosphère. Par ailleurs, il a été trouvé très récemment que dans la stratosphère libre des particules volcaniques, des particules solides sont présentes : des poussières interplanétaires, des débris de désintégration météoritiques et des aérosols carbonés.

Les aérosols stratosphériques jouent un rôle important dans la chimie de la stratosphère et dans le bilan radiatif. Afin de mieux documenter les différentes caractéristiques des aérosols dans la stratosphère, le LPC2E effectue depuis 15 ans des observations à l'aide de différents instruments sous ballons et aussi à l'aide de données satellites (GOMOS-Envisat). La combinaison de ces données a permis d'identifier l'omniprésence d'une quantité significative d'aérosols dans la stratosphère moyenne et de mieux documenter le profil en altitude du nombre de particules. Il a été trouvé qu'au-dessus de 40 km d'altitude, les particules de poussières interplanétaires et celles provenant de la désintégration des météorites sont les espèces majoritaires. Bien que la désintégration des météorites se produit dans la haute stratosphère ou dans la mésosphère à toutes les latitudes, ces aérosols solides peuvent être transportés vers les régions polaires par la circulation générale et peuvent redescendre dans la basse stratosphère polaire. A des altitudes inférieures, les particules de suie contribuent fortement à la population d'aérosols. Ces suies proviennent probablement de la combustion de la biomasse sous toutes les latitudes.

Les particules de suie peuvent avoir un effet direct sur la chimie de l'atmosphère et un effet sur le climat par le biais du transfert radiatif. Il est donc important de les détecter dans la stratosphère mais aussi de bien documenter leur quantité, leur distribution en taille et leurs natures. Les mesures des instruments sous ballons stratosphériques combinées avec les mesures satellites ont servi à mieux connaître les suies stratosphériques mais la nature de ces suies reste encore inconnue. La suie possède une morphologie fractale de forme irrégulière trop complexe pour être modélisée en utilisant la théorie de Mie. Il est donc nécessaire de disposer d'une base de données expérimentales des propriétés optiques de différents types de suie pour interpréter les mesures de télédétection, en particulier en utilisant le radiomètre sous ballon stratosphérique MicroRADIBAL du Laboratoire d'Optique Atmosphérique (Lille).

Ce travail de thèse s'inscrit dans cette stratégie ; il vise à documenter à l'aide de l'instrument PROGRA2-vis les propriétés optiques de différents types de suies en lévitation dans l'air et d'évaluer l'effet des conditions de combustion sur ces propriétés. Une comparaison avec les propriétés optiques des suies déposées, obtenues avec l'instrument PROGRA2-surf, sera discutée afin de mettre en évidence les différences liées aux conditions de mesure. Finalement une comparaison de ces résultats avec ceux obtenus avec différents types de sable sera aussi présentée, dans le but de différencier la signature optique des suies de celle d'autres particules.

Ce travail de thèse s'articulera autour de 5 parties :

- La première partie sera consacrée à un rappel rapide sur les couches atmosphériques, le bilan et le forçage radiatif, sur la définition des aérosols et leurs rôles dans le bilan radiatif terrestre. Les techniques dédiées à la détection des aérosols stratosphériques seront détaillées.
- Dans la deuxième partie, la nature, l'émission, la diffusion et les 3 états de polarisation de la lumière seront décrits. Une description de l'interaction de la lumière avec la particule suivant sa taille et la longueur d'onde sera discutée. Enfin quelques modèles de diffusion de la lumière seront cités et leurs limites seront présentées.
- La troisième partie sera dédiée à la description et aux caractéristiques des instruments PROGRA2 (PROpriétés Optiques des Grains Astronomiques et Atmosphériques).

- Dans la quatrième partie, les résultats des courbes de polarisation et de radiance obtenus avec différents types de sable en lévitation et déposé en surface seront comparés.
- La cinquième et dernière partie sera d'abord constituée d'un rappel sur la formation des suies et sur les termes liés à leur morphologie. Ensuite une description des échantillons et de leurs modes de production sera présentée. Enfin, les résultats obtenus avec différents types de suies seront discutés et comparés à ceux obtenus avec des échantillons de sable.

Chapitre 1

Généralités: aérosols et techniques de mesures

1.1 Introduction

Ce chapitre introduit des généralités sur l'atmosphère terrestre: les couches atmosphériques, le bilan radiatif, les aérosols, leurs origines et leurs rôles sur le forçage radiatif. On détaillera les aérosols stratosphériques, leurs origines et les instruments dédiés à leur détection.

1.2 Structure verticale de l'atmosphère

L'atmosphère terrestre est l'enveloppe gazeuse qui entoure la terre. Elle est constituée de 4 couches : la troposphère, la stratosphère, la mésosphère et la thermosphère. Les différentes couches atmosphériques sont définies à partir du profil vertical de la température. La figure 1 montre que les gradients thermiques varient en fonction de l'altitude. Les couches où apparaissent les inversions de température sont appelées les couches intermédiaires. Elles sont qualifiées par le suffixe « pause ». La troposphère (située entre le sol et la tropopause) se caractérise par : un gradient vertical négatif de température d'environ 6.5 K.km^{-1} , la présence d'une grande quantité d'eau (vapeur, liquide, solide) et de fortes instabilités dues aux contrastes thermiques à la surface de la Terre. La tropopause varie entre 8 et 18 Km selon la latitude et la saison. La stratosphère située au dessus de la troposphère (jusqu'à une altitude autour de 50 km) est caractérisée par un gradient vertical de température positif dû à la présence de la couche d'ozone qui absorbe le rayonnement solaire ultraviolet et réémet dans l'infrarouge. La stratosphère est le siège d'une circulation essentiellement horizontale ce qui permet le transport des constituants à de grandes distances, la composante verticale étant très faible. Au dessus de la stratosphère se trouve la mésosphère (séparée de la stratosphère par la stratopause), elle s'étend jusqu'à 85 km et est caractérisée par un gradient vertical négatif de température. Au sommet de la mésosphère, l'atmosphère atteint les valeurs minimales de température. La mésopause est la couche intermédiaire séparant la mésosphère de la thermosphère. Cette dernière est caractérisée par un gradient vertical de température positif dû au rayonnement solaire et peut s'étendre jusqu'à plus de 500 km d'altitude.

Dans cette étude la stratosphère est la partie qui nous intéresse. La basse stratosphère va de la tropopause vers 20 km, la stratosphère moyenne se situe à une altitude autour de 30 km et la haute stratosphère est en dessus de 30 km.

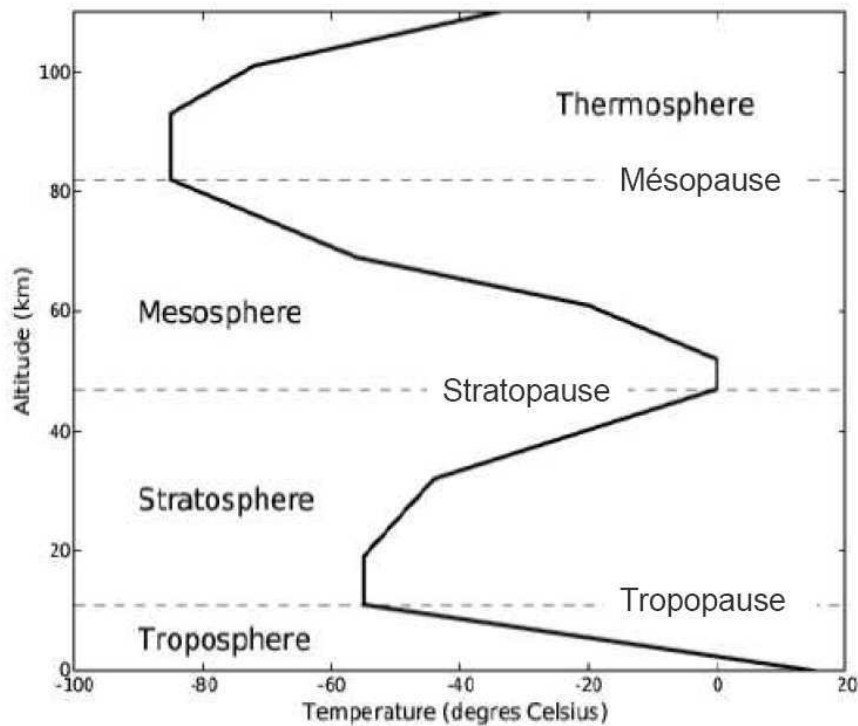


Figure 1 : Profil de température montrant les différentes couches atmosphériques

1.3 Bilan et forçage radiatif

Le bilan radiatif terrestre est la différence entre l'énergie reçue par la Terre (rayonnement solaire incident) et l'énergie renvoyée (rayonnement solaire réfléchi + rayonnement terrestre infrarouge). Il est exprimé par sa valeur moyenne sur le globe et sur l'année en unité d'énergie par seconde et par mètre carré (W/m^2). L'équilibre radiatif global est établi lorsque la quantité de rayonnement incident est égale à la somme du rayonnement solaire réfléchi et du rayonnement infrarouge thermique sortant (tellurique).

Le forçage radiatif définit toute perturbation de l'équilibre radiatif global et possède une grande importance dans les questions liées aux changements climatiques. Il est donc important de pouvoir le quantifier et de pouvoir le prédire.

Les aérosols (voir section 1.4) participent au bilan radiatif de la terre. La figure 2 montre la contribution des différents éléments intervenants sur le flux d'énergie journalière dans l'atmosphère terrestre en W/m^2 pour une température de surface de 15°C d'après Kiehl et Trenberth (1997). Cependant l'interaction du rayonnement solaire avec l'atmosphère, la biosphère et les océans est aussi compliquée ce qui rend les incertitudes sur le bilan énergétique très importantes. En particulier les incertitudes provoquées par les interactions

rayonnements/aérosols sont très importantes. Donc les chiffres sont indicatifs, ils ne sont connus qu'à quelques W/m^2 près.

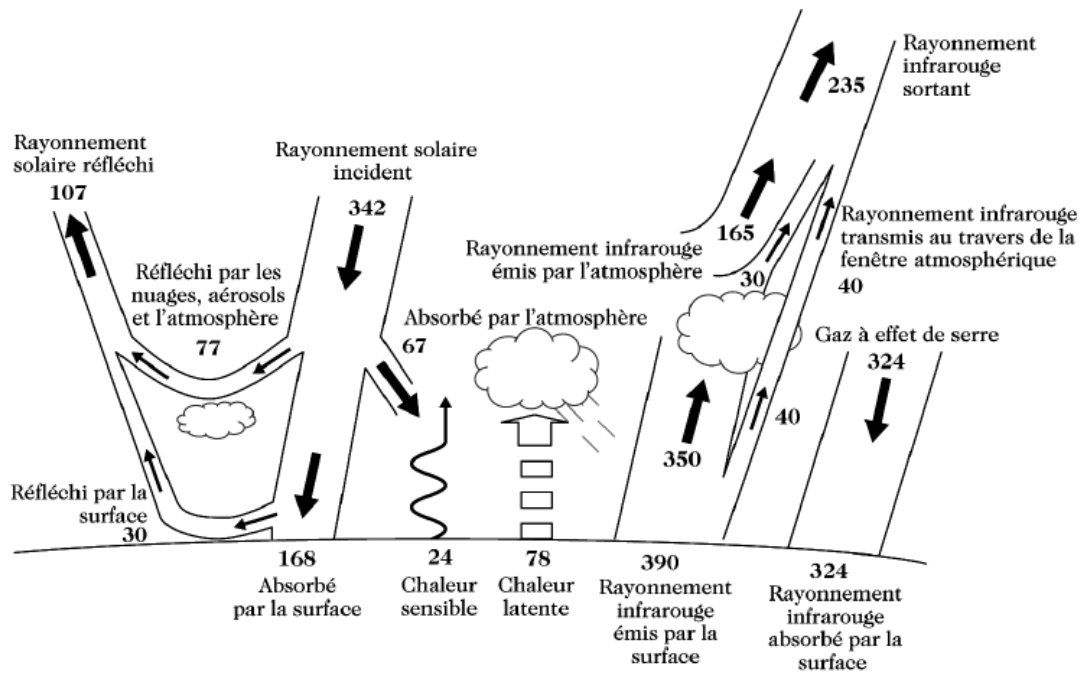


Figure 2 : Bilan d'énergie journalier dans l'atmosphère terrestre en W/m^2 pour une température de surface de 15°C . Extrait de Kiehl et Trenberth (1997)

1.4 Aérosols

Les aérosols désignent les particules solides ou liquides à l'exception des gouttelettes d'eau et des cristaux de glace (les hydrométéores) ayant une vitesse de chute très faible. Leurs trajectoires suivent alors l'écoulement de l'air. Ils sont alors considérés en suspension dans l'atmosphère.

1.4.1 Origines des aérosols

Les aérosols sont divisés en deux familles : les aérosols primaires (de $0,1$ à quelques dizaines de micromètres de diamètre) émis directement par la terre ou par l'espace sous forme liquide ou solide ; et les aérosols secondaires formés dans l'atmosphère à partir de composés déjà présents dans l'air comme les espèces gazeuses. Les aérosols peuvent avoir des origines naturelles ou anthropiques. Les différentes origines des aérosols ainsi qu'une estimation de leurs flux d'émission par an sont fournies dans le tableau ci-après.

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

Tableau 1 : Flux d'émission de particules en Mt/an (1Mt = 10⁶ tonnes).

Extrait du livre de Delmas, 2005. Ces données sont issues des travaux d'Andreae, 1997 et de l'IPCC, 2001

1.4.2 Effet des aérosols sur le climat

Ces dernières années, beaucoup de travaux de recherches ont été effectués sur l'effet des aérosols sur le climat suite aux activités anthropiques qui causent une augmentation de leur concentration. Les aérosols influent le bilan radiatif terre-atmosphère selon deux effet un

effet direct et un effet indirect. Pour une étude détaillée le lecteur peut consulter les travaux de Haywood et Boucher (2000).

1.4.2.1 Effet direct des aérosols

L'effet direct des aérosols correspond à leurs interactions avec les rayonnements solaire ou terrestre (absorption et diffusion). Il est déterminé par les propriétés optiques de l'aérosol c'est-à-dire le coefficient d'extinction, l'albédo et la fonction de diffusion angulaire (Kiehl et Briegleb, 1993). Cet effet peut être un effet négatif et donc un effet de refroidissement quand les aérosols réfléchissent une partie du rayonnement incident vers l'espace (effet parasols). Les aérosols peuvent d'autre part absorber le rayonnement Infra Rouge réfléchi par la surface de la Terre donnant ainsi un effet positif et donc un effet de réchauffement.

1.4.2.2 Effet indirect des aérosols

L'effet indirect des aérosols correspond à leurs interactions avec les nuages. Les aérosols peuvent ainsi modifier la microphysique, les propriétés radiatives et la durée de vie d'un nuage. Les principaux paramètres permettant de déterminer l'effet indirect est l'efficacité d'un aérosol à agir en tant que noyau de condensation des nuages. Cela dépend de la taille, de la composition chimique et de l'environnement ambiant de l'aérosol (Penner et al., 2001). Le premier effet indirect appelé par le rapport IPCC 2007 « l'effet d'albédo des nuages » (*cloud albedo effect*), engendre l'augmentation de l'albédo des nuages. Les aérosols servent comme noyaux de condensation à la vapeur d'eau atmosphérique ; ils engendrent alors l'augmentation du nombre de gouttelettes dans le nuage (la taille de ces dernières est alors plus petite). La surface de réflexion des gouttelettes augmente augmentant ainsi l'albédo des nuages (Lohmann et Feichter, 2005).

Le second effet indirect appelé par le rapport IPCC 2007 « effet durée de vie du nuage » (*cloud lifetime effect*) est la conséquence de l'augmentation du nombre de gouttelettes dans un nuage et donc la diminution de leurs tailles. Ainsi ces gouttelettes précipitent moins facilement car elles n'atteindront pas la taille au-delà de laquelle apparaît la précipitation (faible vitesse de chute) affectant ainsi la durée de vie moyenne du nuage. La figure 3 montre le premier et le second effet indirect d'après les travaux de Haywood et Boucher (2000).

Les aérosols peuvent aussi agir sur l'humidité relative de l'atmosphère ce qui conduit à une modification du couvert nuageux, et donc du forçage climatique des nuages (effet semi-direct).

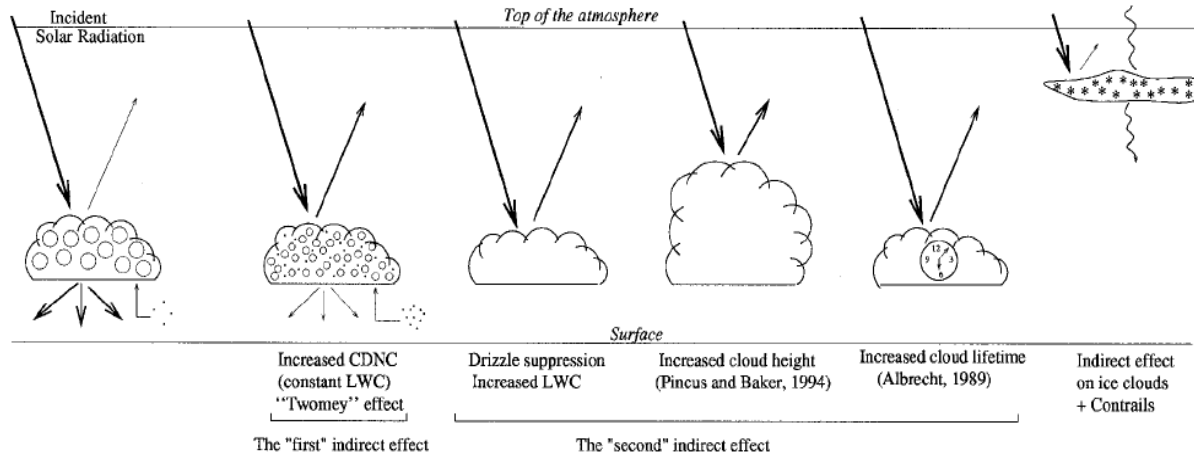


Figure 3 : Diagramme montrant l'effet indirect des aérosols sur le bilan radiatif. Extrait de Haywood et Boucher (2000)

1.5 Aérosols stratosphériques

Actuellement il est admis que les principales familles des aérosols stratosphériques sont constituées des gouttelettes de liquide composées d'un mélange d'eau et d'acide sulfurique. Néanmoins, une forte éruption volcanique peut produire l'injection directe d'aérosols dans la stratosphère. Par ailleurs, il a été trouvé que dans la stratosphère libre des particules volcaniques, des particules solides sont présentes : des poussières interplanétaires, des débris de désintégration météoritiques et des aérosols carbonés (Renard et al., 2008). Les aérosols stratosphériques ont un effet sur la chimie de l'atmosphère notamment par les réactions hétérogènes qu'ils ont avec les espèces azotées et halogénées (Hanson et al, 1994 ; 1996) et un effet sur le biais du transfert radiatif. Il est donc important de pouvoir les quantifier. Les sections suivantes détaillent les différentes études et techniques utilisées pour la détection de ces aérosols.

1.5.1 Détection des aérosols volcaniques dans la stratosphère

Une forte éruption volcanique ayant une énergie assez importante elle peut traverser la tropopause et perturber l'état de la stratosphère. En plus des espèces gazeuses produites lors d'une éruption, des particules de cendres sont également émises dans l'atmosphère.

De nombreuses études ont été effectuées pour déterminer les propriétés physiques des particules volcaniques, en particulier après l'éruption du mont Pinatubo en juin 1991 (Russell et al., 1996), en utilisant diverses techniques de mesure tels que les observations de télédétection par des instruments satellites (Hervig et Deshler, 1998; Steele et al., 1999) et des instruments sous ballon (Berthet et al, 2002), des photomètres au sol (Dutton et al., 1994) et lidars (Jäger et al, 1995; Di Girolamo et al, 1996), et les mesures in situ avec des compteurs de particules embraqués sous ballons (Deshler et al, 2003). Combinées avec les observations antérieures, ces études ont fourni des estimations sur des dizaines d'années de l'évolution de la teneur en aérosols stratosphériques après les éruptions volcaniques qui ont eu lieu au cours de la deuxième partie du XXe siècle (Bingen et al, 2004;. SPARC, 2006).

1.5.2 Détection de poussières interplanétaires dans la stratosphère

La teneur moyenne en poussières interplanétaires dans la stratosphère moyenne attendue est d'environ 10^{-4} particules par cm^3 pour les particules d'environ $1\text{ }\mu\text{m}$ de diamètre (Hunten et al, 1980; Biermann et al, 1996). Ces poussières proviennent des comètes et elles peuvent être également produites par les collisions d'astéroïdes. L'atmosphère de la Terre rencontre tous les jours des dizaines de tonnes de matériaux interplanétaires (Love et Brownlee, 1993). De plus, des météorites se désintègrent dans la moyenne et haute atmosphère, produisant des débris plus ou moins gros. Une très faible quantité de ces poussières réussissent à pénétrer l'atmosphère terrestre et atteindre le sol. Appelées "micrométéorites", de quelques μm jusqu'à $\sim 500\text{ }\mu\text{m}$ de diamètre, elles peuvent être recueillies après avoir été transportées à la surface de la Terre, principalement sur la neige (Maurette et al., 1991 ; Vanderwood et al, 1996; Duprat et al, 2007).

Renard et al. (2005a) ont détecté la présence de ces grains solides de $1\text{ }\mu\text{m}$ de diamètre dans la stratosphère moyenne en utilisant des mesures sous ballon, bien que leurs contributions à la teneur globale en aérosol est faible. Brownlee (1985), Cziczo et al. (2001) et Curtius et al. (2005) ont aussi trouvé ces matériaux dans la basse stratosphère à l'aide d'instruments aéroportés (prélèvement, spectrométrie de masse).

Des observations Lidar ayant détecté une augmentation inattendue de la teneur en aérosols. Gerding et al. (2003) ont proposé que ces aérosols puissent être des débris météoritiques ou de débris de propergol condensé (issus des fusées). Cela a été trouvé dans l'Arctique pendant l'hiver 2000-2001 entre une altitude de 25 km et 40 km, avec une forte variabilité spatiale et temporelle pendant quelques jours. Klekociuk et al. (2005) ont détecté une augmentation en concentration d'aérosols à 30 km d'altitude à l'aide d'un lidar, qui a été bien identifiée comme provenant de la désintégration d'une météorite de quelques mètres de diamètre sur l'Antarctique le 3 Septembre 2004. Des couches de poussières laissées par son parcours ont été détectées par des mesures lidar. La Figure 4 montre la morphologie d'une poussière interplanétaire trouvée dans la stratosphère.

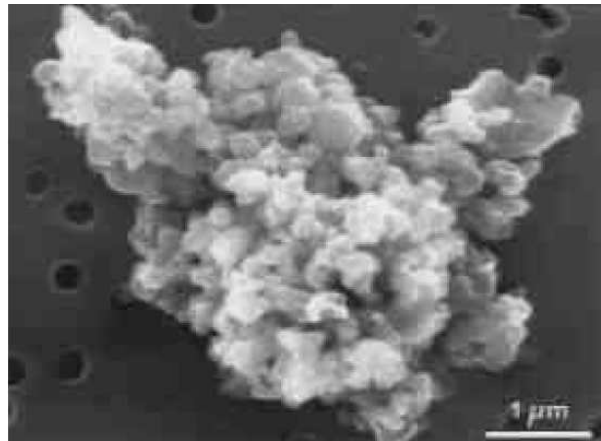


Figure 4 : Image de microscopie électronique montrant la morphologie d'une poussière interplanétaire (d'après Brownlee, 1985)

1.5.3 Détection des aérosols carbonés dans la stratosphère

Des petites particules carbonées ont été collectées notamment en 1984 par Chuan et Woods par des instruments embarqués sous avion entre 18 et 21 km à des latitudes de 23°N à 68°N. Ces particules ont été identifiées comme étant d'origine météoritique.

En 1995, des mesures in situ utilisant une technique d'impact embarqué sur l'avion ER-2 ont collectées dans la haute troposphère et basse stratosphère des agglomérats de suie (voir figure 5). Différents vols ont été conduits à des latitudes de 90 ° N à 45 ° S vers 21 km d'altitude. Il a été suggéré que la combustion du carburant d'aviation est la principale source et que ces suies peuvent être transportée à des altitudes plus élevées (Blake et Kalto, 1995). La figure 5 montre la morphologie d'une suie collectée en haute troposphère collectée lors de ces vols.

Des études théoriques proposent une explication pour le transport des particules de suies vers des hautes altitudes (Rohatschek, 1996). Les auteurs proposent une force d'induction créée par la lumière du soleil agissant sur les particules géométriquement asymétriques et fortement absorbantes comme les suies. Les particules irradiées peuvent être transportées en altitude et leur temps de résidence est prolongé. Ce phénomène s'appelle la gravito-photophorèse. En 2000, Pueschel et al. trouvent que 50 % des particules de suies éjectées par le trafic aérien dans le nord-est de l'océan Atlantique peuvent être transportées à de plus hautes altitudes par effet de gravito-photophorèse. En 2004, Baumgardner et al. ont montré que la suie pourrait être la principale population d'aérosols dans la basse stratosphère parmi les particules ayant une taille supérieure à $0,3\ \mu\text{m}$, dans les latitudes de l'Arctique. Baumgardner et al. (2004) et Schwarz et al. (2006) ont estimé la quantité relative de suies par rapport à la quantité des aérosols liquides et la concentration en masse moyenne en utilisant des instruments sous avions. En appliquant les études théoriques de Hendricks et al. (2004), ces auteurs ont conclu que la contribution des émissions des avions par rapport à la concentration totale en suie est faible ; ils ont donc proposé que la suie provienne principalement des activités anthropiques et des feux de biomasse (voir tableau 1).

La concentration des suies aux moyennes latitudes, détectée par Baumgardner et al. (2004) et Schwarz et al. (2006) est d'environ 30 fois plus faible que dans l'Arctique. Ces mesures indiquent une forte variabilité spatiale de la teneur en aérosols de suies en fonction de la latitude. En 2007, Murphy et al. ont analysé la composition des particules individuelles dans la basse stratosphère et ont constaté que les particules de suie principalement composées de carbone et ayant un diamètre supérieur à $0,3\ \mu\text{m}$ peuvent rester pendant des mois dans l'atmosphère. D'autre part, les particules d'origine météoritiques possèdent une quantité de carbone (organique ou élémentaire) très faible et ne contribuent probablement que peu à ce fond de particule de suies.

Récemment, les mesures d'extinction par les aérosols de l'instrument GOMOS à bord du satellite Envisat ont été effectuées dans le domaine visible. Elles ont permis de mettre en évidence dans la stratosphère (jusqu'à 30 km d'altitude) des particules à faible dépendance spectrale qui ont été définies comme étant des suies (Salazar, 2010).



Figure 5 : Image de microscopie électronique montrant la morphologie d'un agglomérat de suies collectées en haute troposphère. Extrait de D.F. Blake and K. Kato (1995)

En plus de leurs rôles sur le bilan radiatif, les suies pourraient jouer un rôle important dans la chimie de la stratosphère (Lary et al. 1999 ; Bekki, 1997). D'où l'intérêt de développer des techniques de mesures de ce type d'aérosols dans la stratosphère détaillées dans le paragraphe suivant.

1.6 Techniques de mesures des aérosols stratosphériques (en particulier des suies)

Toutes les mesures de détection des suies présentées précédemment ont été menées *in situ* dans la basse stratosphère ou à distance depuis des satellites. La recherche de leur présence dans la moyenne stratosphère peut être effectuée en utilisant des instruments sous ballons qui peuvent atteindre des altitudes de 40 km environ. En raison de la faible pression dans la stratosphère et de la petite quantité attendue des particules, des instruments dédiés uniquement à la troposphère et à la basse stratosphère ne peuvent suffire pour détecter les particules dans la stratosphère entière (en altitude). Ainsi des instruments spécifiques doivent être utilisés, comme les compteurs de particules stratosphériques, les radiomètres qui mesurent la lumière diffusée par les particules et les spectromètres qui mesurent la dépendance spectrale de l'extinction.

Toutes ces techniques qui utilisent les propriétés optiques des aérosols sont difficiles à interpréter séparément, car différents types de particules avec des distributions de taille

différentes peuvent donner des réponses optiquement similaires. D'autre part l'utilisation des hypothèses pour l'analyse des mesures brutes en supposant une forme sphérique des particules, une distribution en taille qui suit une loi log-normale et un indice de réfraction des particules bien défini, pourrait conduire à des résultats irréalistes (Renard et al., 2002b). Par conséquent, il est nécessaire de combiner les mesures des différents instruments afin d'être capable de détecter la présence de particules solides dans la stratosphère.

1.7 Etudes expérimentales : Instruments de mesures

1.7.1 Compteur d'aérosols STAC

STAC (Stratospheric and Tropospheric Aerosols Counter), un compteur d'aérosols utilisé au LPC2E, peut être monté à bord de différentes nacelles sous ballons stratosphériques (Ovarlez et Ovarlez, 1995). Cet instrument fonctionne dans les conditions de basse pression rencontrées dans la stratosphère moyenne, et peut détecter un faible nombre de particules jusqu'à 10^{-4} particules par cm^3 (Renard et al., 2005a). Les mesures sont réalisées au cours de l'ascension du ballon, au cours d'une descente lente sous ballon (si elle a lieu) et au cours de la descente sous parachute. Les tailles de détection des aérosols peuvent être choisies avant le vol, dans la gamme de diamètre entre 0,3 à 2,0 μm . Les particules sont illuminées par un faisceau lumineux émis par une diode laser à 780 nm, et la lumière diffusée est reçue par un photodétecteur à un angle de diffusion de 70 °. Les diamètres des particules sont donnés en supposant que les particules sont non absorbantes et composées d'un mélange d'eau et d'acide sulfurique avec un indice de réfraction de 1,45 (Bemer et al., 1990). Cet instrument ne peut fournir une information précise sur la distribution en taille des particules solides ayant un indice de réfraction comprenant une valeur différente de zéro pour la partie imaginaire de l'indice (Renard et al., 2005a). Néanmoins, il peut être utilisé pour détecter la présence de telles particules, qui sont moins lumineuses que les gouttelettes de liquide, à condition qu'une quantité suffisante de lumière soit diffusée.

1.7.2 Dépendance de l'extinction de la longueur d'onde SALOMON

SALOMON (Spectrométrie d'Absorption Lunaire pour l'Observation des Minoritaires Ozone et NOx), un spectromètre sous ballon développé au LPC2E, permet de donner la dépendance spectrale de l'extinction entre 400 et 675 nm (Berthet et al, 2002). La

contribution de Rayleigh est calculée en utilisant des mesures de température et de pression obtenues lors de l'ascension (à l'aide de capteurs à bord Vaisala) et les contributions de l'ozone, NO_2 , NO_3 , et OCIO aux hautes latitudes, sont recherchées puis soustraites des spectres. Les spectres résiduels obtenus correspondent à la dépendance des aérosols de la longueur d'onde. Les profils verticaux de l'extinction des aérosols sont alors obtenus.

1.7.3 Le radiomètre MicroRADIBAL

MicroRADIBAL (Micro Radiomètre Ballon), instrument sous ballon développé au LOA (Lille) permet de donner les courbes de radiance et les courbes de polarisation en fonction de l'angle de diffusion. Les mesures sont effectuées dans 5 canaux dans le proche infrarouge à 730 nm, 865 nm, 1000 nm, 1270 nm et 1620 nm (Brogniez et al., 2003). Le radiomètre détecte la lumière solaire diffusée par l'atmosphère (gaz et particules). Grâce à la rotation de la nacelle autour de son axe vertical, les observations sont effectuées suivant plusieurs angles de diffusion dans un plan horizontal. La diffusion de Rayleigh et les contributions de surface sont retirées du signal mesuré pour obtenir la signature des aérosols.

1.8 Résultats de ces instruments

La combinaison des résultats de ces différents instruments de mesures sous ballons, en plus des données satellites, ont permis de mieux connaître la nature des aérosols présents dans la stratosphère sans aérosols volcaniques. Trois principaux résultats ont été obtenus par Renard et al., 2008. En premier lieu, il y a une quantité importante d'aérosols au dessus de 22 km. Deuxièmement, la population des aérosols entre 22 et 30 km d'altitude semble contenir des particules de suies qui proviennent probablement de la combustion de feux de biomasse, bien que leurs véritables origines ne puissent pas encore être déterminées sans ambiguïté. Une forte variabilité spatio-temporelle du contenu en suie a été mise en évidence avec notamment la présence de couches fines sur quelques centaines de mètres de hauteur et étendues sur quelques dizaines de km. Troisièmement, des couches non permanentes d'aérosols composées probablement de la désintégration des météorites peuvent être détectées généralement au-dessus de 30 km d'altitude.

Les auteurs proposent une description de la teneur en aérosols dans la stratosphère sans aérosols volcaniques (Figure 6) :

- La poussière interplanétaire en faible concentration est présente dans la stratosphère entière.
- En raison de la désintégration de météorites, une augmentation en concentration d'aérosols sur plusieurs dizaines de kilomètres peut se produire dans la moyenne et haute stratosphère.
- Les suies semblent être présentes en « forte concentration » (quelques particules par cm^3) dans la moyenne stratosphère, avec des augmentations locales pouvant atteindre un facteur 10 en concentration.
- Enfin, des mélanges de particules de suie et de sulfate sont présents dans la basse stratosphère.

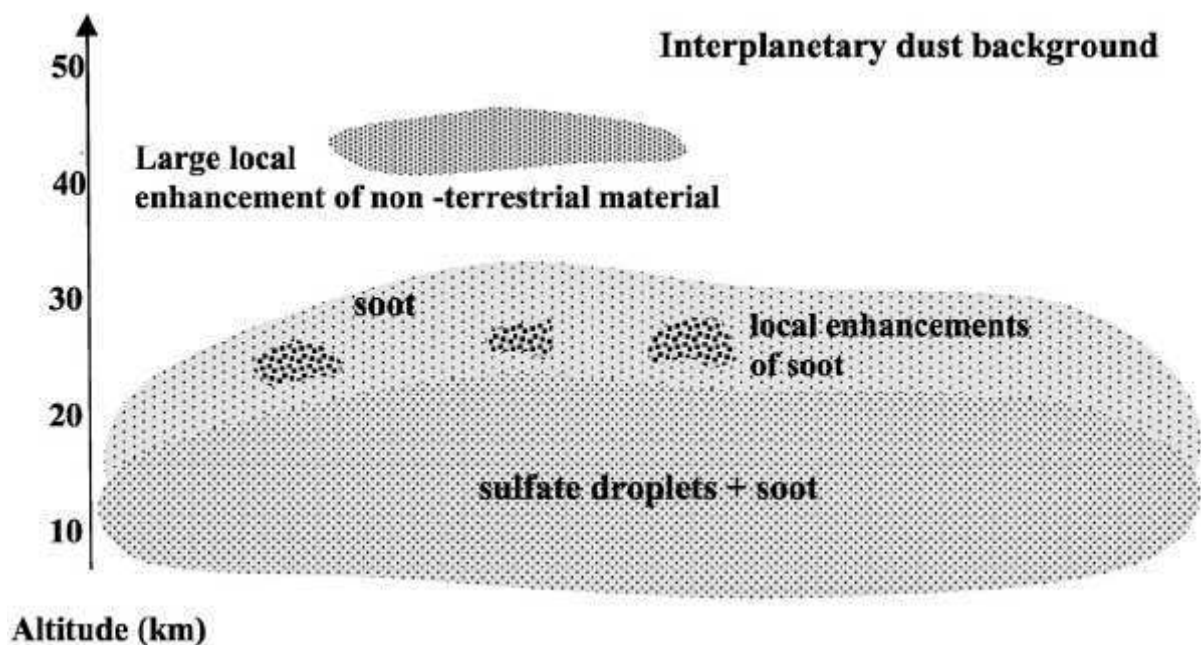


Figure 6 : Répartition verticale des différents types d'aérosols stratosphériques à partir des mesures des instruments sous ballons. Extrait de Renard et al. 2008

1.9 Conclusion

Les calculs théoriques ainsi que les études expérimentales montrent la présence de quantités significatives de suies dans la stratosphère, ce qui pourrait affecter le bilan radiatif terrestre ainsi que la chimie de l'atmosphère. De nouvelles études par de nouveaux vols sous ballons stratosphériques vont alors tenter de mieux documenter les suies stratosphériques.

Des travaux de laboratoire sont nécessaires pour mieux interpréter de nouvelles mesures optiques sous ballons et depuis des satellites. Ce travail de thèse s'inscrit dans cette

stratégie. Il vise à documenter la différence entre les signatures optiques de différents types de suies (ayant des morphologies différentes) provenant de différents modes de combustion et de différents combustibles, ainsi que la différence entre les signatures optiques des mêmes échantillons ayant différentes distributions de taille. Une comparaison également avec les propriétés optiques des différents types de sable que l'on peut trouver dans l'atmosphère sera discutée dans le but de bien différencier les signatures optiques des différentes particules solides.

La base de données présentée dans ce travail traite des propriétés optiques des échantillons dans différentes conditions de mesures, en commençant par le milieu optique le plus épais, les échantillons déposées en surface et tassés, vers le milieu le moins épais pour les particules les plus petites de l'échantillon en lévitation. La stratégie est de documenter au mieux l'évolution des propriétés optiques de ces particules dans les conditions les plus diverses afin de dégager les grandes tendances qui régissent la diffusion lumineuse.

Nous rappellerons dans le chapitre suivant les principales lois de diffusion lumineuse, en détaillant en particulier la polarisation qui constitue la part la plus importante de nos mesures de laboratoire.

Chapitre 2

Diffusion, polarisation et propriétés optiques

2.1 Nature de la lumière

Au XVII^e siècle, Newton pensait que la lumière était formée de corpuscules. En 1678, Huyghens propose un modèle ondulatoire de la lumière. Au XIX^e siècle, les expériences de Young et Fresnel concernant la diffraction ont confirmé la théorie de Huyghens. En 1873, les travaux théoriques de Maxwell, puis les expériences de Hertz en 1885 ont prouvé que la lumière est une onde électromagnétique. En 1900, Max Planck proposa de quantifier l'interaction entre la matière et la lumière : les atomes échangeraient des « quanta » d'énergie avec l'onde lumineuse mais il n'expliqua pas l'origine de cette quantification. En 1905, Einstein a rétabli l'aspect corpusculaire de la lumière en introduisant le concept de photon afin d'expliquer l'effet photoélectrique. Actuellement, la physique admet la dualité onde-corpuscule de la lumière.

Dans cette partie, les ouvrages suivant ont été utilisés : « Polarisation de la lumière » de Serge Huard (1993), chez Masson. « Theory of reflectance and emittance spectroscopy » de Bruce Hapke (1993), chez Cambridge University Press.

2.1.1 Aspect quantique de la lumière

L'énergie de la lumière est "granuleuse". Ce "grain d'énergie" est appelé photon. Pour une onde monochromatique, chaque photon transporte un quantum (une certaine quantité indivisible) d'énergie caractéristique de sa fréquence (fréquence de la lumière = couleur) $h\nu$ (h étant la constante de Planck et ν étant la fréquence).

L'émission de l'onde lumineuse prend naissance lors de la transition descendante d'un électron entre deux niveaux d'un atome de la source. L'énergie perdue par l'électron est égale à $h\nu$, énergie emportée par le photon.

2.1.2 Aspect vibratoire de la lumière

La lumière est une onde électromagnétique qui se propage dans les différents milieux sous forme d'onde. Elle peut être représentée par un vecteur composé d'un champ électrique $E(r, t)$ et d'un champ magnétique $H(r, t)$. Où t et r sont les coordonnées temporelle et spatiale respectivement.

2.2 Emission de la lumière et polarisation

L'émission de la lumière par une source classique (source thermique, diode électroluminescente, lampe spectrale, etc.) est de nature incohérente. Les centres émetteurs émettent à chaque instant et dans des directions différentes et aléatoires; ainsi une superposition incohérente d'onde s'établit. Cette lumière émise d'une façon désordonnée est dite naturelle c'est-à-dire non polarisée. Elle est représentée par un vecteur de champ électrique E à un point défini de l'espace, la direction de ce champ électrique varie rapidement et de manière aléatoire avec le temps. La lumière naturelle peut être transformée en lumière polarisée en utilisant entre autre un polariseur rectiligne qui permet le passage d'une seule direction fixe du champ électrique E . A la sortie, le champ électrique E vibre dans une seule direction et dans ce cas la lumière est polarisée rectilignement. L'évolution des champs électromagnétiques associés aux ondes optiques polarisées est identique dans tous les points de l'espace.

La lumière naturelle peut être partiellement polarisée par le phénomène de réflexion. Une lumière naturelle qui subie une réflexion sur une surface lisse, peut réfléchir avec une particularité qui privilégie une direction de transmission du champ électrique polarisant ainsi la lumière. Ce phénomène peut être observé sur la neige, la glace, l'eau, etc. La lumière diffusée par les molécules de l'atmosphère terrestre est aussi une lumière polarisée (partiellement ou totalement suivant la position de l'observateur).

Dans ce chapitre, nous ferons un rappel sur la nature de la lumière et les équations qui permettent de décrire sa propagation, sa polarisation, son interaction avec une surface et son interaction avec une particule.

2.3 La diffusion de la lumière

Lorsque la lumière arrive sur une particule, une partie est diffusée et l'autre est absorbée diminuant ainsi son intensité. Nous nous intéresserons dans notre travail à la diffusion sans changement de longueur d'onde. La diffusion est définie comme le changement de direction des photons au cours de leur propagation. L'absorption correspond à la transformation de la lumière en d'autres formes d'énergie (chaleur, énergie de réaction chimique, ...)

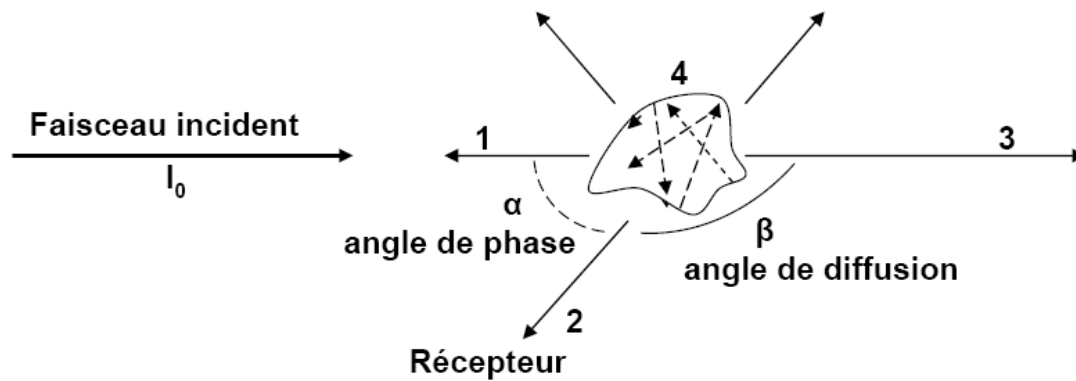


Figure 7 : Schéma définissant les divers angles lorsque la lumière est diffusée.

La lumière est diffusée dans toutes les directions en particulier suivant un angle dit « angle de phase » α suivant la direction d'incidence. En physique de l'atmosphère, nous utilisons l'angle β dit « angle de diffusion » comme angle d'étude. L'angle de diffusion β n'est autre que $(180^\circ - \alpha)$.

Cas 1 : la lumière diffusée vers l'arrière est dite retrodiffusée (angle de phase = 0°)

Cas 3 : la lumière diffusée vers la même direction du faisceau incident est dite diffusée vers l'avant (angle de phase = 180°).

Cas 4 : à l'intérieur de la particule la lumière peut subir des réflexions et diffusions multiples

2.4 Définition des sections efficaces

La diminution de la lumière incidente engendrée par la diffusion et par l'absorption est appelée l'extinction. Cette dernière étant définie comme la somme des puissances absorbée et diffusée s'exprime par :

$$P_{ext} = P_{diff} + P_{abs} \quad (\text{Equation 2.1})$$

P_{diff} étant la puissance diffusée (W)

P_{abs} étant la puissance absorbée (W)

La section efficace correspond au rapport entre la puissance intervenant lors d'une interaction et l'intensité incidente. A chaque type d'interaction on attribue une section efficace (σ_{ext} , σ_{abs} , σ_{diff}).

$$P_{ext} = \sigma_{ext} \cdot I_0 \quad (\text{Equation 2.2.a})$$

$$P_{diff} = \sigma_{diff} \cdot I_0 \quad (\text{Equation 2.2.b})$$

$$P_{abs} = \sigma_{abs} \cdot I_0 \quad (\text{Equation 2.2.c})$$

σ_{ext} Etant la section efficace de l'extinction en m^2

σ_{abs} Etant la section efficace d'absorption en m^2

σ_{diff} Etant La section efficace de diffusion en m^2

I_0 Etant l'intensité incidente sur le milieu en W/m^2

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

$$\sigma_{ext.} = \sigma_{abs} + \sigma_{diff} \quad (\text{Equation 2.3})$$

2.5 Albédo d'une diffusion simple

L'albédo de diffusion simple est une grandeur sans dimension. Il est défini comme le rapport de la partie diffusée sur la partie reçue de la lumière. Autrement dit c'est la probabilité pour qu'un photon de l'onde incidente ne soit pas absorbé par la particule. Il est égal au rapport des sections efficaces de diffusion et d'extinction.

$$\pi_0 = \frac{I_{diff}}{I_{ext}} = \frac{I_{diff}}{(I_{diff} + I_{abs})} \quad (\text{Equation 2.4})$$

2.6 Propagation d'une onde dans le vide

Les équations de Maxwell permettent de décrire la propagation d'une onde plane, monochromatique de fréquence angulaire ω et de vecteur d'onde k parallèle à l'axe Oz se propageant dans un milieu homogène et isotrope d'indice n .

$$\text{div} \vec{D} = \rho \quad (\text{Equation 2.5.a})$$

$$\text{div} \vec{B} = 0 \quad (\text{Equation 2.5.b})$$

$$\vec{\text{rot}} \vec{E} = - \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (\text{Equation 2.5.c})$$

$$\vec{\text{rot}} \vec{H} = \vec{j} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (\text{Equation 2.5.c})$$

$\vec{E}$ étant le champ électrique

$\vec{H}$ étant le champ magnétique

$\vec{D}$ étant l'induction électrique

$\vec{B}$ étant l'induction magnétique

ρ étant la densité de charge électrique

$\vec{j}$ étant la densité de courant

En absence de charge électrique et de courant électrique, nous avons :

$$\rho = 0 \quad (\text{Equation 2.6.a})$$

$$\vec{j} = \vec{0} \quad (\text{Equation 2.6.b})$$

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} \quad (\text{Equation 2.6.c})$$

$$\vec{B} = \mu_0 \vec{H} \quad (\text{Equation 2.6.d})$$

ϵ_0 étant la permittivité du vide

μ_0 étant la perméabilité du vide

Dans le vide les équations de Maxwell s'écrivent

$$\text{div} \vec{E} = 0 \quad (\text{Equation 2.7.a})$$

$$\text{div} \vec{B} = 0 \quad (\text{Equation 2.7.b})$$

$$\vec{\text{rot}} \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (\text{Equation 2.7.c})$$

$$\vec{\text{rot}} \vec{B} = \mu\epsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad (\text{Equation 2.7.d})$$

Les vecteurs $\vec{E}$ et $\vec{H}$ sont perpendiculaires entre eux et à la direction de propagation (Oz) (voir figure 8).

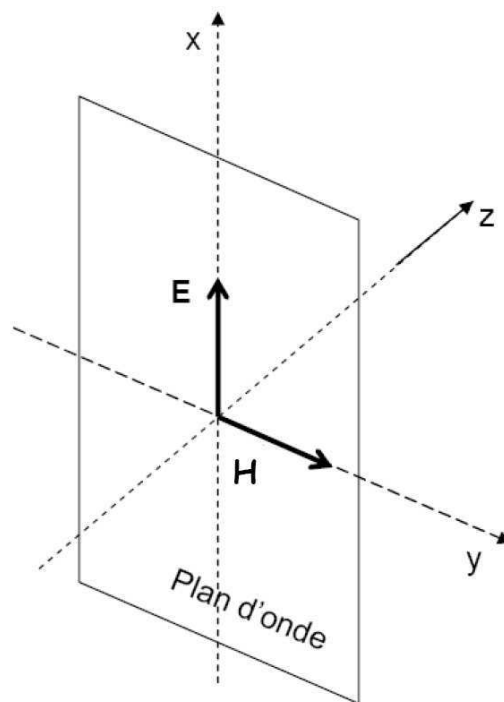


Figure 8 : Représentation du champ électrique E et du champ magnétique H par rapport à la direction de propagation de l'onde (Oz)

2.7 Etat de polarisation le plus général

Considérons (Oz) la direction de propagation de l'onde, le vecteur électrique s'exprime en notion complexe par :

$$E(z, t) = E_0 \exp[-i(\omega t - kz)] \quad (\text{Equation 2.8})$$

Avec $k = nk_0 = n\omega/c$; ω étant la fréquence angulaire

$$\vec{E} = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_{0x} e^{-i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})} \\ E_{0y} e^{-i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r} - \phi)} \\ 0 \end{pmatrix} \quad (\text{Equation 2.9})$$

Où $\vec{r}$ représente le vecteur position de $\vec{E}$

ϕ représente le déphasage à l'origine entre E_x et E_y

E_{0x} et E_{0y} sont les amplitudes instantanées

L'onde se propage suivant $\vec{u}_z$ donc $\vec{r} = z \cdot \vec{u}_z$ et le vecteur $\vec{E}$ s'écrit :

$$\vec{E} = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_{0x} e^{-i(\omega t - kz)} \\ E_{0y} e^{-i(\omega t - kz - \phi)} \\ 0 \end{pmatrix} \quad (\text{Equation 2.10})$$

Dans un repère cartésien orthonormé Oxy, les composantes cartésiennes réelles du vecteur $E(z, t)$ s'écrivent :

$$E_x(z, t) = E_{0x}(t) \cos(\omega t - \frac{n}{\lambda} z - \phi_x) \quad (\text{Equation 2.11.a})$$

$$E_y(z, t) = E_{0y}(t) \cos(\omega t - \frac{n}{\lambda} z - \phi_y) \quad (\text{Equation 2.11.b})$$

ϕ_x et ϕ_y représentent les phases à l'émission.

ϕ Caractérise l'état de polarisation de la lumière. Il y a trois formes de polarisation d'une onde électromagnétique (elliptique, circulaire et rectiligne) et cela dépend des valeurs de ϕ . Cela est détaillé dans les sections suivantes.

2.7.1 Polarisation elliptique

Quand ϕ est quelconque et $E_{0x} \neq E_{0y}$, les équations (2.11.a) et (2.11.b) donnent :

$$\left(\frac{E_x}{E_{0x}}\right)^2 + \left(\frac{E_y}{E_{0y}}\right)^2 - 2\left(\frac{E_x}{E_{0x}}\right)\left(\frac{E_y}{E_{0y}}\right)\cos\phi = \sin^2\phi \quad (\text{Equation 2.12})$$

Ce qui représente l'équation d'une ellipse décrite par le champ électrique E . Dans ce cas, la lumière est polarisée elliptiquement. Voir figure 9 et figure 10.

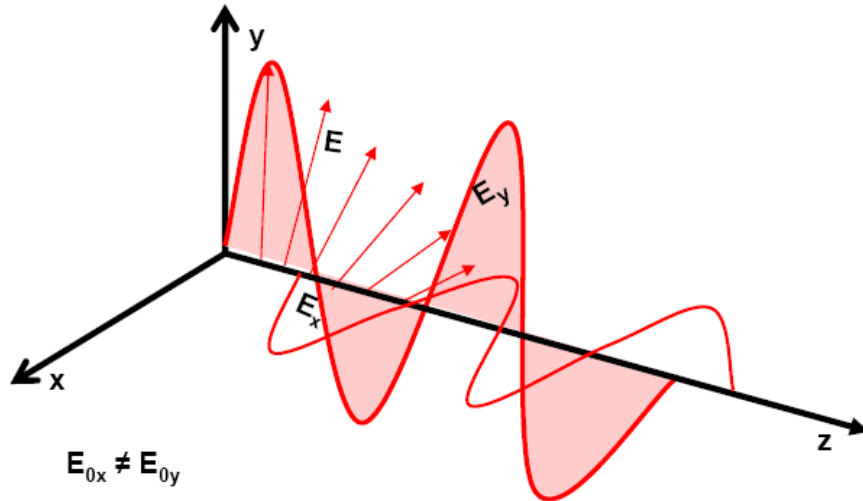


Figure 9 : Etat de polarisation elliptique. L'extrémité du vecteur champ électrique décrit une ellipse dans le plan d'onde. (Oz) étant est la direction de propagation de l'onde.

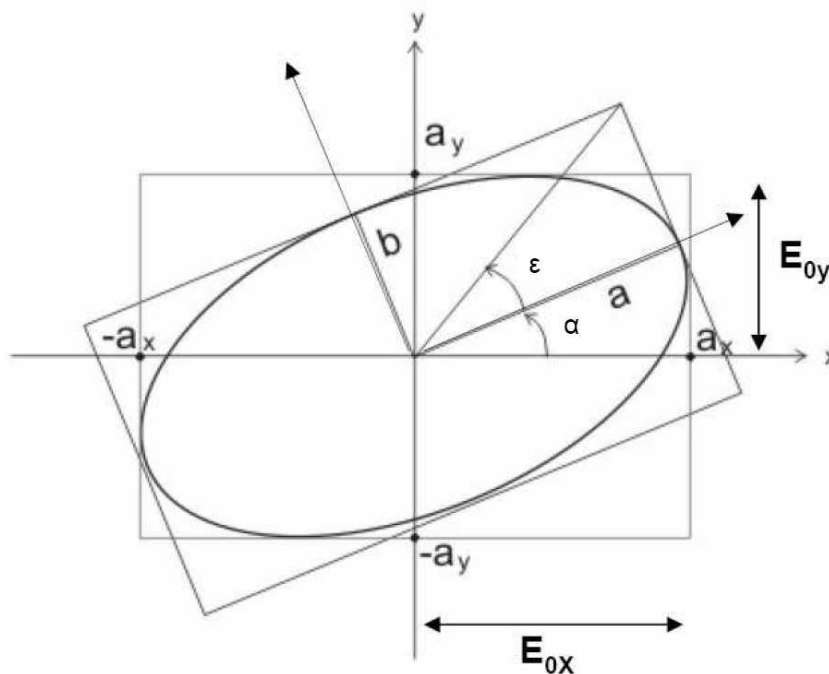


Figure 10 : Représentation elliptique et paramètres d'un état de polarisation elliptique. a et b représentent les demis axes de l'ellipse. α et ϵ caractérisent l'orientation et l'ellipticité de l'ellipse.

2.7.2 Polarisation circulaire

Quand $\phi = \frac{\pi}{2} + p\pi$ (avec p entier relatif) et $E_{0x} = E_{0y}$, l'équation 2.10 devient :

$$\vec{E} = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{E_0}{\sqrt{2}} e^{-i\omega t} \\ \pm \frac{E_0}{\sqrt{2}} e^{-i(\omega t - \pi/2)} \\ 0 \end{pmatrix} \quad (\text{Equation 2.13})$$

Ce qui donne en notation réelle :

$$\vec{E} = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{E_0}{\sqrt{2}} \cos \omega t \\ \pm \frac{E_0}{\sqrt{2}} \sin \omega t \\ 0 \end{pmatrix} \quad (\text{Equation 2.14})$$

Cette équation donne :

$$E_x^2 + E_y^2 = E_0^2 \quad (\text{Equation 2.15})$$

Ce qui représente l'équation d'un cercle de rayon E_0 et de centre O dans le système de coordonnées (E_x, E_y) . Dans ce cas, la lumière est polarisée circulairement. Voir figure 11 et figure 12.

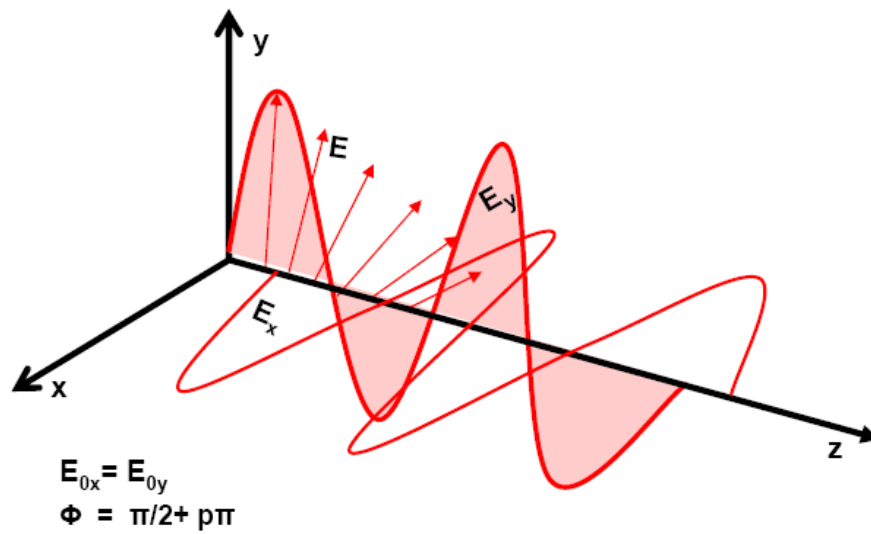


Figure 11 : Etat de polarisation circulaire. L'extrémité du vecteur champ électrique décrit un cercle dans le plan d'onde. (Oz) étant la direction de propagation de l'onde.

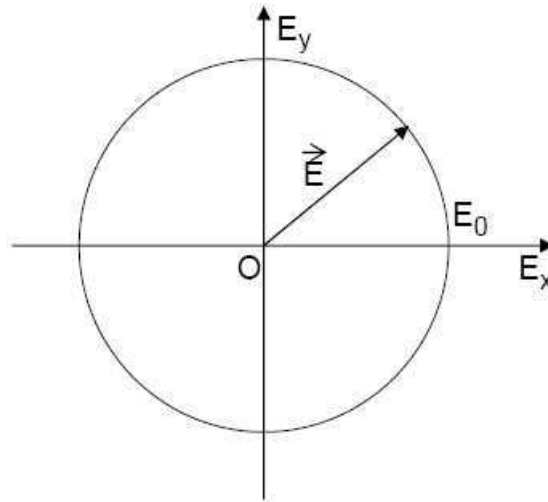


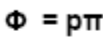
Figure 12 : Cercle décrit par l'extrémité du vecteur champ électrique dans le plan d'onde. Cas d'une polarisation circulaire

2.7.3 Polarisation linéaire ou rectiligne

Quand $\phi = p\pi$ (avec p entier relatif). Le champ électrique E correspond à une onde électromagnétique qui oscille dans un plan fixe, c'est-à-dire E conserve à tout instant la même direction. Dans ce cas, la lumière est polarisée linéairement (figure 13 et figure 14) les vecteurs E_x et E_y sont en phase lorsque l'un est positif l'autre l'est aussi.

Supposons $E_{0x} = E_{0y} = \frac{E_0}{2}$ et $\phi = 0$, nous obtenons :

$$\vec{E} = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{E_0}{\sqrt{2}} \cos \omega t \\ \frac{E_0}{\sqrt{2}} \sin \omega t \\ 0 \end{pmatrix} \quad (\text{Equation 2.16})$$



étant la direction de propagation de l'onde.



l'axe (Ox) et l'axe (Oy).

2.8 Paramètres de Stokes

George Gabriel Stokes introduit en 1852 un ensemble de quatre valeurs qui décrivent l'état de polarisation de la lumière ne mettant en jeu que des nombres réels, des grandeurs relatives à des intensités de composantes du champ ou de combinaison de ces intensités, équation 2.17. Ces paramètres sont connus sous le nom de paramètres de Stokes et sont extrêmement importants car dans le domaine optique seules les intensités sont directement mesurables. Les paramètres de Stokes peuvent être définis à partir des paramètres de l'ellipse de la figure 10.

$$S = \begin{bmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} I_0 \\ I_x - I_y \\ I_{+45^\circ} - I_{-45^\circ} \\ I_G - I_D \end{bmatrix} \quad (\text{Equation 2.17})$$

I représente l'intensité totale de l'onde optique, strictement positive.

Q représente la différence d'intensité des composantes rectilignes suivant Ox et Oy . Ce qui conduit à $Q = I_x - I_y$. Si Q n'est pas nulle alors l'onde est polarisée.

U représente la différence d'intensité des composantes rectilignes à 45° des axes Ox et Oy . Ce qui conduit à $U = I_{+45^\circ} - I_{-45^\circ}$.

V représente l'intensité de polarisation circulaire. C'est-à-dire la différence d'intensité des composantes sur la base des états gauche à droite qui conduit à $V = I_G - I_D$. Cette grandeur peut être positive ou négative selon le sens de rotation.

Les paramètres de Stokes vérifient la relation suivante :

$$I^2 = Q^2 + U^2 + V^2 \quad (\text{Equation 2.18})$$

L'état de polarisation peut donc être déterminé par les paramètres de Stokes. Le tableau 2 montre les valeurs des paramètres de Stokes pour les états de polarisation.

Polarisation	Vecteur de Stokes	Polarisation	Vecteur de Stokes
Rectiligne horizontale	$\begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$	Circulaire droite	$\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$
Rectiligne verticale	$\begin{pmatrix} 1 \\ -1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$	Circulaire gauche	$\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ -1 \end{pmatrix}$
Rectiligne $\pm 45^\circ$	$\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ \pm 1 \\ 0 \end{pmatrix}$	Lumière non polarisée	$\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$

Tableau 2 : L'état de polarisation déterminé par les paramètres Stokes

2.9 Représentation de la polarisation sur la sphère de Poincaré

La polarisation peut être représentée sur une sphère appelée sphère Poincaré (figure 15), en normalisant les composantes de Stokes par I . Soit P le vecteur S normalisé par I , l'extrémité du vecteur P trace une courbe sur la sphère avec la variation de la polarisation.

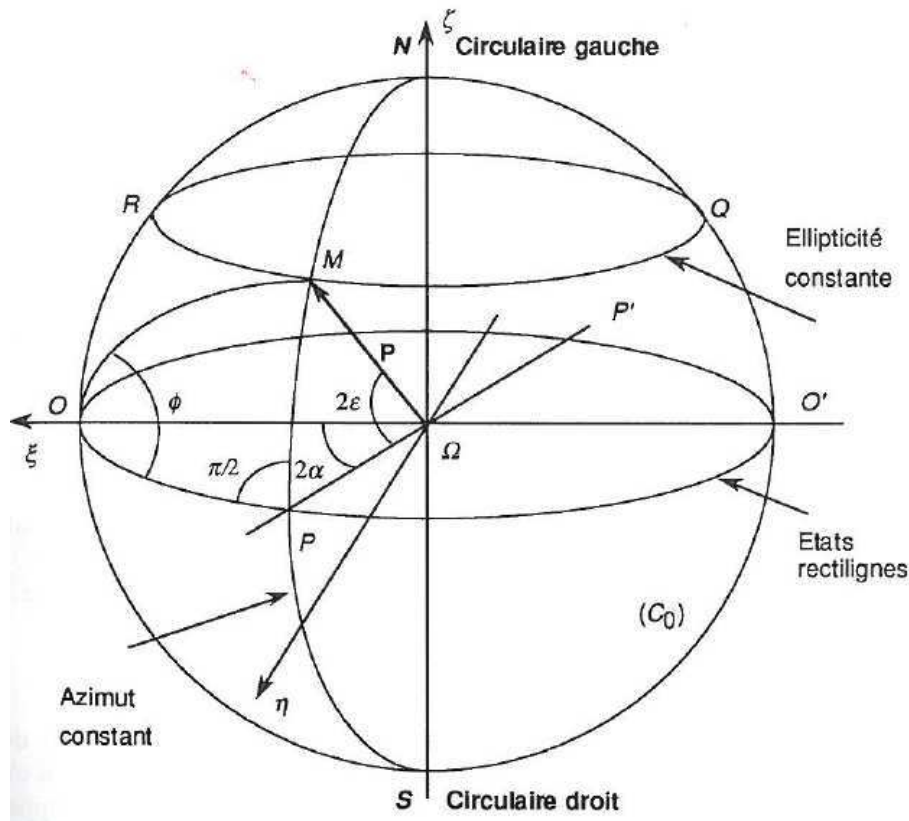


Figure 15: Représentation des états de polarisation sur la sphère Poincaré.
Extrait de Polarisation de la lumière (Huard, 1993).

Etats de polarisation :

- L'ensemble des états de polarisation rectiligne est représenté sur l'équateur de la sphère ($\varepsilon=0$)
- L'ensemble des états de polarisation circulaires (gauche et droite) est représenté par les deux pôles de la sphère ($\varepsilon = \pm\pi/2$)
- L'état le plus général (la polarisation elliptique) est présenté par n'importe quel point sur la sphère qui n'est pas situé sur l'équateur ou aux pôles de la sphère de Poincaré.

Une lumière complètement polarisée est alors définie par un point sur la sphère. Dans le cas d'une lumière dépolarisée, il peut être considéré que la lumière contient tous les états de polarisation représentés par tous les points de la sphère. Une lumière partiellement polarisée est représentée par un ensemble de point groupé plus ou moins au voisinage d'un point M sur la sphère. Dans ce travail, nous ne nous intéresserons qu'à la polarisation rectiligne.

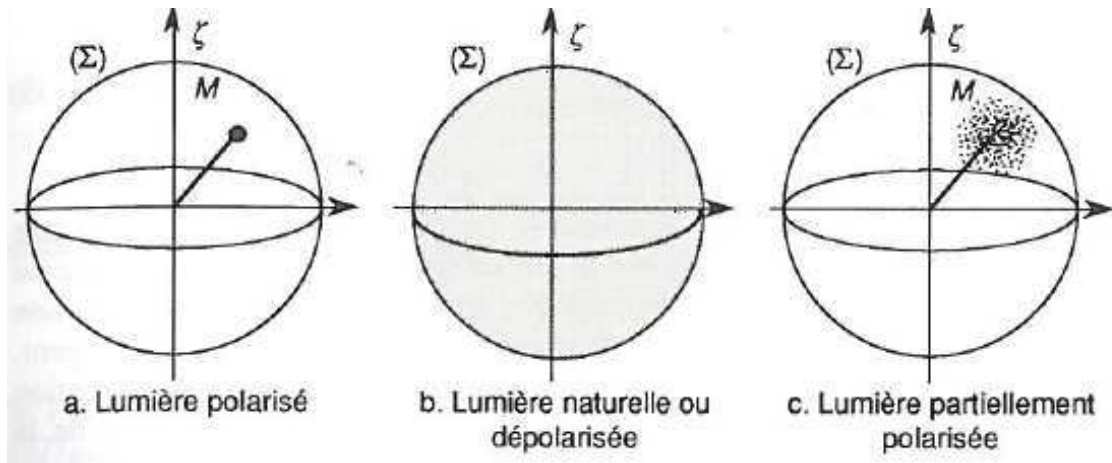


Figure 16 : Représentation des différents types de lumière sur la sphère de Poincaré
Extrait de Polarisation de la lumière (Huard, 1993).

2.10 Degré de polarisation suivant les paramètres de Stokes

L'intensité lumineuse totale est égale à la somme des intensités de la lumière polarisée et de la lumière non polarisée.

$$I_t = I_p + I_{np} \quad (\text{Equation 2.19})$$

I_p est l'intensité de la lumière complètement polarisée et I_{np} est l'intensité de la lumière non polarisée.

Le taux de polarisation est le rapport entre l'intensité de la lumière polarisée et l'intensité totale

$$p = \frac{I_p}{I_p + I_{np}} \quad (\text{Equation 2.20})$$

Les paramètres de Stokes permettent de définir et de calculer le degré d'une lumière partiellement polarisée. La définition des paramètres de Stokes vu dans l'équation 2.15 peut être exprimée pour une lumière naturelle ou partiellement polarisée de la façon suivante :

$$\begin{bmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \langle I_0 \rangle \\ \langle I_x - I_y \rangle \\ \langle I_{+45^\circ} - I_{-45^\circ} \rangle \\ \langle I_G - I_D \rangle \end{bmatrix} \quad (\text{Equation 2.21})$$

Où $\langle \rangle$ signifie la valeur moyenne temporelle.

Le degré de polarisation défini à partir des paramètres de Stokes est le suivant

$$p = \frac{\sqrt{Q^2 + U^2 + V^2}}{I} \quad (\text{Equation 2.22})$$

p est compris entre 0 et 1. Lorsque $p=0$, la lumière est non polarisée. Lorsque $p=1$ la lumière est totalement polarisée. Dans les autres cas, la lumière est partiellement polarisée.

Dans le cas d'une polarisation rectiligne, l'équation 2.22 devient

$$p = \frac{\sqrt{U^2 + V^2}}{I} \quad (\text{Equation 2.23})$$

2.11 Matrice de Mueller

La matrice de Mueller (ou matrice de diffusion (4x4)) permet de passer des paramètres de Stokes de l'onde incidente à ceux de la lumière diffusée.

$$E^i = S \times E^{diff} \quad (\text{Equation 2.24})$$

S Etant la matrice de Mueller pour une particule de forme quelconque.

E^i Etant le champ électrique de l'onde incidente.

E^{diff} Étant le champ électrique de l'onde diffusée.

2.12 Diffusion de la lumière par des particules

2.12.1 Diffusion simple

La diffusion simple a lieu quand la distance entre les particules est 3 fois supérieure à leurs diamètres (Van de Hulst, 1957). C'est la diffusion des particules indépendamment les unes des autres. Dans ce cas, l'intensité est proportionnelle au nombre de particules.

2.12.2 Diffusion multiple

La diffusion multiple a lieu dans un milieu optiquement épais. Les particules reçoivent de la lumière diffusée par d'autres particules. Ainsi la lumière incidente diminue par absorption de plusieurs particules.

2.13 Interaction lumière-particule

L'interaction lumière-particule dépend de la taille des particules par rapport à la longueur d'onde. Ce rapport est défini par le facteur suivant :

$$\alpha = \frac{\pi D}{\lambda} \quad (\text{Equation 2.31})$$

D étant le diamètre de la particule (En considérant que la particule est sphérique).

Pour les molécules et pour les particules de très petite taille ($\alpha \ll 1$), la théorie de Rayleigh est appliquée.

En 1983, Bohren et Huffman décrivent la diffusion de la lumière par une particule ayant une grande dimension par rapport à la longueur d'onde ($\alpha \gg 1$) comme l'interaction avec une lame à faces parallèles (Figure 17 : L'interaction avec une lame à faces parallèles (Théorie de l'optique géométrique)). Dans ce cas la théorie de l'optique géométrique sera appliquée (lois de Descartes (réflexion, réfraction, ...)).

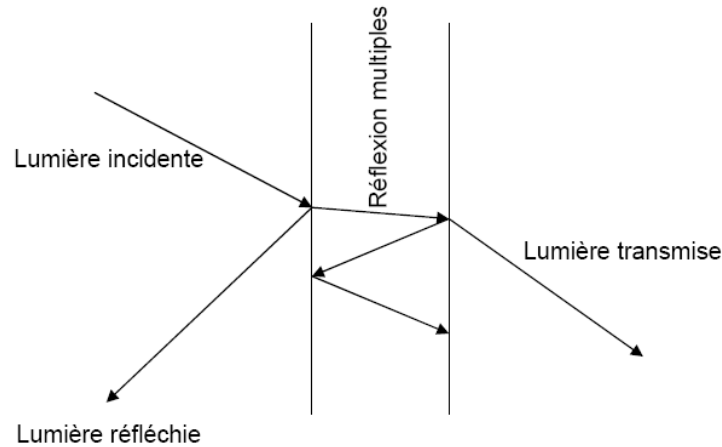


Figure 17 : L'interaction avec une lame à faces parallèles (Théorie de l'optique géométrique)

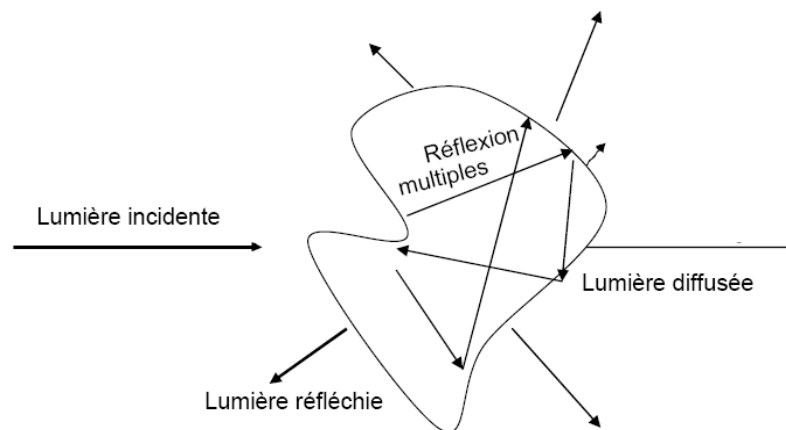


Figure 18 : Analogie entre l'interaction de la lumière avec une lame à faces parallèles et interaction de la lumière avec une grande particule.

Pour les particules de tailles intermédiaires, la théorie de Lorenz-Mie (1908) est utilisée. Si la théorie de Mie est utilisée pour des particules de très petites tailles, la théorie de Rayleigh est retrouvée.

2.14 Théorie de Mie

La théorie de Mie donne une solution analytique exacte des champs électromagnétiques en appliquant les équations de Maxwell sur une particule sphérique et lisses. Cette interaction dépend du facteur défini dans l'équation 2.31 donc de la longueur d'onde ainsi que de la taille de la particule. Elle dépend aussi de l'absorption d'une partie de

l'onde par la particule provoquant ainsi une énergie thermique et de la déviation du front d'onde (indice de réfraction (imaginaire)).

2.15 Particules non sphériques

Pour les particules de petites tailles et non sphériques la diffusion de Rayleigh reste applicable. Pour les particules de tailles intermédiaires, plusieurs théories sont proposées ; citons quelques unes :

- Pour les particules ellipsoïdes aplaties ou allongées, la théorie T-matrix (Mishchenko et al., 1996).
- Pour des formes complexes, l'approximation du dipôle discret (DDA) (Draine et Flatau, 1994 ; Lumme et Rohala ,1994). Cette méthode ne donne pas des solutions précises.
- Pour des formes complexes ou quelconques, (Mishchenko et al., 2000), méthodes des éléments finis (Silvester et Ferrari, 1996), ou méthode du «Finite Difference Time Domain» (Yang et Liou, 1998). Ces techniques donnent des solutions exactes mais sont très coûteuses en temps de calcul.

Chapitre 3

L'expérience PROGRA2

PRopriétés Optiques des Grains Astronomiques et Atmosphériques



Photo des expériences et des expérimentateurs à l'intérieur de l'avion A300-ZeroG

ESA: (c) Copyright: Photo ESA - Anneke Le Floc'h

3.1 Introduction

PROGRA2 est un acronyme français pour « Propriétés Optiques des Grains Astronomiques et Atmosphériques ». L'expérience est financée par le Centre National d'Etudes Supérieures (CNES) et grâce à des contrats avec la société Environnement-SA. Le responsable scientifique est Jean-Baptiste RENARD (LPC2E). L'instrument est utilisé en collaboration avec le LATMOS.

PROGRA2 est un concept photopolarimètre imageur destiné à obtenir les fonctions de diffusion en radiance et polarisation de grains solides (Renard et al., 2002b; Hadamcik et al., 2009a).

Le projet PROGRA2 a débuté en 1993. Le logo du projet est présenté sur la figure 19. Le projet compte 3 instruments opérationnels (PROGRA-vis, PROGRA2-IR, PROGRA2-surf) et un en cours de développement (PROGRA2-aero). Ici sera utilisée la quatrième version de l'instrument PROGRA2-vis, suivant une politique d'améliorations permanentes des performances des instruments.



Figure 19 : Logo de PROGRA2

Deux exemplaires de PROGRA2 sont utilisés dans ce travail pour obtenir des courbes de polarisation et de radiance (ou brillance) en fonction de l'angle de diffusion pour différentes natures d'échantillons dans différentes conditions de mesures :

- PROGRA2-vis (*visible*) montré dans la figure 20, permet d'obtenir les courbes de polarisation et les courbes de radiances pour les particules en lévitation représentatives d'un nuage de particules sans orientation privilégiée. L'instrument peut être utilisé en vols paraboliques (micropesanteur) pour les particules relativement lourdes et en laboratoire pour les particules légères.

- PROGRA2-surf (*surface*) montré dans la figure 21, donne les courbes de polarisation et les courbes de radiances pour les mêmes particules déposées en surface.



Figure 20 : Photographie de PROGRA2-vis

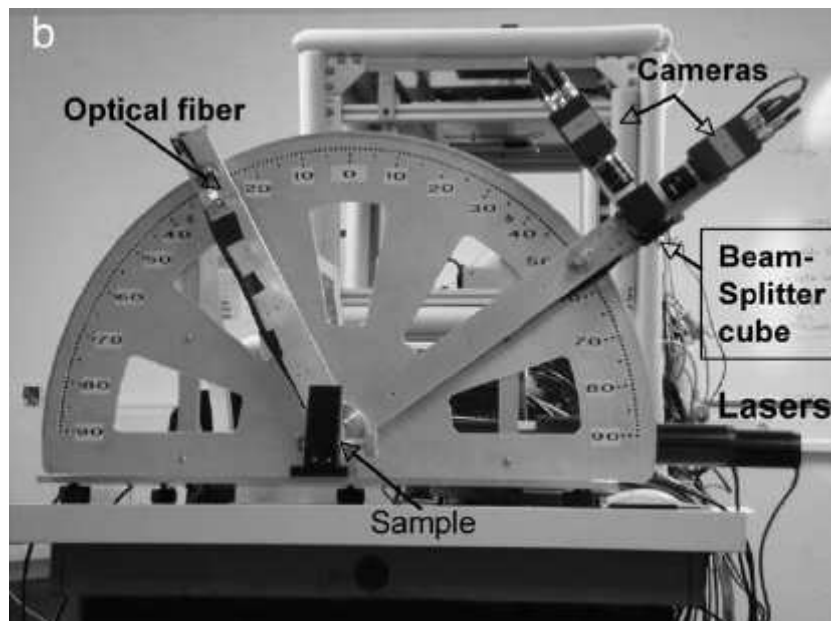


Figure 21 : Photographie de PROGRA2-surf

3.2 L'expérience PROGRA2-vis

3.2.1 Composante du dispositif

Le dispositif se compose de :

1. Deux sources LASER à gaz He-Ne à 543,5 nm et 632,8 nm de longueur d'onde. Les lasers sont à polarisation aléatoire temporellement, que l'on pourra donc approximer comme étant non polarisé, le temps de pose des détecteurs étant suffisamment long.
2. Une fibre optique dont chaque extrémité est munie d'une lentille convergente.
3. Une fiole en verre transparent de forme cylindrique (environ 40 mm de diamètre et d'environ 100 mm de hauteur) comprenant :
 - latéralement : un cylindre en verre peint en noir opaque (8 mm de diamètre externe et environ 6 mm de diamètre interne et 12 mm de longueur) sur lequel se fixe la sortie de la fibre optique ; un piège lumière fait face à ce système d'entrée, (figure 27). Comme son nom l'indique le piège lumière sert à piéger la lumière et à l'empêcher de réfléchir sur les parois.
 - Au sommet, un dispositif d'injection d'azote pour les mesures en laboratoire ; par contre, la fiole est fermée sous vide pour les mesures lors des vols paraboliques.
4. Un système de rotation sur lequel est montée la fiole telle que l'axe de rotation est confondu avec l'axe central du cylindre que forme la fiole. Le système est monté sur amortisseur en caoutchouc. Un impacteur (nommé aussi kickeur), utilisé uniquement lors des vols paraboliques, permet d'aider à la lévitation des particules en donnant des petites impulsions sur le système de rotation (voir figure 22).
5. Un système récepteur comprenant :
 - Une caméra CCD, dite de référence, fixée sur la même platine que la fiole, à un angle de diffusion de 90° par rapport au faisceau et qui permet de visualiser l'échantillon toujours dans les mêmes conditions d'observation et donc de normaliser la radiance ;
 - Un cube optique permettant de diviser la lumière diffusée par l'échantillon en deux types de composantes : la composante parallèle et la composante perpendiculaire;
 - Deux caméras CCD enregistrant chacune les composantes de la lumière issues du cube optique. La figure 22 montre comment le cube optique et les deux caméras sont disposés. Ces dernières étant fixes le changement de l'angle de

diffusion se fait en pivotant la platine « fiole-caméra de référence » autour de son axe. L'angle de diffusion peut ainsi varier entre 10° et 175° . Ces limites angulaires sont dues à la lumière parasite provenant du piège lumière ainsi qu'au dispositif d'entrée du faisceau laser dans la fiole ;

6. Un système informatique auquel sont reliés à la fois la platine pivotable, afin de commander les changements de l'angle de diffusion, et les caméras afin d'enregistrer les images.

L'ensemble de mesure présenté sur la figure 22 est placé dans une caisse optique peinte en noir et lié à au système informatique.

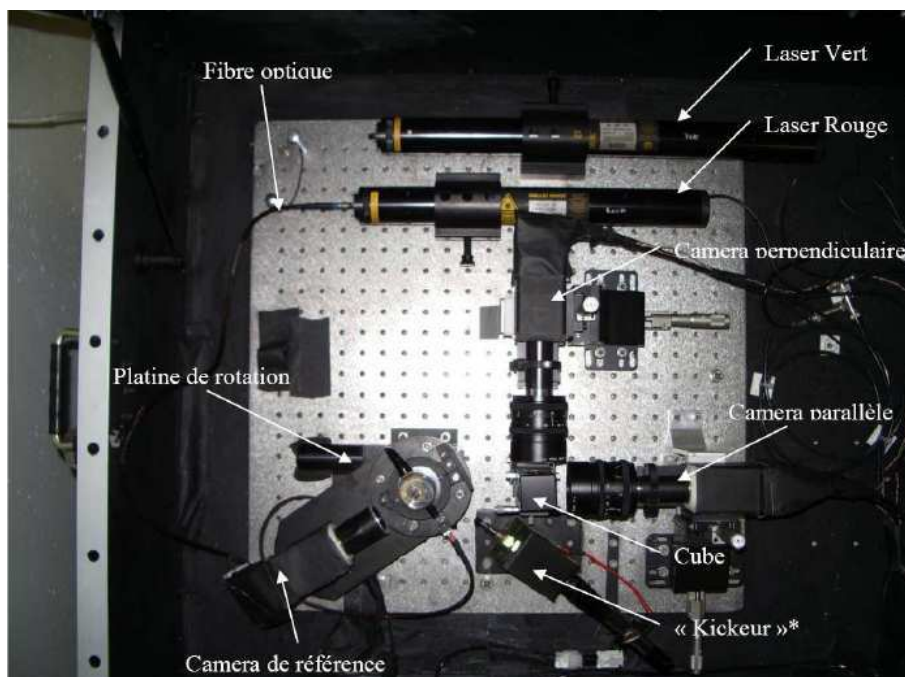


Figure 22 : Photographie de la caisse optique de PROGRA2-vis

3.2.2 Principe de mesure

La figure 23 montre le principe de mesure de PROGRA-vis. La lumière émise par le laser est transmise par la fibre optique dont la sortie est fixe sur la platine mobile. A l'aide du système informatique, l'angle de diffusion est introduit par l'utilisateur de l'instrument et la platine tourne autour du centre de la fiole. Cet angle est choisi par l'utilisateur, avec généralement un pas de 5° ou 10° entre deux mesures successives. Au moins une vingtaine d'angles de diffusion est nécessaire pour construire « pas à pas » une courbe de diffusion.

L'originalité du principe est de faire tourner la source lumineuse et l'échantillon au cours des mesures, et non le système de détection. Cette approche simplifie énormément les montages optiques et mécaniques.

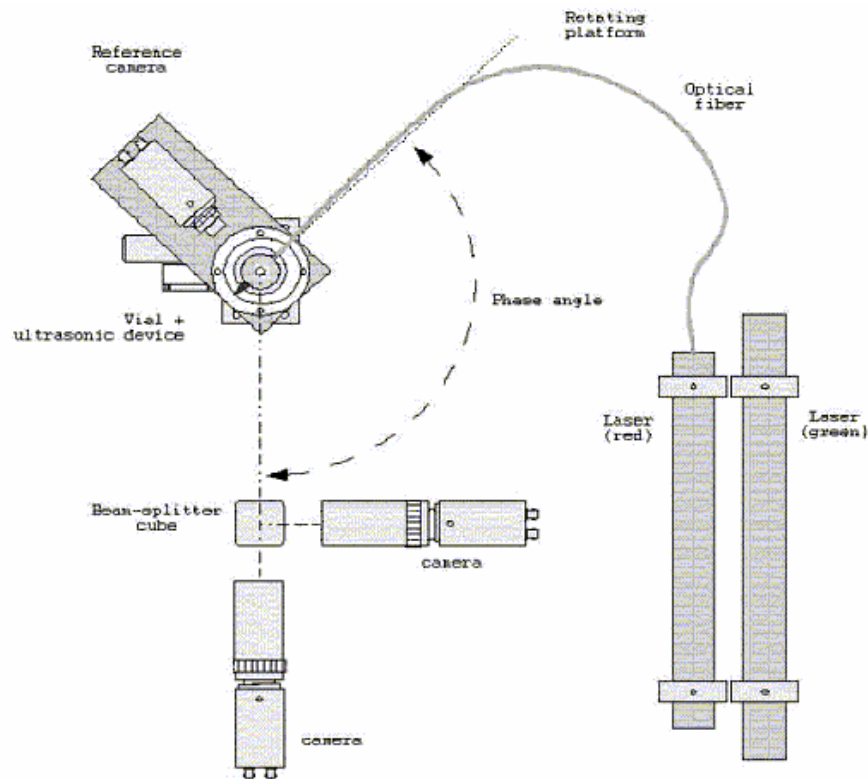


Figure 23 : Principe de mesure de PROGRA2-vis

3.3 L'expérience PROGRA2-surf

L'instrument PROGRA2-surf fonctionne suivant un principe similaire à PROGRA2-vis. Elle contient les deux mêmes sources LASER à gaz He-Ne, la lumière est transmise par une fibre optique dont la sortie est fixe sur un bras mobile. Le faisceau laser transmis par la fibre optique va illuminer l'échantillon déposé en surface. L'échantillon renvoie la lumière suivant toutes les directions en particulier vers le système récepteur (cube optique et caméras CCD) porté par un deuxième bras mobile. L'angle de diffusion entre les deux bras est lu sur un demi-disque gradué qui sert aussi de support aux bras mobiles. Pour changer l'angle de diffusion, il suffit d'ajuster manuellement les 2 bras. Dans ce travail, l'angle d'incidence est toujours égal à l'angle de réflexion. La manière de déposer l'échantillon sur la surface va influencer les résultats de polarisation et de radiance. Dans le chapitre 5, nous montrerons la

différence des courbes de phase quand l'échantillon est saupoudré et quand l'échantillon est tassé.

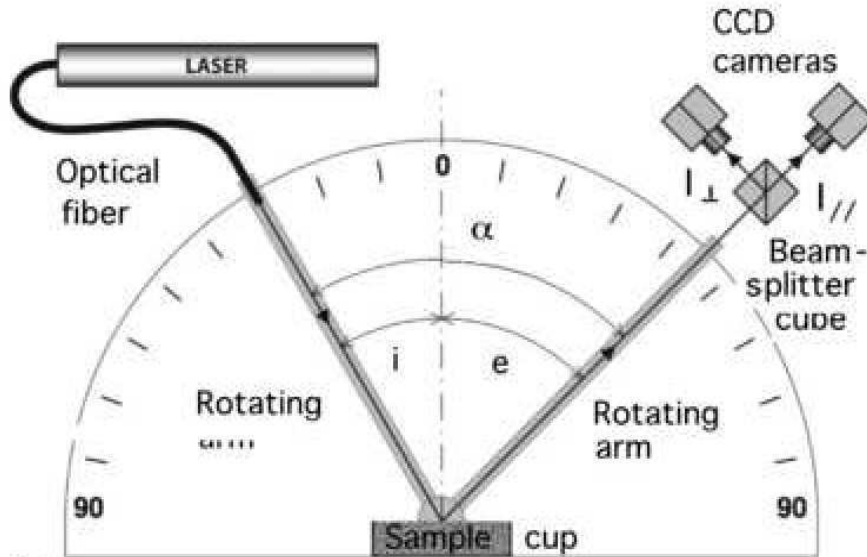


Figure 24 : Principe de mesure de PROGRA2-surf. Extrait de Hadamcik et al. 2009b

3.4 Source de lumière

Deux lasers He-Ne de longueurs d'onde : 543,5 nm et 632,8 nm aléatoirement polarisés sont utilisés séparément. Après l'activation du laser il est recommandé d'attendre 20 minutes avant le début des mesures pour que l'intensité émise soit plus stable. La température de l'état d'équilibre est atteinte dans les conditions de laboratoire après environ 60 min. Les signaux et la polarisation sont stables, dans une marge d'erreur de 0,5% pour la deuxième heure de mesures et de 0,05% pour la troisième (Hadamcik et al., 2009a).

Dans nos sessions, nous attendions 20 minutes avant de débuter les mesures, ce qui donne à l'ensemble du système (laser et de détection) une marge d'erreur typiquement de $\pm 1\%$ sur la valeur de polarisation (cette erreur est plus grande dans le cas d'échantillons très sombres où la lumière diffusée est proche de la limite de détection).

Si les échantillons sont absorbants, leur température peut augmenter légèrement et l'intensité diffusée changer légèrement. Ce problème est sans effet pour les particules en lévitation qui ne restent au plus que quelques fractions de seconde dans le faisceau lumineux. Pour les échantillons déposés en surface, le chauffage peut entraîner des légers déplacements des grains et donc jouer sur leur empilement. Ce problème peut être évité par le changement

du point d'impact du faisceau sur la surface, en changeant la position de l'échantillon avant de commencer une nouvelle série de mesures.

3.5 Technique de lévitation des particules

Deux techniques sont utilisées pour léviter les particules. Les particules relativement compactes et ayant un diamètre moyen supérieur à $20\text{ }\mu\text{m}$ sont étudiées en vols paraboliques ; les particules floconneuses ou de petits diamètres sont étudiées avec la technique d'injection d'azote. Les 2 sections suivantes détaillent ces 2 techniques. La figure 25 montre une photo des particules lévitant dans la fiole et étant traversées par le faisceau lumineux.



Figure 25 : Photographie des échantillons flottant dans la fiole et illuminés par le faisceau laser

3.5.1 Technique de lévitation au sol

La fiole utilisée en sol diffère de celle utilisée en vols paraboliques. La figure 26 montre une photographie de la fiole utilisée en sol.



Figure 26 : Photographie de la fiole utilisée au sol

Pour mettre en suspension les échantillons, un bouchon amovible spécifique montré dans la figure 27, est utilisé permettant à la fois d'injecter de l'azote sur les parois de la fiole et de faire circuler l'air grâce à des orifices d'évacuation. Quelques centièmes de grammes d'échantillons sont nécessaires pour conduire les mesures. La figure 28 montre le piège lumière.

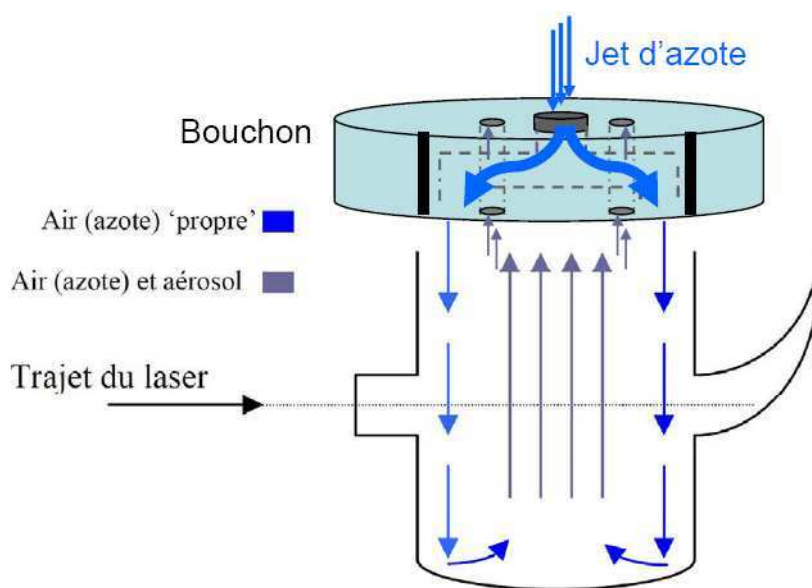


Figure 27 : Principe de fonctionnement de lévitation des particules par jet d'azote dans la fiole

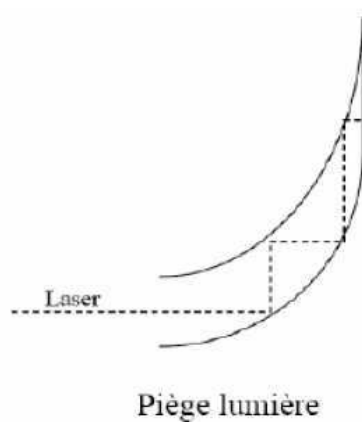


Figure 28 : Principe de fonctionnement du piège lumière

3.5.2 Technique de lévitation en microgravité

La Société Novespace, filiale du CNES, organise les vols paraboliques avec l'avion A300-ZeroG (figure 29). Les vols sont financés par l'Agence spatiale française (CNES) ou par l'agence

spatiale européenne (ESA). Le logo des vols paraboliques opérés par l'avion A300-ZeroG est présenté dans la figure 30.



Figure 29 : Photo de l'avion A300-ZeroG. Image : Bertrand Gaubicher (LPC2E)



Figure 30 : Logo des vols paraboliques opérés par A300-ZeroG.Source : NOVESPACE

Le profil type d'une parabole est présenté dans la figure 31 : une entrée en ressource à partir d'une phase de vol horizontal normal et au cours de laquelle la gravité est d'environ 1,8 g (pour environ 20 s), une phase transitoire d'injection au cours de laquelle la gravité passe de 1,8 g à 0 g (moins de 5 s), la phase de microgravité de 22 secondes et la phase de ressource de sortie symétrique à la phase de pull-up). Entre deux paraboles consécutives il y a un palier de 2 minutes. La figure 32 montre des photos de PROGRA2-vis avec les expérimentateurs lors de la phase ZeroG.

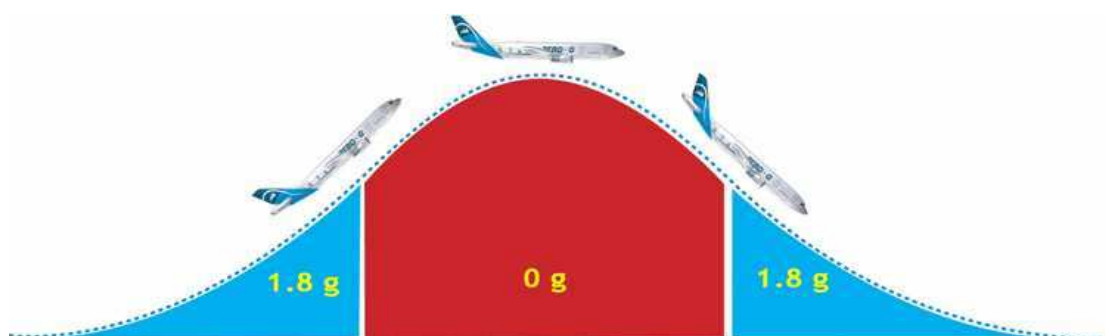


Figure 31 : Technique du vol parabolique. Source : NOVESPACE

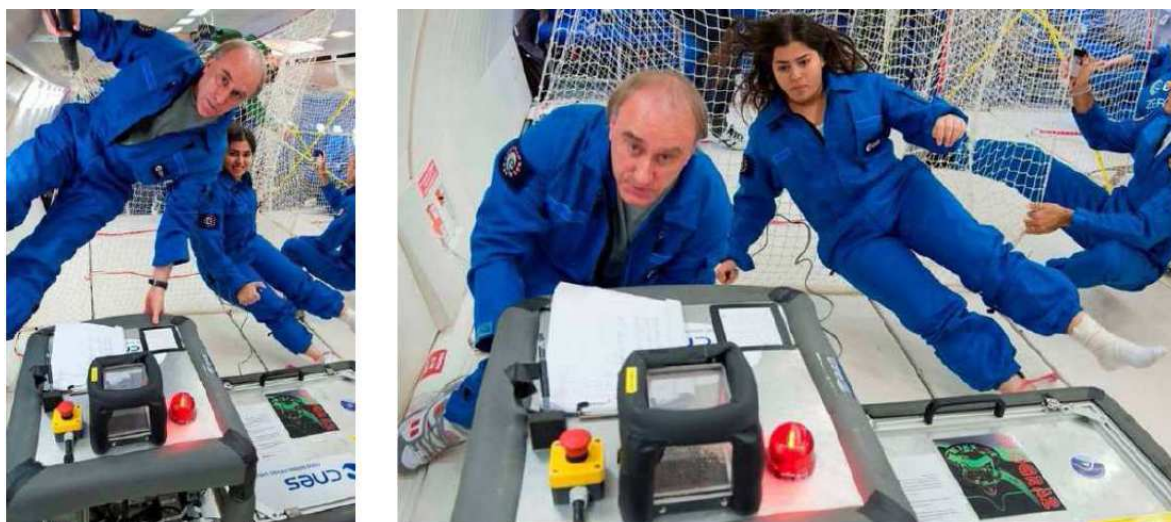


Figure 32 : Photos des expérimentateurs avec l'instrument PROGRA2-vis lors de la phase ZeroG

Pour les études en apesanteur l'échantillon est enfermé dans la fiole en pression réduite (< 0.1 atm) et le flacon est fermé hermétiquement (figure 33). Le dispositif mécanique d'impacteur sur la base de platine de rotation est utilisé pour aider les particules à décoller. Au cours de la phase de microgravité (22 secondes) les particules flottent librement dans la fiole avec des mouvements aléatoires liés aux faibles accélérations résiduelles ; l'angle de diffusion est constant et les images sont enregistrées en continu. Les mesures seront exploitables lorsque les grains (avec généralement 0,5 grammes d'échantillon dans la fiole) passent dans le faisceau du laser ; il s'agit donc de mesures « d'opportunité » au gré des mouvements résiduels lors des paraboles.

Au moins une vingtaine de paraboles sont nécessaires pour obtenir une courbe de diffusion complète, à une longueur d'onde. Une campagne de mesures comporte 3 vols de 31 paraboles chacun, soit 93 paraboles en tout, environ 4 courbes sont obtenues par campagne.



Figure 33 : Photographie de la fiole et du bouchon utilisés en vols paraboliques

3.6 Système récepteur

3.6.1 Cube optique

Le cube séparateur de 25,4 mm de côté, est utilisable pour les longueurs d'onde entre 450 nm et 700 nm. Il sert à séparer les composantes parallèles et perpendiculaires de la lumière au plan de diffusion. Il est formé de deux prismes à angle droit collés sur leurs hypoténuses comme

le montre la figure 34. Ces derniers étant collés par un empilement de couches minces qui augmentent le coefficient de transmission pour la composante parallèle et le coefficient de réflexion pour la composante perpendiculaire. L'indice de réfraction du matériau du substrat est de 1,64 dans le domaine visible. Les surfaces extérieures sont non réfléchissantes.

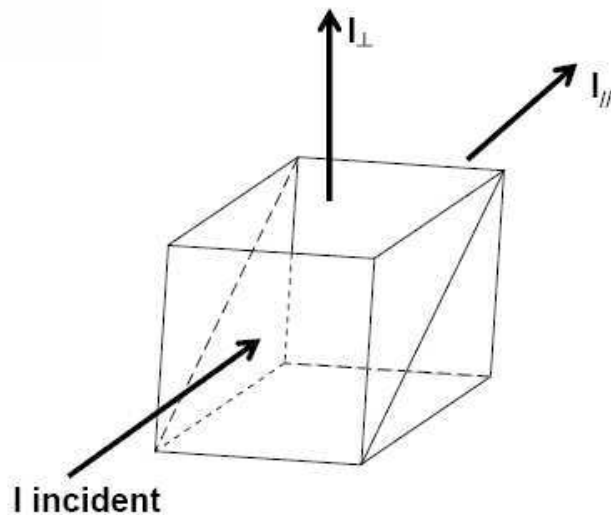


Figure 34 : Cube optique qui sert à séparer les composantes parallèles et perpendiculaires de la lumière au plan de diffusion

3.6.2 Les détecteurs

Dans la première version de l'instrument, des photodiodes avaient été utilisées comme détecteurs (Worms et al., 1999). Depuis 2000, des caméras CCD sont utilisées (Renard et al., 2002b, 2005b). Les caméras utilisées actuellement (JAI CV-A50) ont 732 x 572 pixels et chaque pixel présente 10 μm de résolution (Francis et al., 2011).

A l'angle de diffusion de 90 °, le champ de vision horizontal est d'environ 6,5 mm et le champ vertical correspond à 1,5 fois le diamètre du faisceau (soit 3 mm au total). En modifiant l'angle de diffusion β le champ de vision diminue théoriquement de $6,5/\sin(180-\beta)$. En pratique, il est limité par la profondeur de champ et nous ne gardons que la partie centrale de l'image. Pour des angles de diffusion inférieurs à 40° et supérieurs à 140 °, nous avons un champ de vision maximal d'environ 10 mm (et non pas les 40 mm de la fiole). La géométrie de la mesure induit une marge d'erreur d'environ 1° sur les angles de diffusion.

Les caméras sont synchronisées et enregistrent 25 images par seconde. Pour augmenter la dynamique de détection, les temps de pose possibles sont 1/50 s, 1/100 s, 1/200 s, 1/500 s, 1/1000 s, 1/2000 s, 1/4000 s et 1/10000 s, le choix dépend principalement de l'albédo des particules. Si le temps d'exposition est trop long, les images des particules sont nettement allongées, donc on se limitera dans la mesure du possible à des temps de pose inférieurs ou égaux à 1 /250 s. Une troisième caméra à un angle de diffusion fixe de 90° est utilisée pour normaliser l'intensité (caméra dite « de référence »). Elle est synchronisée avec les deux autres caméras, et sa résolution est d'environ 18 µm par pixel. Cette camera permet également d'avoir une vue 3D partielle des particules.

3.7 Procédure de mesures au sol en laboratoire

Préalablement aux mesures, il faut vérifier et régler la hauteur et la position latérale des caméras parallèle et perpendiculaire au cas où celles-ci auraient bougé. A cet effet, une lumière blanche éclaire une mire imprimée sur du papier photo (papier ayant une très faible granulométrie et donc une meilleure résolution). Les deux images données par les deux caméras sont visualisées sur l'écran de l'ordinateur pour vérifier s'il y a ou non un décalage. Avec l'ancienne version de PROGRA2-vis utilisée jusqu'en 2008, les caméras étaient réglées à l'aide des molettes micrométriques verticales et horizontales. Pour plus de précision surtout lors des vols paraboliques et pour éviter le décalage entre les deux caméras, les caméras sont maintenant fixées sans possibilité de réglage alors que la position du cube optique peut être ajustée par des mollettes micrométriques.

L'échantillon est placé dans la fiole à l'aide d'une spatule (la quantité dépend de la nature de l'échantillon et de la quantité disponible). La fiole est fermée par le bouchon spécifique équipé d'un filtre sur les orifices de sortie afin d'éviter le plus possible que l'échantillon ne sorte, ne salisse l'instrument et soit perdu. La pièce où se fait l'expérience est alors plongée dans le noir pour ne pas détecter de la lumière parasite. Le réglage de l'angle de diffusion voulu se fait à l'aide d'un programme d'acquisition. Le temps d'acquisition dépend de la nature de l'échantillon : en effet certains échantillons ne flotteront que quelques secondes il est donc inutile d'avoir un temps d'enregistrement trop long. Le choix du temps de pose dépend de l'albédo des particules.

A chaque nouvel échantillon une mesure test est effectuée ; elle donnera une idée sur le comportement de celui-ci et permettra de choisir les temps d'exposition et d'acquisition. L'intensité reçue est minimale pour un angle de diffusion autour de 90° , raison pour laquelle 90° est notre angle de référence pour le réglage de ces paramètres permettant d'éviter les images saturées en intensité ou au contraire celles sans signal exploitable.

Une fois ce travail effectué, nous lançons le programme d'enregistrement des images environ une seconde avant de donner le jet d'azote dans la fiole. Les images enregistrées avant ce jet d'azote vont servir à établir l'image « PLU » (Plage de Lumière Uniforme). La PLU permet d'établir à la fois l'offset (le zéro de la détection en absence de signal scientifique (le signal scientifique est le signal qu'on souhaite détecter, c'est dire le signal réfléchi par des échantillons en lévitation) et de déterminer les défauts permanents sur les images tels que variations de la réponse individuelle des pixels et la lumière parasite (qui diffère à chaque angle de diffusion).

A la fin d'une mesure, nous changeons l'angle de diffusion, nous attendons que les particules à l'intérieur de la fiole retombent, si besoin nous nettoyons les parois de la fiole, et nous recommençons la même procédure de mesure ; et ainsi de suite pour couvrir les angles qui nous intéressent.

3.8 Vérification des mesures

Les expériences d'étalonnage sont effectuées avec des échantillons pour lesquels les valeurs de polarisation peuvent être facilement calculées. Avec PROGRA2-vis, l'étalonnage a été fait en obtenant les courbes de radiance et de polarisation de billes de verre de différents diamètres et les résultats ont été comparés ensuite à ceux produits par un modèle utilisant la théorie de Mie (Worms et al, 1999;. Renard et al, 2002b;. Hadamcik et al, 2003). En fait, il ne s'agissait pas d'un étalonnage à proprement parler, car le principe de l'instrument est d'enregistrer des variations relatives de flux, mais de vérifier qu'aucun biais n'était présent dans l'obtention des courbes de polarisation et de radiance. Avec PROGRA2-surf, la réflexion spéculaire sur une surface de verre plane noire permet de contrôler si la lumière réfléchie suit les lois de Fresnel (Worms et al., 1999 ; Hadamcik et al., 2009a). L'étalonnage est obtenu s'il y a adéquation entre les valeurs théoriques et expérimentales sur près de 20 mesures effectuées pour chaque angle de diffusion.

3.9 Traitement des données

Les images brutes sont traitées par un programme écrit en langage IDL. Avant de lancer le traitement des images il faut faire recadrer les images. En effet, même si le cube optique et les cameras ont été réglées et vérifiées avant de commencer les mesures, il existe toujours un décalage de quelques pixels entre les champs de vue. Le programme de recadrage va faire coïncider une image de la mire enregistrée par une caméra avec son homologue sur l'autre, avec une précision au quart de pixel. Seront alors obtenus les décalages entre les deux caméras, décalages qu'il faudra ensuite appliquer à toutes les images enregistrées lors de la session de mesure.

3.9.1 Paramètres introduits par l'utilisateur avant de lancer le programme

Après avoir recadré les images, il faut introduire dans un fichier d'entrée qui sera lu par le programme de traitement en IDL, les paramètres suivants :

- La description de l'échantillon et le nom générique.
- Les angles à traiter.
- Le numéro de l'image utilisée pour la PLU (en général la première image enregistrée avant le jet d'azote).
- Le numéro de la première image à utiliser ; les premières images enregistrées sont à éviter car, d'une part l'échantillon sera en agitation relativement importante juste après le jet d'azote, d'autre part les grands agglomérats (dont on ne veut souvent pas la contribution) retombent quelques secondes après le jet d'azote alors que les plus petits agrégats restent en lévitation.
- Le seuil minimum d'intensité lumineuse que doit avoir une particule pour pouvoir être traitée.
- Utilisation ou non de la « granulométrie ». Si la granulométrie est choisie, les particules sont traitées individuellement, sinon le traitement est fait pour le nuage de particules (la granulométrie n'est pas possible pour des angles inférieurs à 30° et supérieur à 140° comme décrit par la suite).
- La longueur d'onde utilisée (632,8 nm ou 543,5 nm).

- La zone spatiale d'extraction des résultats (elle dépend de l'angle : pour les angles inférieurs à 40° et ceux supérieurs à 140° on ne considère que le centre de l'image).

3.9.2 Traitement des images

L'image brute enregistrée par le programme lors de la lévitation des particules ne représente pas seulement la lumière diffusée par les particules que nous souhaitons traiter. Elle contient aussi un offset qui est dû à l'électronique des caméras CCD et la lumière parasite. Comme mentionné précédemment, la PLU va permettre de corriger très efficacement ces problèmes.

Le programme de traitement va sortir une image traitée en effectuant l'opération :

Image traitée = Image brute – PLU

Ensuite, dans certains cas (principalement pour les gros agglomérats), certains pixels peuvent être saturés. Pour éviter des biais dans les résultats de polarisation, le programme de traitement supprime tous les pixels qui ont un niveau qui dépasse 80 % du niveau théorique de saturation.

3.9.3 Nettoyage des points

Des valeurs de polarisation qui sont largement différentes de la polarisation moyenne donnée par le total des particules peuvent être remarquées dans le fichier de sortie. Ceci est dû à la diffusion multiple, le rayon lumineux pouvant subir plusieurs diffusions entre les particules surtout si elles sont serrées les unes aux autres. C'est la raison qui nous pousse à réduire au maximum la quantité d'échantillon avant de commencer les mesures. Les valeurs présentant un grand décalage avec la valeur moyenne de polarisation seront exclues. La présence de paquets d'agglomérats engendre aussi des valeurs de polarisation présentant un grand décalage avec la valeur moyenne. Celles-ci aussi seront exclues. Dans le cas où ces valeurs indésirables représentent une grande part des valeurs d'une mesure celle-ci doit être refaite.

3.9.4 Valeurs de polarisation et de radiance pour les nuages de particules

Pour calculer l'intensité normalisée sur la surface, nous divisons la somme des intensités par le nombre de pixels utilisés. Les intensités perpendiculaires et les intensités parallèles de

toutes les images sont traitées séparément. Finalement la polarisation globale P c'est-à-dire la polarisation calculée à partir de la moyenne des composantes polarisées est calculée par l'équation (3.1)

$$P = \frac{\sum I_{\perp} - \sum I_{\parallel}}{\sum I_{\perp} + \sum I_{\parallel}} \quad (\text{Equation 3.1})$$

$\sum I_{\parallel}$ étant la somme des intensités de la composante parallèle

$\sum I_{\perp}$ étant la somme des intensités de la composante perpendiculaire

La fonction d'intensité (ou radiance) B est obtenue par

$$B = \frac{\sum I_{\parallel} + \sum I_{\perp}}{\sum I_{ref}} \quad (\text{Equation 3.2})$$

I_{ref} étant l'intensité par la caméra de référence ; ces intensités sont divisées par les surfaces respectives occupées des grains sur les images. Pour les angles extrêmes (inférieurs à 40° et supérieurs à 140°), le rapport de l'équation 3.2 devient imprécis du fait de l'élargissement du champ de vue théorique et donc de la dégradation de la résolution par pixel.

La figure 35 montre les valeurs de polarisation obtenues par les images individuelles et la polarisation globale (équation 3.1) à chaque angle de diffusion. Ces valeurs sont produites par un échantillon de noir de carbone.

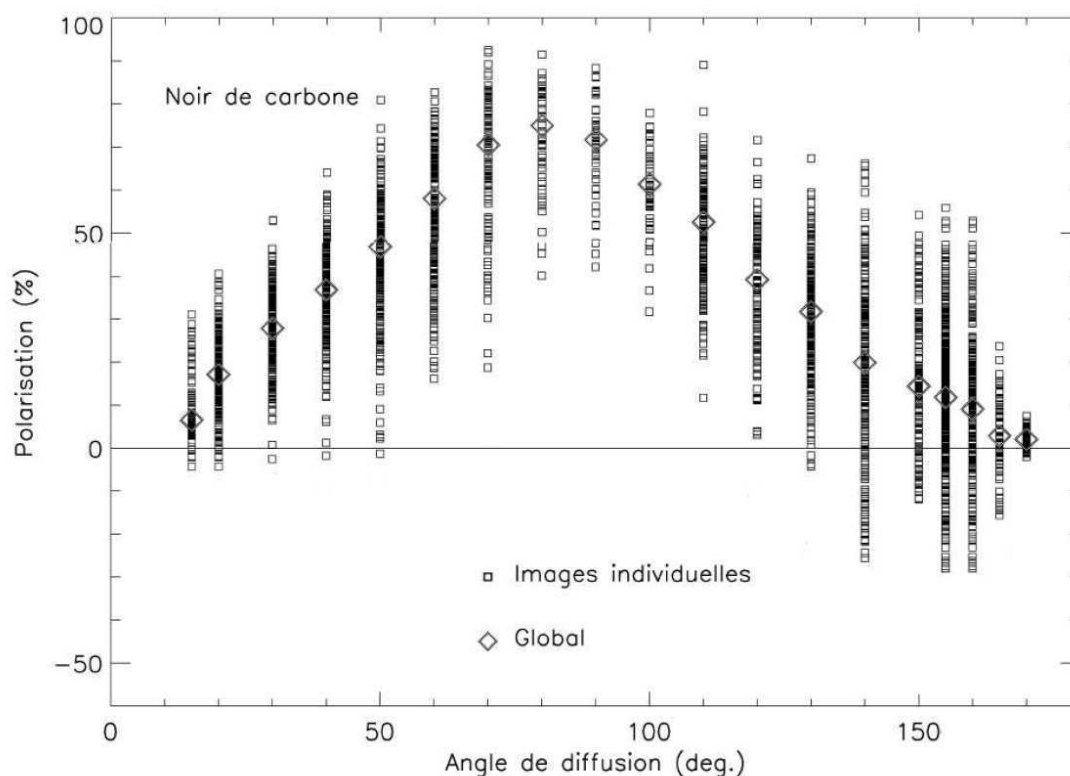


Figure 35 : Courbe de polarisation en fonction de l'angle de diffusion montrant pour chaque angle la valeur produite par une image individuelle et la valeur de polarisation globale (polarisation calculée à partir de la moyenne des composantes polarisées).

Échantillon : noir de carbone

Plus de mille particules devraient être analysées afin d'obtenir une bonne précision (Hadamcik et al., 2009a). Rappelons qu'un grand nombre de particules dans la fiole provoque une diffusion multiple et donc un changement dans les valeurs de polarisation, d'où la nécessité de répéter les mesures afin d'obtenir la polarisation produite par de nombreuses particules et en évitant la diffusion multiple.

3.9.5 Cartes de polarisation et de radiance des particules en lévitation

Il est possible d'obtenir les cartes de polarisation et de radiance en utilisant les équations (3.1) et (3.2) pour chaque pixel de l'image. La figure suivante montre un exemple des cartes obtenues avec du sable tunisien. Les trois images correspondent aux trois informations suivantes :

la radiance (en échelle linéaire), la polarisation (la couleur violette correspond à une polarisation nulle et la rouge à 100 %) et l'image donnée par la camera de référence (échelle linéaire). Ces cartes sont analysées par un programme qui permet d'obtenir la distribution en taille de l'échantillon étudié, les propriétés optiques des grains individuels, et l'évolution de la polarisation avec leur taille.

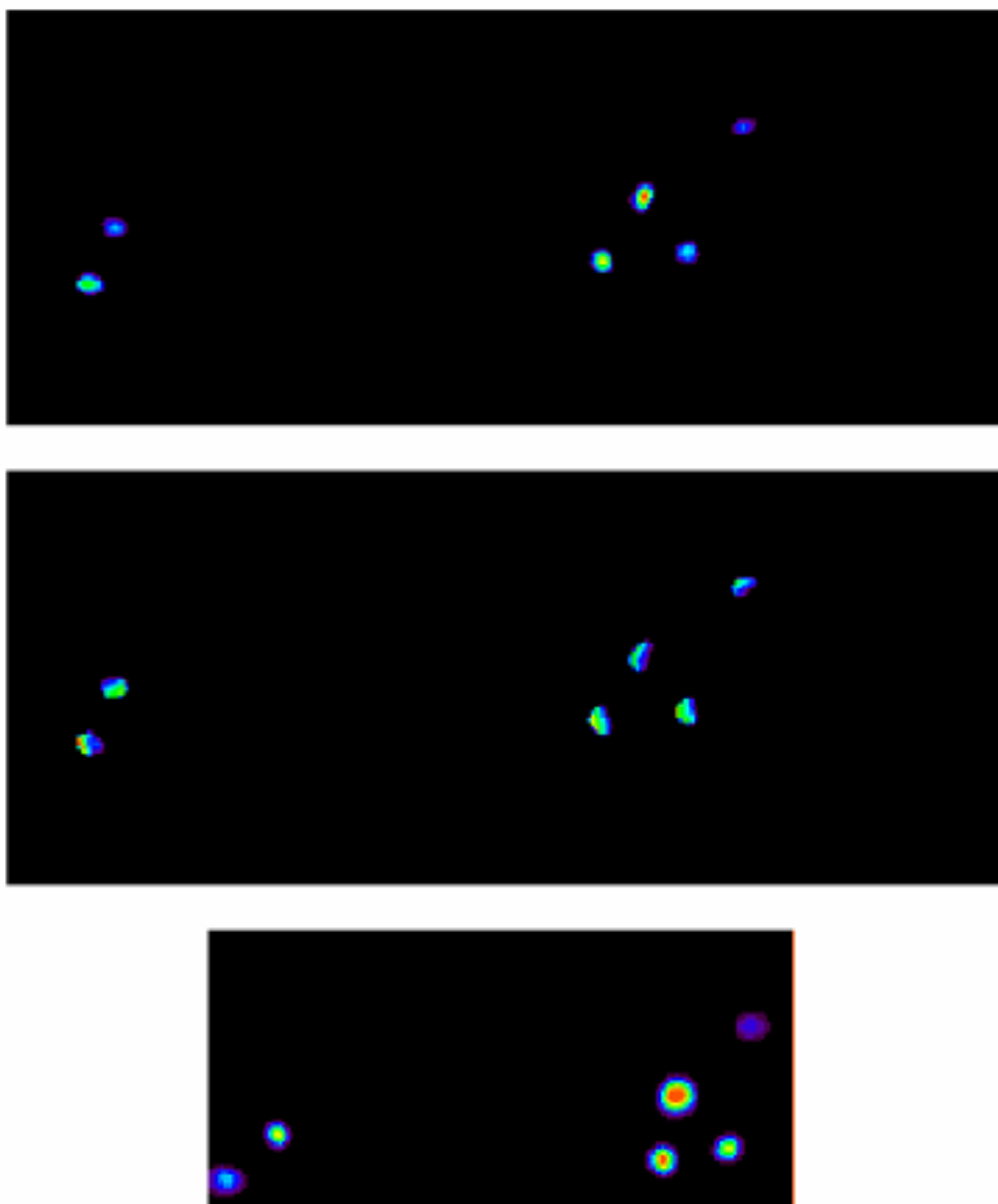


Figure 36 : Carte de polarisation (milieu), de radiance (haut) et de la caméra de référence (bas) du sable tunisien. La couleur violette correspond à une polarisation nulle et la rouge à 100 %

3.9.6 Distribution des particules en taille

Pour les angles de diffusion compris entre 40° et 140°, les cartes de polarisations (voir figure 36) sont analysées par un programme permettant de retrouver la forme exacte, et donc le nombre de pixels que couvrent chacun des grains présents sur l'image, et de donner leur flux diffusés pixel par pixel. Ces surfaces S en pixels sont ensuite converties en diamètre équivalent d , c'est-à-dire le diamètre qu'aurait chacun des grains s'ils étaient sphériques :

$$d = \sqrt{\frac{4S}{\pi}} \quad (\text{Equation 3.3})$$

Pour chaque diamètre, la polarisation et l'intensité sont calculées, permettant ainsi d'étudier l'effet de taille sur la polarisation de chaque échantillon, pour des angles entre 40° et 140°. Pour avoir une valeur de polarisation statistiquement correcte, il faut que plusieurs centaines de particules aient été détectées.

Les gammes de taille sont définies par pas de quelques dizaines de micromètres afin de donner la distribution de taille. Pour chaque gamme de taille, la valeur de polarisation est calculée en moyennant toutes les valeurs dans l'intervalle de gamme de taille considéré. Ainsi l'évolution des valeurs de polarisation pour des nuages de particules sélectionnées selon la taille peut être obtenue (voir figure 37) : les variations de ces valeurs peuvent donner une indication sur la structure (compacte ou floconneuse) des particules (voir par exemple Hadamcik et al., 2002). Pour avoir une tendance significative de l'effet de taille des particules sur la polarisation, il est nécessaire de mesurer la polarisation sur un grand nombre de particules. Un exemple sur le nombre des particules est donné dans la section suivante.

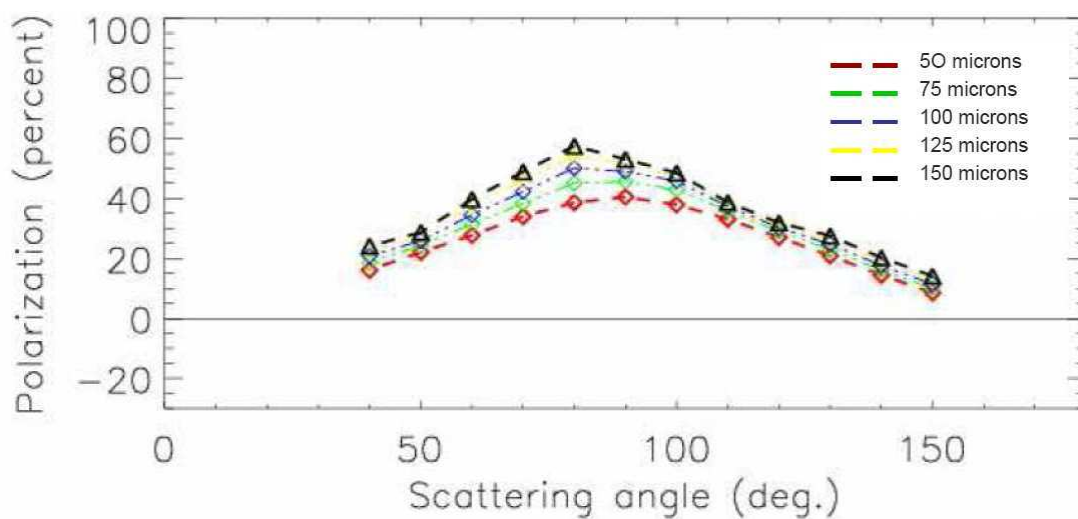


Figure 37 : Effet de taille sur la polarisation obtenue par un échantillon de suie (issu du toluène).

3.9.7 Nombre de particules en fonction de leurs diamètres

Le système d'imagerie permet de donner le nombre de particules détectées en fonction de leurs diamètres (entre 40 et 140°). Le Tableau 3 montre un exemple obtenu avec un échantillon de noir de carbone. Dans ce cas, pour les diamètres allant de 21 μm jusqu'à 93 μm le nombre de particules comptées par le système d'imagerie varie entre 1000 et 2200.

Diamètre (µm)	Nombre de particules
21,0500	1520,00
33,0500	2211,00
45,0500	2025,00
57,0500	2222,00
69,0500	1931,00
81,0500	1448,00
81,0500	1448,00
93,0500	1090,00
105,050	603,000
117,050	269,000
129,050	174,000
141,050	106,000
153,050	50,0000
165,050	38,0000
177,050	11,0000
189,050	9,00000
201,050	6,00000
213,050	3,00000
225,050	1,00000
237,050	0,000000

Tableau 3 : Nombre de particules en fonction de leurs diamètres obtenus par un échantillon de carbone

A partir de Tableau 3 et en normalisant le nombre des particules on peut tracer la courbe montrant la distribution en taille des particules (figure 38). En combinant cette courbe à l'effet de taille montré par exemple sur la figure 37 on pourra expliquer certaines variations dans les valeurs globales de polarisation, comme discuté dans le chapitre 5.

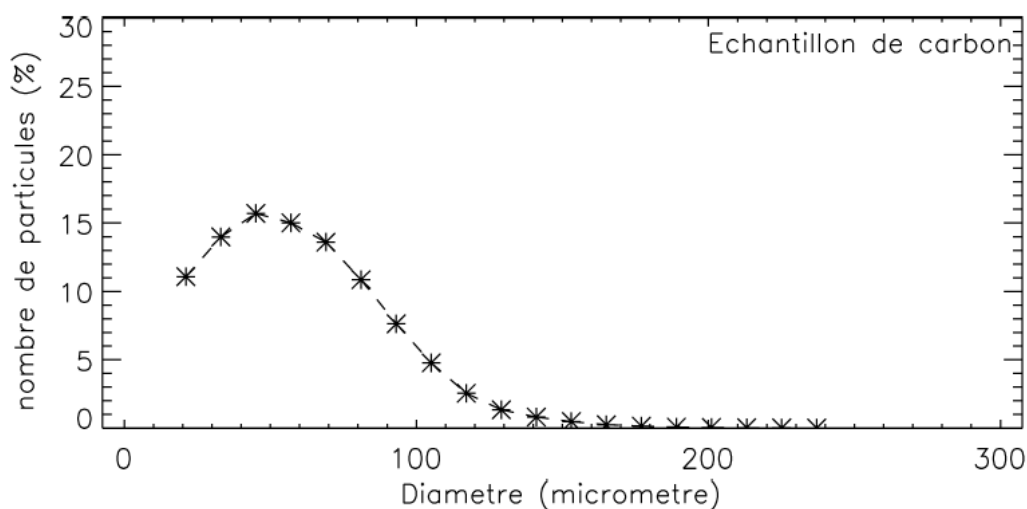


Figure 38 : Nombre de particules normalisés en fonction de leurs diamètres obtenus pour un échantillon de carbone.

3.10 Conclusion

Les instruments PROGRA2 permettent donc d'obtenir les courbes de polarisation et de radiance des particules en lévitation et déposées en surface. Grâce aux 2 lasers utilisés comme source de lumière ils permettent d'évaluer l'effet de la longueur d'onde sur les courbes de polarisation et de radiance. Enfin PROGRA2-vis permet de donner la courbe de polarisation pour chaque particule en lévitation en fonction de son diamètre, permettant ainsi d'évaluer l'effet de taille sur la polarisation.

Chapitre 4

Etudes des propriétés optiques de différents types de sable

4.1 Introduction

La poussière minérale représente la composante majeure des aérosols atmosphériques terrestres. La poussière Saharienne semble être la principale source (Li et al., 1996 ; Prospero et al. 2003) une grande quantité des plus petites particules de la poussière peut être transportée sur de grandes distances de l' Afrique du Nord à travers l' Atlantique tropical (Chiapello et al., 2005). Des particules de sable de quelques dizaines de micromètres ont été collectées par les avions ER-2 et WB-57F de la NASA dans la basse stratosphère (L. Lasue, communication personnelle). Il est donc intéressant de documenter leurs propriétés optiques. Les mesures par télédétection de la lumière diffusée par les particules de sable peuvent aider à évaluer leurs propriétés physiques. Ces mesures peuvent être réalisées à partir de satellites (Bréon et al., 1997 ; Kusaka et al. 1998), à partir des instruments sous ballon (Brogniez et al., 2003) et au niveau du sol (Kusaka et al., 2003). La polarisation linéaire pourrait être un outil complémentaire. Cependant, le calcul théorique des propriétés des particules de formes irrégulières sont complexes (cf chapitre 2), et la modélisation est impossible pour les particules de formes inconnues. Muñoz et al. (2006) ont comparé les mesures de diffusion de gros grains de poussières du Sahara à des calculs de modélisation mais sans succès. Ce problème pourrait être dû à la rugosité de la surface des grains. Les courbes de polarisation dépendent de la taille, de la structure et de la nature des grains (indice de réfraction). Dans ce chapitre des études faites sur du sable fin seront présentées et une comparaison avec d'autres types de sable de différentes origines et tailles sera discutée.

4.2 Echantillons étudiés

Dans la base de données de PROGRA2 plusieurs types de sables ont déjà été étudiés : sable de Chine, du Niger et du désert de la Tunisie. Tous ces échantillons possèdent plus ou moins la même couleur ocre, bien que leurs distributions en taille diffèrent significativement, (Daugeron et al, 2006). Par la suite, des études sur différents types de sables de couleurs, de distributions de taille et d'origines (désert ou de la côte) différentes ont été menées. Le au 4 donne les différents échantillons, leurs tailles et leurs couleurs. La taille de l'argile fine a été donnée par le fournisseur (F. Dulac, communication personnelle), et la taille du sable brisé du Maroc est estimée à partir des observations au microscope optique. L'argile fine est représentative des petits grains qui, après avoir été mis en lévitation par les vents, traversent les océans et les mers et se

déposent plus tard au niveau du sol. Le sable brisé du Maroc a été utilisé pour être comparé à l'argile fine.

A titre d'exemple, une image au microscope électronique de sable Niger est présentée sur la figure 39. On remarque bien l'aspect compact des grains et la large distribution en taille de l'échantillon.

Nom de l'échantillon	Origine	taille (μm)	Couleur
Sable cassé	Maroc Désert (Sahara)	< 5	Ocre pale
Chine	Désert Chine (Gobi)	125 ± 75	Ocre sombre
Fiji	Côte Fiji	250 ± 150	Beige pale
Argile fine	Tunisie (Douz)	< 5	Ocre sombre
France	Côte de l'Atlantique (dune du Pyla)	300 ± 100	Jaune beige
Hawaïi	Côte de Hawaïi	200 ± 150	Noir
Liban (échantillon hétérogène)	Côte méditerranéenne	< 1 mm	Gris – beige
Libye	Libye désert (Sahara)	150 ± 100	Ocre - orange
Maroc	Désert du Maroc (Sahara)	150 ± 100	Ocre - orange
Niger	Désert du Niger (Sahel)	250 ± 100	Ocre - rougeâtre
Tunisia	Tunisie désert (Sahara)	150 ± 50	Ocre

Tableau 4 : Origines et informations sur les échantillons de sable étudiés

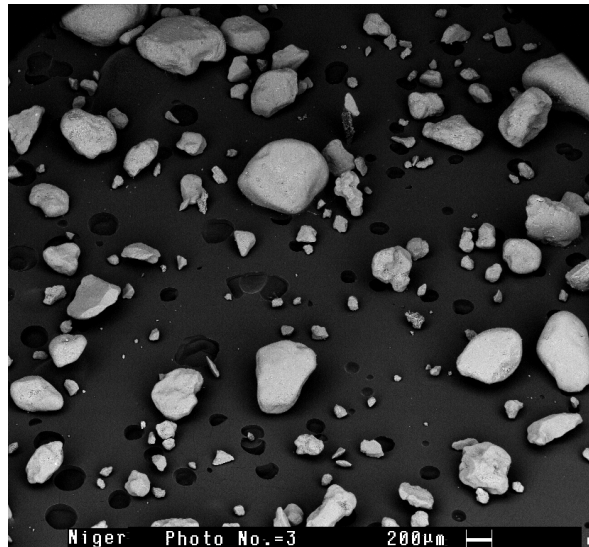


Figure 39 : Image au microscope électronique du sable de Niger

Les études sur les échantillons cités dans le Tableau 4 ont été menées pour les particules en lévitation.

La réponse optique des particules dépend des conditions de mesures. En effet, en raison de la diffusion multiple entre les particules, les propriétés polarimétriques de particules déposées sur une surface diffèrent fortement de celles des particules en lévitation (Shkuratov et al., 2006 ; Worms et al., 2000). D'autre part, l'humidité influe les courbes de polarisation et de radiance. Ainsi, pour bien documenter les propriétés de diffusion des différents types de sable dans différentes conditions géophysiques, des mesures doivent être effectuées à la fois pour le sable déposé et le sable en lévitation ainsi que pour le sable humide. Le travail effectué dans le cadre de cette thèse se limite dans cette partie aux particules déposées. Les mesures pour les sables en lévitation obtenues précédemment seront montrées pour comparer avec les propriétés optiques du sable déposé.

4.3 Résultats

4.3.1 Résultats des courbes en surface

4.3.1.1 Courbes de polarisation des particules déposées

Les figures 40 et 41 présentent les courbes de polarisation pour les échantillons déposés, obtenues respectivement à $\lambda = 632,8$ nm et $\lambda = 543,5$ nm. La courbe de polarisation de l'argile fine est bien en dessous des courbes de gros grains, à l'exception des grands angles de diffusion. C'est l'effet de taille bien connu où les petits grains produisent des valeurs de polarisation inférieures.

Toutes les courbes présentent le même comportement :

- Les valeurs négatives sont détectées pour les angles de diffusion supérieure à 140° . L'angle d'inversion se situe entre 130° et 150° . En raison de la marge d'erreur, il n'est pas possible de récupérer avec précision la valeur d'angle d'inversion pour les différents échantillons.
- Les amplitudes maximales de polarisation sont obtenues pour les angles autour de $30-40^\circ$. Les différences pour les valeurs de polarisation sont en partie dues à des différences dans l'absorption de la lumière par les matériaux.

Toutes les courbes ne présentent pas le même comportement en ce qui concerne l'effet de la longueur d'onde :

- Les échantillons ayant une couleur ocre (sable Maroc, sable Tunisie, sable Libye) montrent une légère augmentation des valeurs de polarisation dans le domaine vert. Ceci peut être dû au fait que dans ce domaine l'absorption de la lumière incidente est plus importante que dans le domaine du rouge affectant ainsi les valeurs de polarisation de ces échantillons.
- Les échantillons d'autre couleur ne montrent pas de différences évidentes.

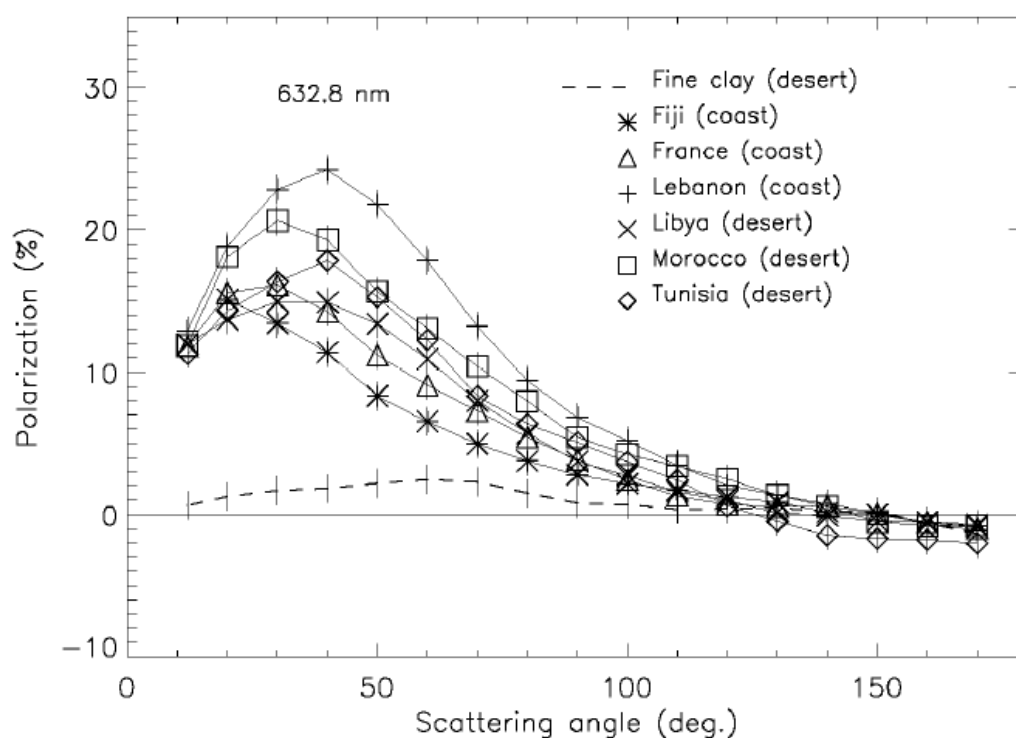


Figure 40 : Courbes de polarisation produites par les échantillons déposés, à $\lambda = 632,8$ nm.

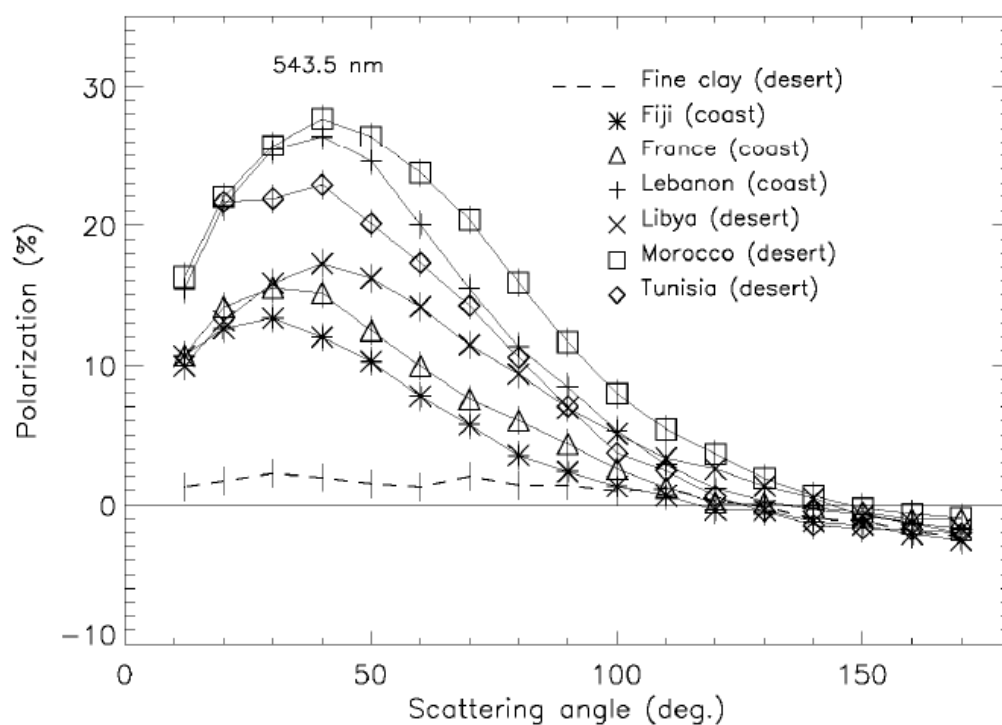


Figure 41 : Courbes de polarisation produites par les échantillons déposés, à $\lambda = 543,5$ nm.

4.3.1.2 Courbes de radiance des particules déposées

Les figures 42 et 43 présentent les courbes de radiance pour les échantillons déposés, obtenues respectivement à $\lambda=632,8$ nm et $\lambda=543,5$ nm. Toutes les courbes présentent un comportement similaire. Les courbes sont descendantes jusqu'à un angle de diffusion entre 30 et 40° puis elles sont ascendantes. Aux grands angles de diffusion les valeurs restent tout de même inférieures à celles aux petits angles sauf pour le sable Fidji.

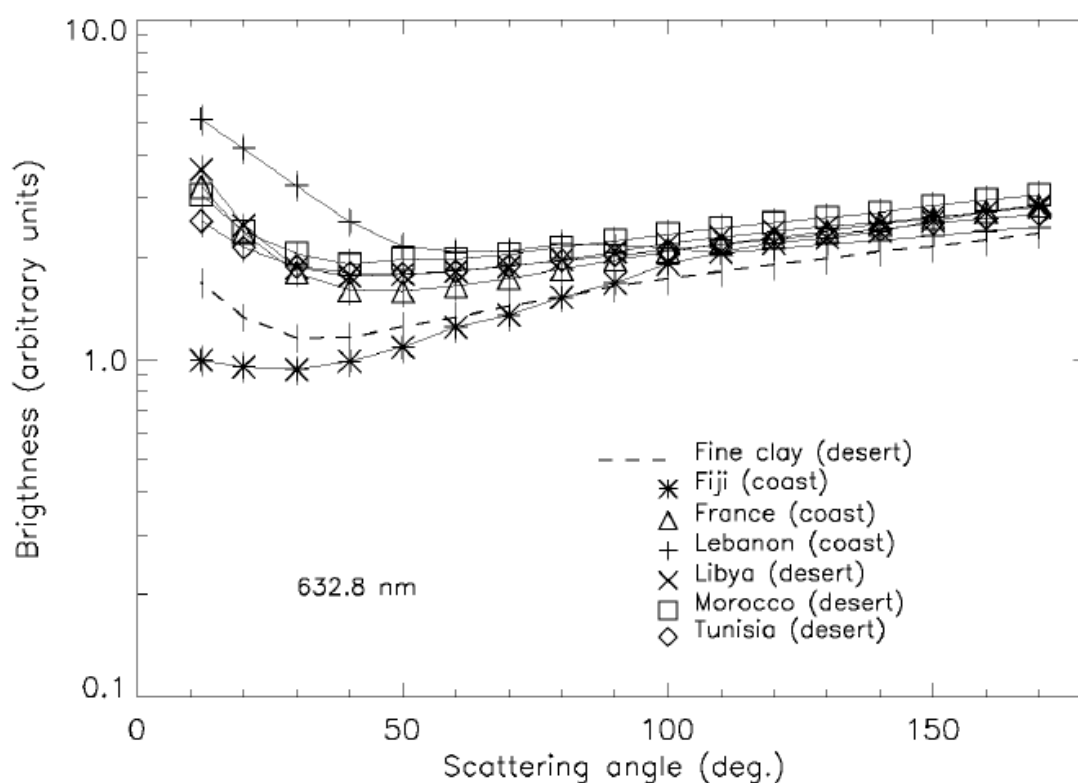


Figure 42 : Courbes de radiance produites par les échantillons de sable déposés, à $\lambda= 632,8$ nm.

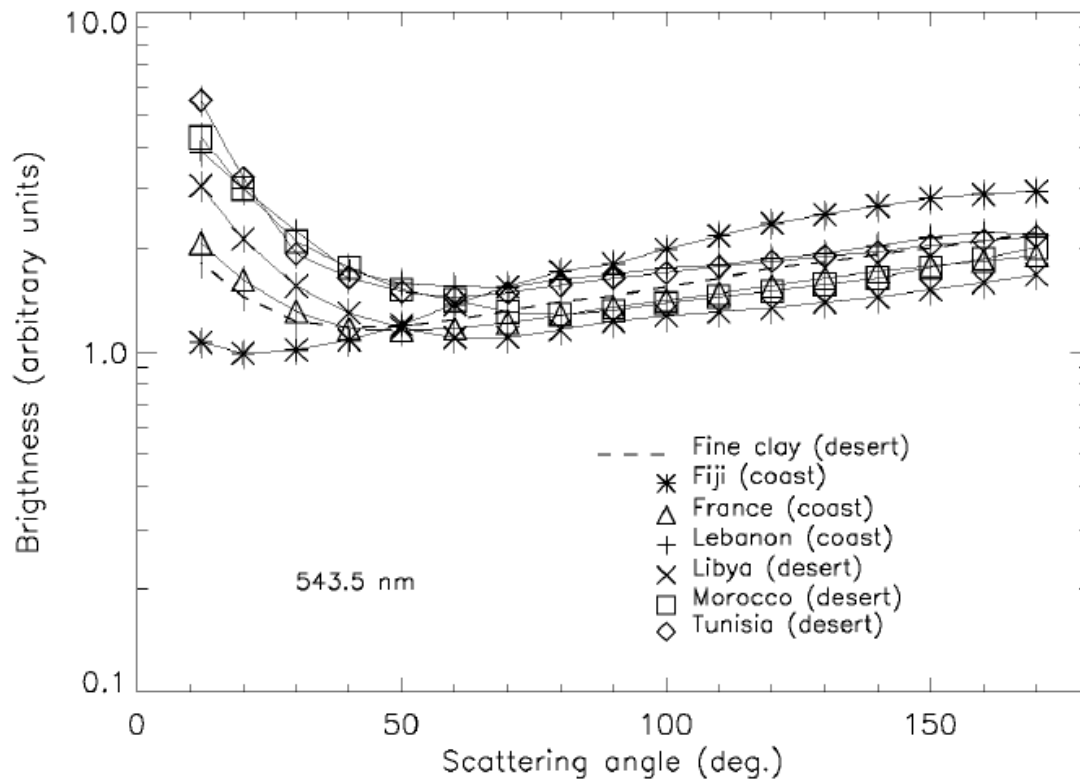


Figure 43 : Courbes de radiance produites par les échantillons de sable déposés, à $\lambda = 543,5$ nm.

4.3.1.3 Courbes de polarisation et de radiance des particules humides déposées

Il pourrait être intéressant d'évaluer l'effet de l'humidité sur les propriétés de diffusion des particules de sable. Les figures 44 et 45 présentent les courbes de polarisation et de la radiance pour différents types de sables humides. La quantité d'eau ajoutée d'un échantillon à l'autre peut changer, donc la conclusion tirée ne peut être qu'une indication sur la tendance. Les effets remarqués par rapport aux grains secs sont:

- Des amplitudes de polarisation plus élevées.
- Légère augmentation des valeurs de l'angle de diffusion correspondant aux amplitudes maximales.
- Disparition de la branche polarisation négative
- Courbes de radiance presque plates pour les grands angles de diffusion.

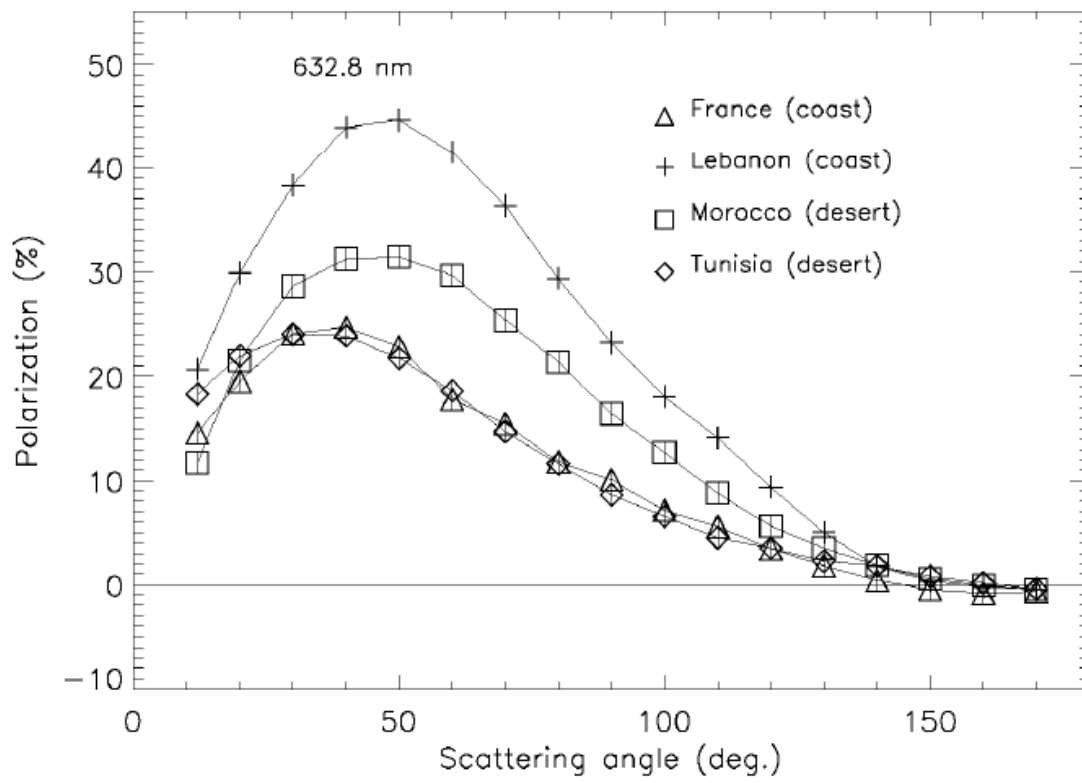


Figure 44 : Courbes de polarisation produites par les échantillons de sable humides déposés mesurés à $\lambda = 632,8$ nm.

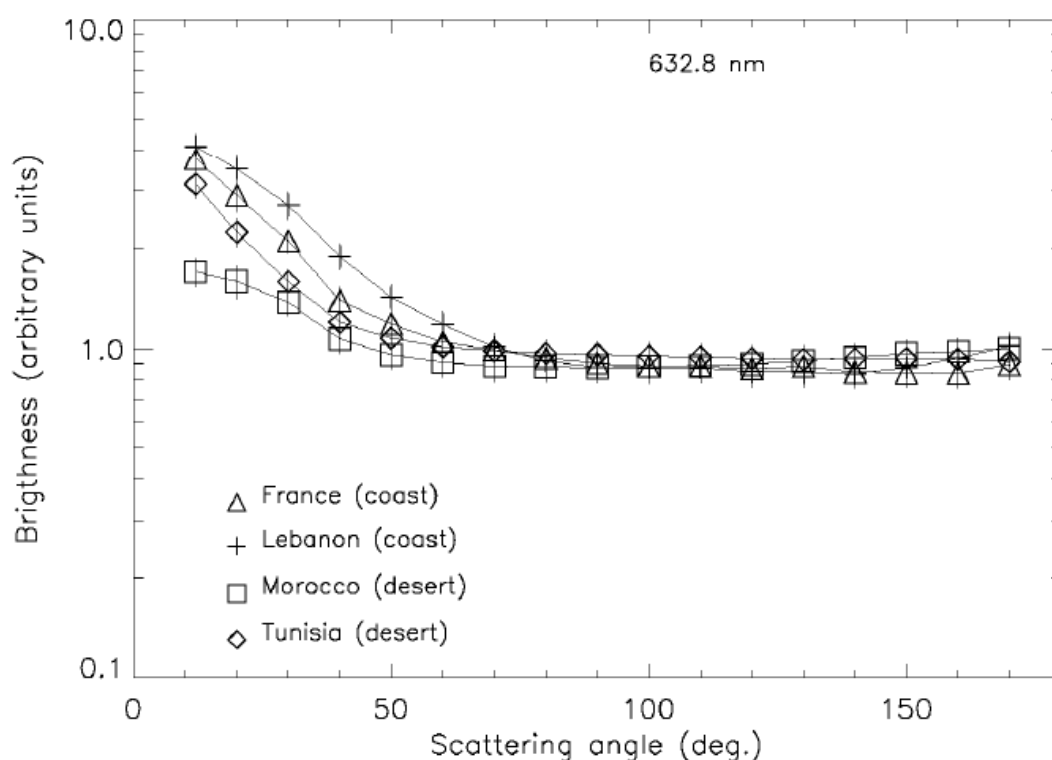


Figure 45 : Courbes de radiance produites par les échantillons de sable humides déposés mesurés à $\lambda = 632,8$ nm.

4.3.2 Résultats des courbes des gros grains en lévitation et comparaison avec les courbes en surface

4.3.2.1 Courbes de polarisation des grosses particules de type « sable » en lévitation

Les mesures des courbes de polarisation et de radiance produites par les grosses particules de type « sable » ont été effectuées en vols paraboliques tandis que celles pour les plus petites particules ont été faites en sol par injection d'azote. Les figures 46 et 47 présentent les courbes de polarisation pour les échantillons en lévitation à respectivement $\lambda = 632,8$ nm et $\lambda = 543,5$ nm. L'amplitude de polarisation la plus élevée ($\sim 75\%$) est obtenue avec des grains noirs, ceci est en accord avec l'effet bien connu des gros grains noirs produisant des valeurs de polarisation supérieures aux grains plus clairs (Hadamcik et al., 2009b). Les autres sables produisent des

valeurs de polarisation plus ou moins similaires, avec des maxima compris entre 5% et 15% dépendamment de la taille moyenne des grains et de leur différence d'absorption. Aucun effet de la longueur d'onde n'est observé, bien que les petites différences entre les deux courbes peuvent être dues à la différence d'absorption et de distribution en taille. Enfin, il n'existe pas de valeurs négatives évidentes pour la polarisation.

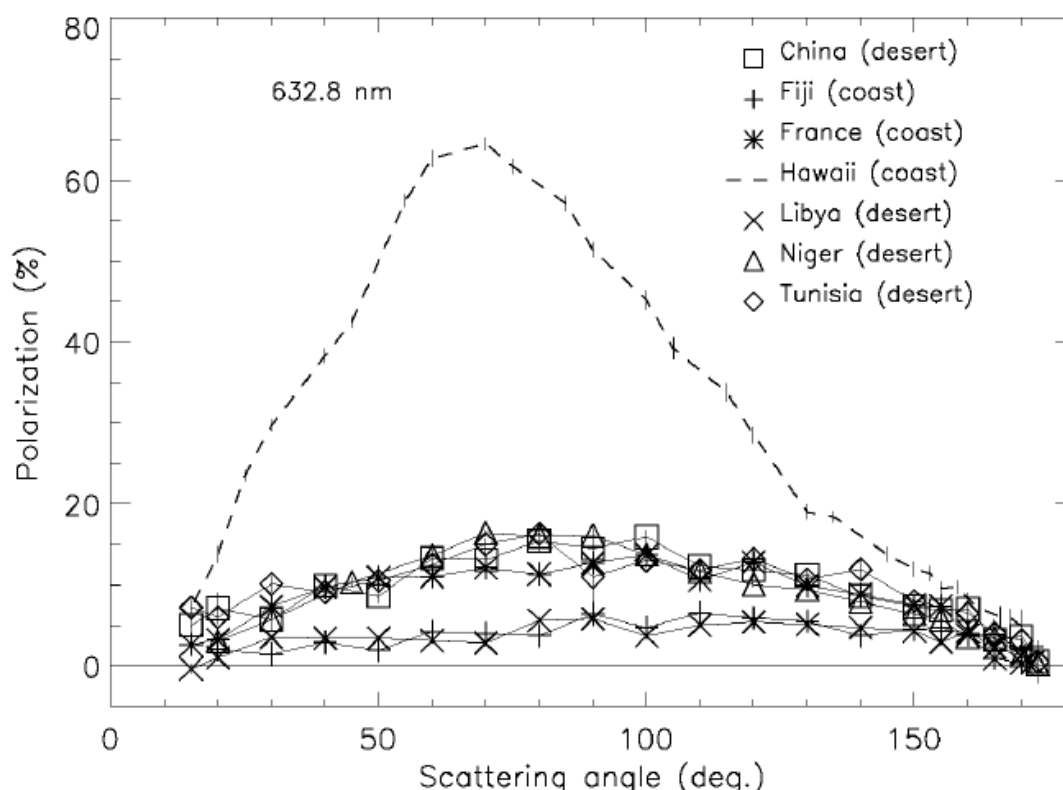


Figure 46 : Courbes de polarisation produites par les échantillons de sable en lévitation mesuré à $\lambda = 632,8$ nm.

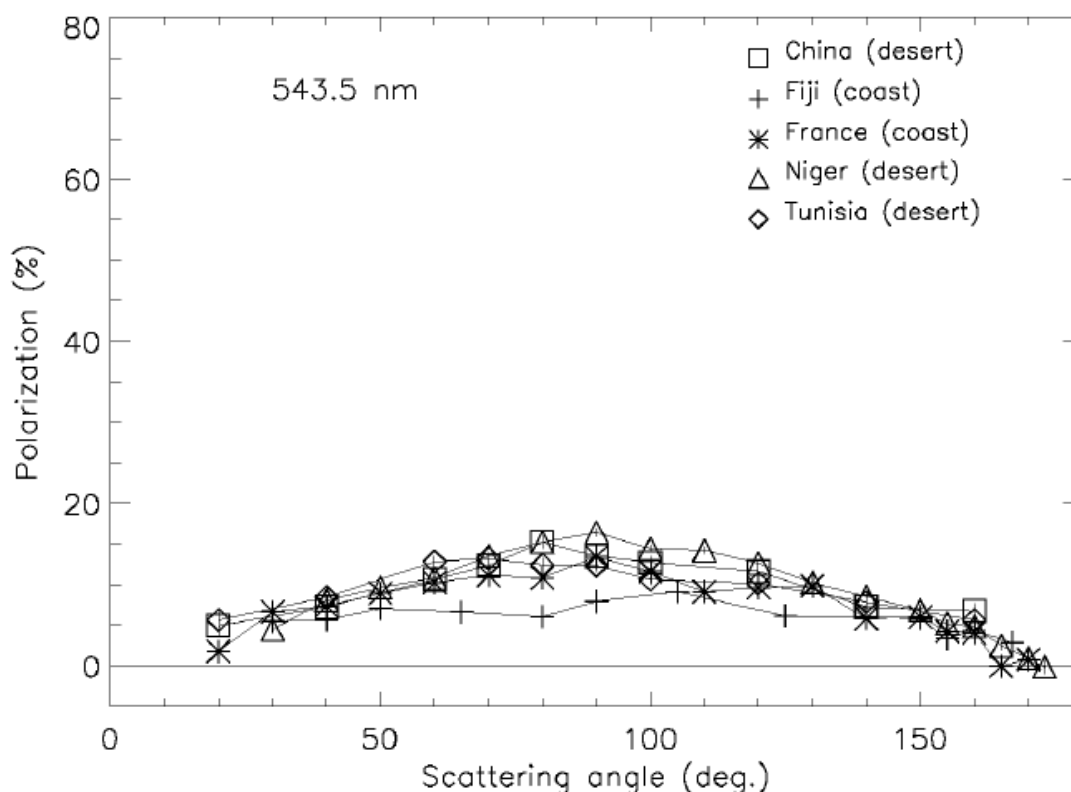


Figure 47 : Courbes de polarisation produites par les échantillons de sable en lévitation mesuré à $\lambda = 543,5\text{nm}$.

4.3.2.2 Courbes moyennes des particules déposées et des particules en lévitation (à l'exception du sable noir)

La figure 48 représente des courbes de polarisation synthétiques des échantillons de sable montrées dans les figures 46 et 47 à l'exception du sable noir, obtenues à $\lambda = 632,8\text{ nm}$ et $\lambda = 543,5\text{ nm}$. Les barres d'erreurs correspondent à la dispersion des courbes individuelles. Les différences entre les courbes produites par les échantillons en surface et les échantillons en lévitation sont bien évidentes :

- Les échantillons déposés en surface présentent des valeurs maximales de polarisation entre 30 et 40° d'angle de diffusion contre des valeurs maximales autour de 90° pour ceux en lévitation.
- Les valeurs maximales de polarisation produites par les échantillons en surface sont nettement plus importantes que celles produites par les échantillons en lévitation.

- Les courbes produites par les échantillons en surface montrent des valeurs négatives aux grands angles de diffusion.
- La longueur d'onde n'a aucun effet sur les courbes des échantillons en lévitation, tandis que cet effet semble légèrement présent sur les courbes des échantillons en surface.

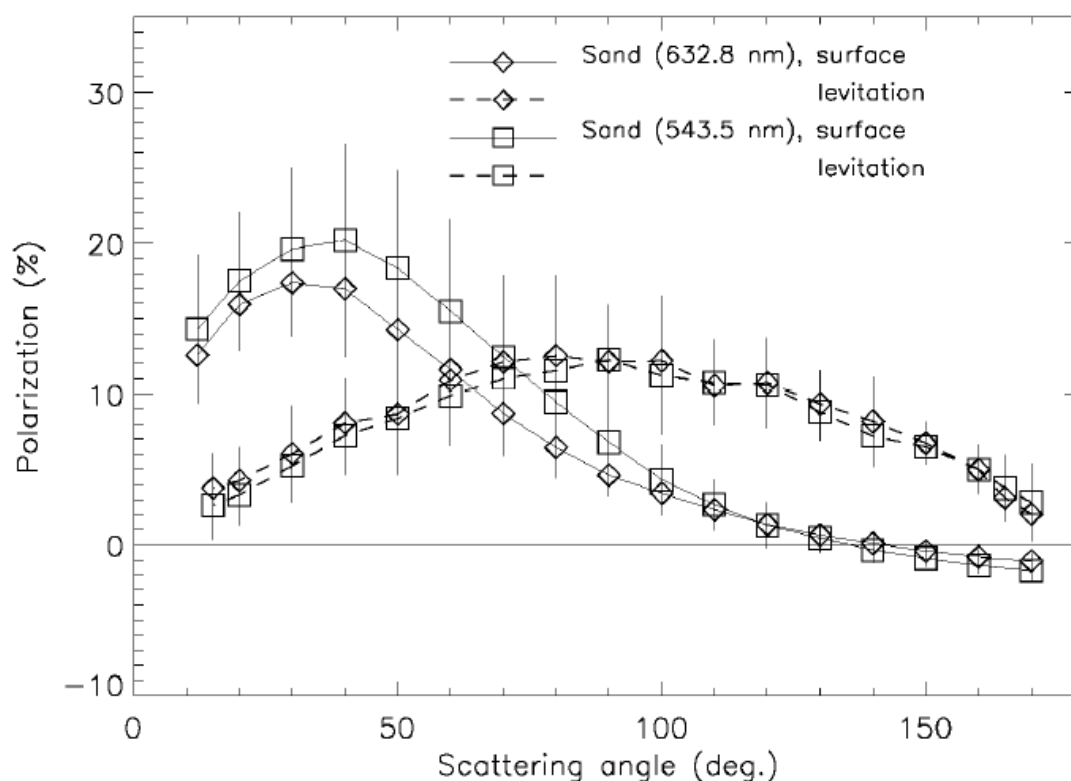


Figure 48 : Courbes de polarisation synthétiques des échantillons de sable à l'exception du sable noir, à $\lambda = 632,8$ nm et $\lambda = 543,5$ nm. Les marges d'erreur correspondent à la dispersion des courbes individuelles.

4.3.3 Résultats des courbes des petites particules en lévitation et comparaison avec les courbes en surface

4.3.3.1 Courbes de polarisation et de radiance de l'argile et du sable cassé en lévitation

La figure 49 présente les courbes de polarisation pour les petites particules (argile et sable brisé) dans le domaine rouge. Les courbes montrent des valeurs proches de celles des gros grains (les amplitudes varient entre 10 et 16 %).

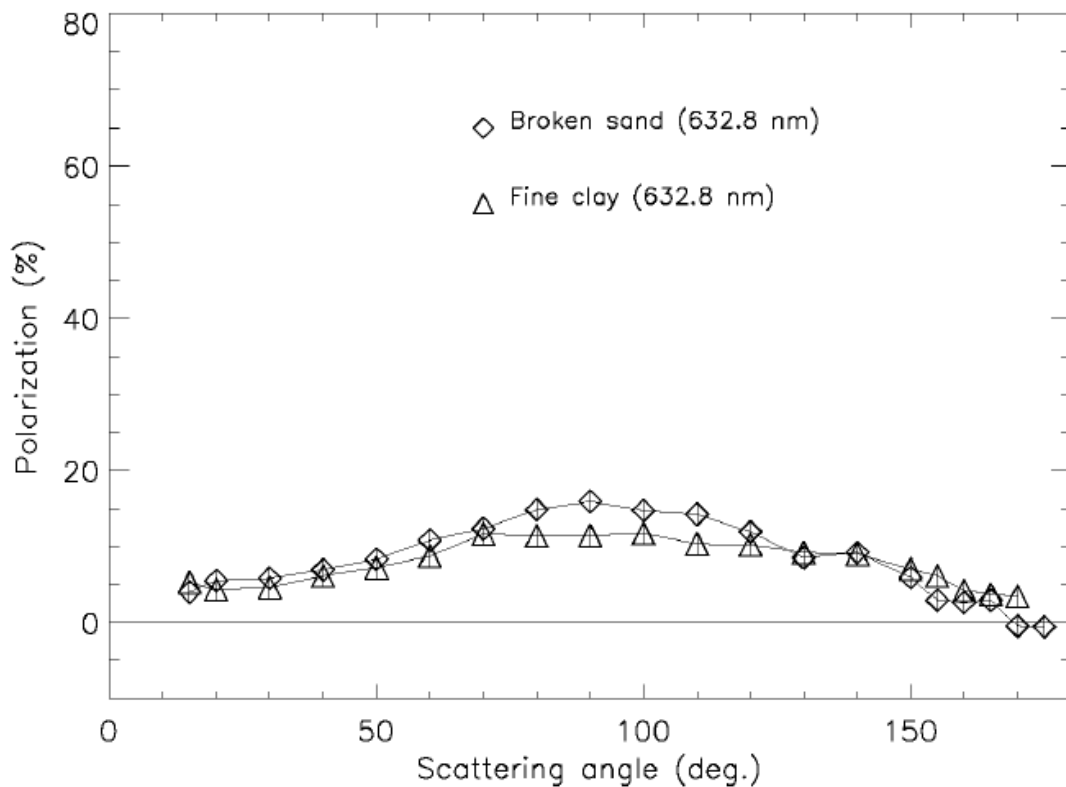


Figure 49 : Courbes de polarisation produites par les échantillons de sable en lévitation, mesurées à $\lambda = 543,5$ nm.

La figure 50 représente les courbes de radiance pour les petites particules (argile et de sable brisé) dans le domaine rouge. Ces courbes montrent un comportement similaires; avec une forte augmentation vers les petits angles de diffusion.

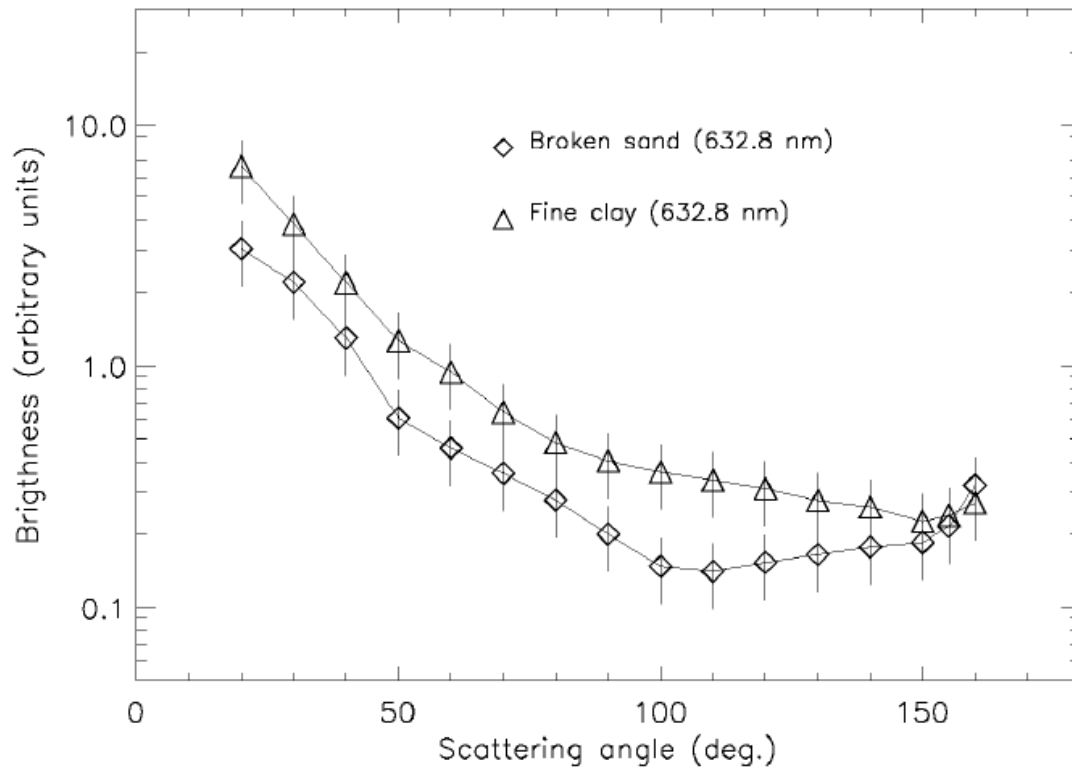


Figure 50 : Courbes de radiance produites par les petits échantillons de sable en lévitation, mesurées à $\lambda = 632,8$ nm.

4.3.3.2 Courbes de polarisation et de radiance de l'argile fine en lévitation et en surface à 632,8 nm et à 543,5 nm.

La figure 51 présente les courbes de polarisation de l'argile mesurées à $\lambda = 632,8$ nm et $\lambda = 543,5$ nm en lévitation et déposées en surface. L'argile fine en lévitation présente un petit effet de couleur avec des valeurs légèrement supérieures dans le domaine vert. Les différences entre les courbes produites par les échantillons en surface et les échantillons en lévitation sont bien évidentes et similaires à ce qui est discuté dans le paragraphe 4.3.2.2 :

- les angles de diffusion correspondants aux valeurs de polarisation maximales des courbes en lévitation et des courbes en surface sont différents ;
- les amplitudes de polarisation produites par les échantillons déposés en surface sont inférieures à celles produites par les échantillons en lévitation ;

- les courbes produites par les échantillons en surfaces montrent des valeurs négatives aux grands angles de diffusion.

. Enfin, les courbes de radiance, présentées sur la figure 52, sont très différentes (les courbes sont normalisées de manière à avoir la même valeur à 90 ° angle de diffusion).

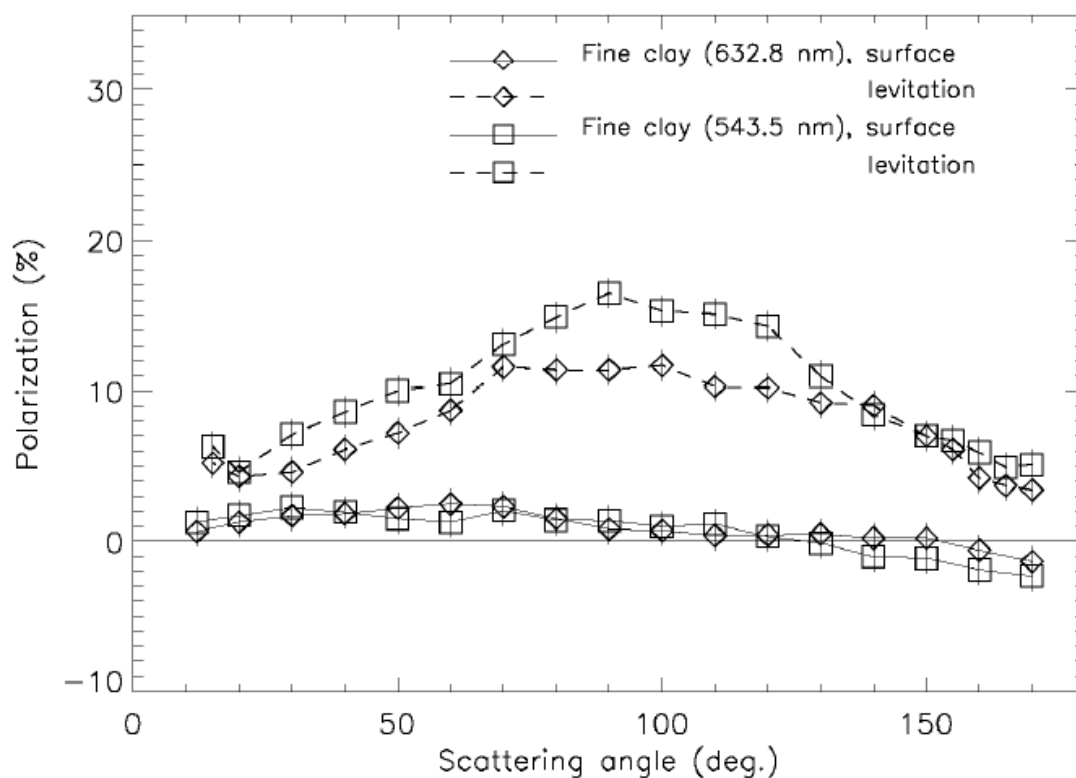


Figure 51 : Comparaison entre les courbes de polarisation produites par l'échantillon argile fine déposée et en lévitation, mesurées à $\lambda = 632,8$ et à $\lambda = 543,5$ nm.

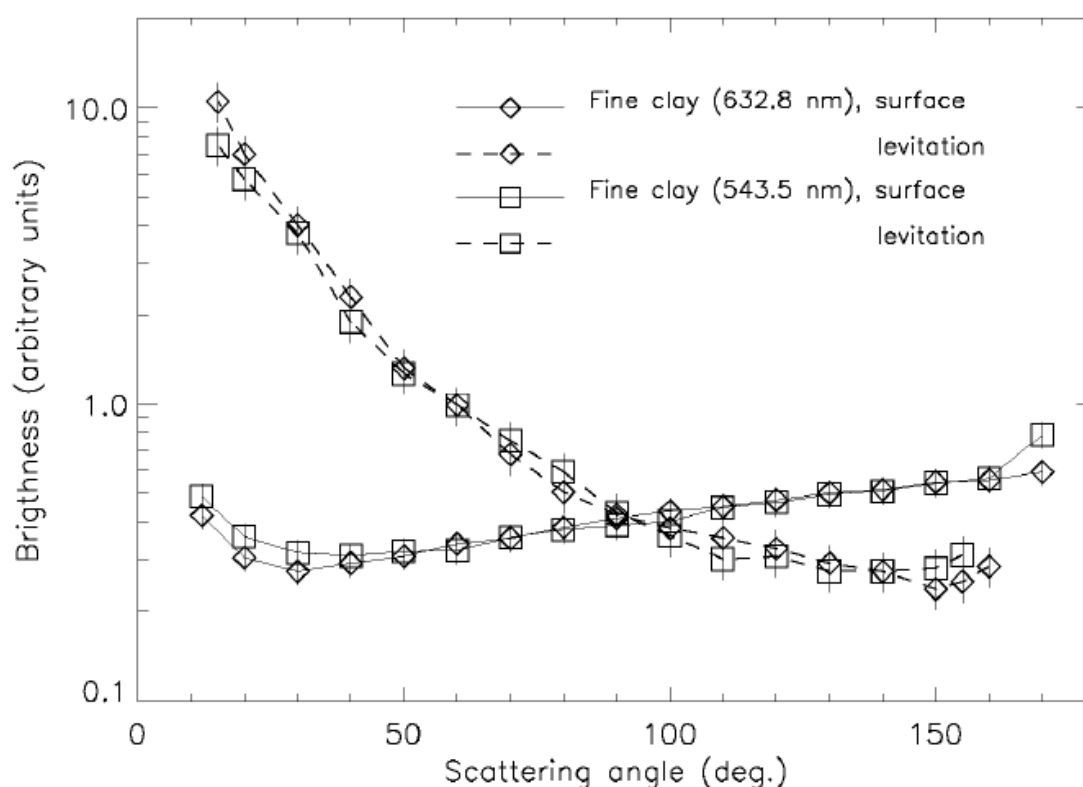


Figure 52 : Comparaison entre les courbes de radiance produites par l'échantillon argile fine déposé et en lévitation, mesuré à $\lambda = 632,8$ et à $\lambda = 543,5$ nm.

4.4 Conclusion

Les courbes de polarisation pour les échantillons de gros grains de sable déposés et les mêmes échantillons en lévitation diffèrent fortement à tous les angles de diffusion. De plus, les courbes de polarisation et de radiance produites par du sable déposé se distinguent entre sable sec et sable humide. Les mêmes différences sont obtenues en considérant les plus petits échantillons de sable, représentatifs de ceux que l'on peut rencontrer dans la basse atmosphère (courbes de diffusion de l'argile fine).

Il est ainsi possible de distinguer entre sable déposé sec, sable déposé et humide et sable en lévitation par l'analyse de la polarisation des valeurs autour de 90° d'angle de diffusion et aux grands angles (la polarisation négative n'existant que pour le sable sec déposé).

Les courbes de polarisation et de radiance peuvent être un outil supplémentaire de l'interprétation des mesures de télédétection des aérosols dans la basse troposphère et de leurs

sources au niveau du sol. Bien qu'elles ne puissent pas être utilisées seules pour identifier l'origine des particules de sable, elles permettent de déterminer facilement si les grains sont déposés au sol ou flottant dans l'air, en particulier en examinant les valeurs de polarisation autour de 90° (là où les valeurs sont nettement différentes entre sable déposé et sable lévitant) et autour de l'angle de l'inversion vers 150° (valeurs négatives n'existant que pour les échantillons déposés). D'autre part un rapport des valeurs de radiance à ces deux angles présente aussi un outil permettant de différencier entre sable déposé et sable en lévitation. En effet un rapport de la valeur de radiance à 150° sur la valeur à 90° est inférieur à 1 pour le sable fin en lévitation, tandis que ce rapport est supérieur à 1 pour le sable fin déposé en surface. Cependant ce rapport peut être quasiment égal à 1 si le sable est humide (Tableau 5: Rapport de la valeur de brillance à 150° sur la valeur à 90° pour le sable fin en lévitation, sable fin déposé et sable déposé et humide.). Plus d'investigations sont nécessaires pour évaluer l'effet de l'humidité en relation avec sa teneur dans un échantillon.

Conditions de mesures	Valeur de brillance à 150° / Valeur de brillance à 90°
Sable fin en lévitation	0,56
Sable fin déposé en surface	1,32
Sable déposé et humide (sable Liban)	0,99

Tableau 5: Rapport de la valeur de brillance à 150° sur la valeur à 90° pour le sable fin en lévitation, sable fin déposé et sable déposé et humide.

Les courbes de radiance présentées dans ce chapitre ont servi comme base de donnée pour la conception de nouveaux compteurs d'aérosols en cours de développement au LPC2E avec la société Environnement-SA : CPA (Continuous Particulates Analyser) et LOAC (Light Optical Aerosol Counter). Ces instruments vont effectuer des mesures à différents angles de diffusion et il fallait choisir les angles les plus favorables pour l'identification des différentes natures d'aérosols présentes dans l'air. Sans rentrer dans les détails, une mesure à un petit angle de diffusion ($<15^\circ$) est peu dépendante de la nature des particules et permet donc d'accéder à la concentration en aérosols (Renard et al., 2010). Une mesure simultanée à un ou plusieurs autres angles, typiquement entre 60° et 160° là où la radiance est très sensible à la nature des particules,

permet l'identification des principales familles d'aérosols. A partir des mesures obtenues avec PROGRA2 pour différents natures de particules solides, et notamment pour les sables, 4 angles (10° , 60° , 115° et 160°) ont été choisi pour le CPA, instrument au sol dédié à la mesure de la qualité de l'air ambiant pour des réseaux de surveillance, et 2 angles (12° et 60°) ont été choisi pour LOAC (compteur d'aérosols léger, de moins d'un kg, embarquable sous ballons). Ces instruments seront disponibles fin 2011.

Chapitre 5

Etudes des propriétés optiques de suies et de noir de
carbone

5.1 Rappel sur la formation des suies

5.1.1 Production et formation des particules de suies dans une flamme

Les suies sont produites par une combustion incomplète de combustibles. Elles sont composées principalement de carbone. Des traces d'hydrogène, d'oxygène et d'azote sont aussi présentes dans les particules de suies (Haynes et Wagner, 1981 ; Kennedy, 1997). Elles se forment dans une flamme à haute température (supérieure à 1300 K) et dans des conditions de richesse locale élevée (typiquement, supérieure à 1,7). La richesse étant le rapport entre le ratio de masse du combustible à l'air pendant l'expérience, et le ratio de la masse du combustible à l'air à stoechiométrie.

5.1.1 La nucléation

Dans la zone la plus réactive de la flamme, les produits issus de l'oxydation et de la pyrolyse du combustible (HAP et hydrocarbures insaturés tel que l'acétylène) se condensent et forment les premières particules solides de l'aérosol : les nucléi (diamètre inférieur à 2 nm). Ces nucléi sont produits en grande quantité et possèdent une très petite taille (diamètre inférieur à 2 nm).

5.1.2 Grossissement de surface des nucléi

Les nucléi vont ensuite grossir au cours du phénomène de grossissement de surface. Les espèces gazeuses vont réagir sur la surface des nucléi et s'y incorporer. Ce phénomène se répète jusqu'à ce que les particules deviennent quasiment sphériques avec un diamètre proche de au moins 10 nm, appelés grains. Des collisions entre les grains imposent la morphologie des agrégats (coagulation et agglomérations).

5.1.3 La coagulation et l'agglomération

Lorsque les grains sont encore jeunes de diamètre inférieur à 10 nm, leur croissance de surface est encore rapide et leur structure interne est encore instable. Lorsqu'ils entrent en collision, ils peuvent, du fait de la forte concentration et des mouvements browniens dus à la

température, fusionner. Leur structure interne (encore instable) peut alors changer. Des grains plus grands peuvent résulter de ce phénomène ayant un rayon entre 10 et 40 nm. Il s'agit du phénomène de coagulation.

Lorsque des grains moins jeunes (diamètre supérieur à 10 nm, structure interne moins mobile) entrent en collision, ces derniers vont se coller sans fusionner. Il s'agit du phénomène d'agglomération. C'est ainsi que la morphologie complexe d'une suie et la distribution granulométrique se forme.

Les suies sont donc composées de petits grains primaires sphériques, appelées monomères qui se coagulent/s'agglomèrent entre eux pour former de larges agrégats qui ont une morphologie quasi fractale. Les grains primaires sont considérés avoir un diamètre identique parce qu'ils résultent du même processus de formation. Voir figure 53.

La description de la morphologie des suies a nécessité de nombreuses études théoriques et expérimentales citons quelques unes: Jullien et Botet, 1987 ; Brasil et al., 1999, 2000, 2001, Medalia et Heckman, 1969 ; Dobbins et Megaridis, 1987 ; Megaridis et Dobbins, 1990 ; Köylü et al., 1995.

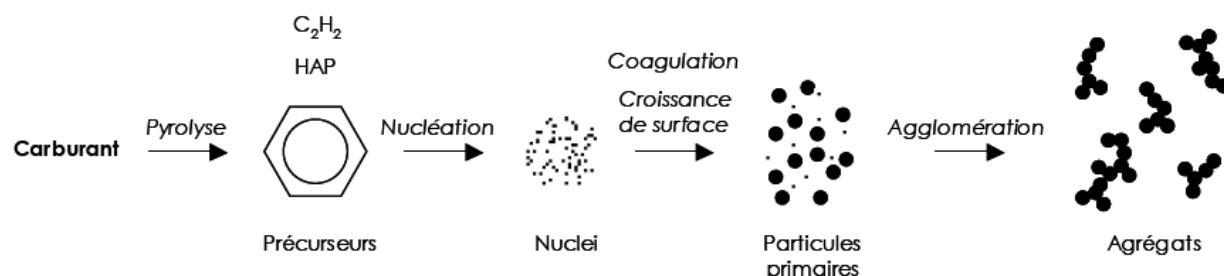


Figure 53 : Processus de formation et d'évolution des agrégats de suie dans une flamme.

Extrait de Maugendre, (2009)

5.1.4 L'Oxydation

En parallèle avec ces réactions de formation, des réactions d'oxydation interviennent dans la zone peu réactive de la flamme. Deux phénomènes d'oxydation peuvent avoir lieu : oxydation à partir de l'oxygène et oxydation à partir du radical OH. L'oxygène présente une efficacité de collision faible, il peut donc pénétrer à l'intérieur des agrégats et effectuer une oxydation interne

qui peut entraîner la cassure de la particule. L'oxydation par OH se fait en surface et ne risque pas de casser les agrégats mais peut conduire à la diminution de leurs masses.

Enfin, lorsque la température devient inférieure à 800K, différents composants viennent s'adsorber à la surface des particules : hydrocarbures lourds venant du carburant, hydrocarbures oxygénés...

5.1.5 Structure des grains primaires

Les grains primaires comportent environ 10^5 atomes de carbone, qui se disposent en rangées hexagonales appelées plaquettes. Les plaquettes s'ordonnent en groupe de 2 à 5 pour former une cristallite. Un millier de ces cristallites forme un grain primaire. La structure interne des grains primaires de suies dépend de la nature du combustible et des conditions de combustion.

5.1.6 Diamètre et nombre des grains primaires

La dispersion en taille des particules primaires est de type gaussien. Une faible dispersion en taille a été trouvée pour les particules primaires (Köylü et Faeth, 1992, Wentzel et al., 2003). Le nombre des grains primaires dépend du combustible et du processus de combustion. Des suies prélevées d'une zone réactive de la flamme présentent un nombre faible en particules primaires, de l'ordre de 50 (Hu et Köylü, 2003). Par contre, des suies prélevées en dehors de la flamme possèdent un nombre de particules primaires qui s'élèvent à 500 par agglomérat (Köylü et Faeth, 1992).

On définit le nombre des particules primaires N_p en fonction des grandeurs suivantes :

$$N_p = k_f \cdot \left(\frac{D_g}{D_{pp}} \right)^{D_f} \quad (\text{Équation 5.1})$$

D_g étant le diamètre de giration. Il permet de donner une estimation de la répartition massique des agrégats.

D_{pp} étant le diamètre des particules primaires

D_f et k_f sont les paramètres morphologiques d'un agrégat; la dimension fractale et le préfacteur respectivement, détaillés dans le paragraphe suivant.

5.1.7 Dimension fractale et préfacteur

La dimension fractale du point de vue géométrique permet de quantifier l'aspect plus ou moins tortueux d'un objet fractal. En ce qui concerne les suies elle montre le degré de compacité et d'aération d'une particule. Plus la dimension fractale est importante plus la particule est compacte et moins elle est aérée (voir figure 54). Dans cette thèse, les suies étudiées dont ont connaît la valeur de la dimension fractale varie entre 1,74 et 1,86.

Le préfacteur k_f un des paramètres morphologiques d'un agrégat peut être déduit à partir de l'équation 5.1 qui permet d'établir la relation entre $\ln(N_p)$ et $\ln(D_g/D_{pp})$, qui suivent une droite de pente D_f et l'ordonnée à l'origine $\ln(k_f)$. Le préfacteur est lié à la densité des particules primaires formant un agrégat (Sorensen et Roberts, 1997). Le préfacteur est sensible à la nature du combustible. Si la dimension fractale de plusieurs particules est proche (comme dans notre cas), le préfacteur est considéré comme un facteur secondaire.

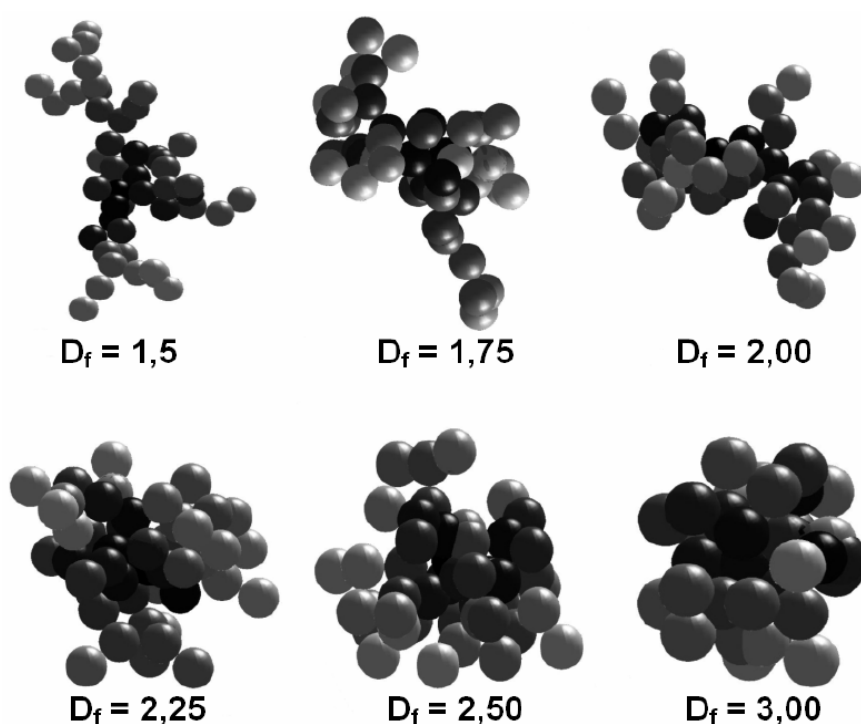


Figure 54 : Morphologie d'agrégats de dimension fractale différente.

Extrait de Ouf, 2006

5.1.8 Le carbone élémentaire (EC) et le carbone organique (OC)

Une suie est composée de carbone élémentaire (EC) ou le black carbon, composé exclusivement d'atomes de carbone. Elle contient aussi une fraction plus ou moins importante de matière organique (OC) adsorbée lors du refroidissement des produits de combustion. L'OC est constitué d'une multitude de composés organiques différents principalement les *Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques* (HAP). Pour des études détaillées sur l'évolution des HAP à la surface des suies on peut se référer aux travaux de Guilloteau, 2007.

5.2 Échantillons de suies

5.2.1 Suies générées par miniCAST

Des échantillons de suies de différentes tailles et de différent taux en EC/OC sont étudiés en lévitation. Ces suies sont produites par un générateur de suies MiniCAST. Dans le but d'étudier leurs propriétés optiques avant qu'elles s'agglomèrent en grande quantité, les suies générées par miniCAST étaient injectées directement dans la fiole de PROGRA2.

5.2.1.1 MiniCAST

Minicast (Combustion Aerosol STandard) est un générateur de suies par la combustion du propane dans l'air. Les particules de suie générées par miniCAST ont un diamètre de l'ordre de quelques dizaines de nm et des caractéristiques similaires à celles émises par les processus de combustion réel comme les moteurs diesel. Le principe est illustré dans la figure 55. Pour interrompre le processus de combustion, la flamme de diffusion est arrêtée avec de l'azote (Zahoransky et al., 2002 ; Barthazy et al., 2006). Pour obtenir de suies de différents diamètres, on fait varier le débit d'air. Ainsi la hauteur de la flamme sera changée. L'azote chargé d'interrompre le processus de combustion provient de la même hauteur, en changeant alors la hauteur de la flamme la suie pourrait être générée à partir de différentes hauteurs donnant ainsi différents diamètres.

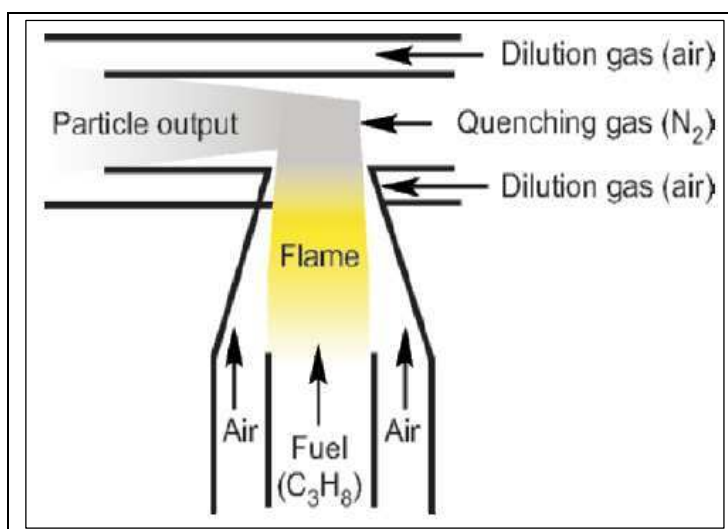


Figure 55 : Système de combustion dans miniCAST. Extrait de Barthazy et al. (2006)

Les aérosols de différentes propriétés peuvent alors être générés (concentration, distribution de taille, carbone organique/carbone élémentaire). Trois tests ont été effectués donnant trois types de suies ayant un différent taux de EC/OC et de différentes tailles. Pour distinguer entre les trois types de suies on mettra le flux d'air entre parenthèse. Le Tableau 6 montre les caractéristiques des échantillons étudiés et la figure 56 montre le nombre des particules générées en fonction de leurs diamètre (tel que donné par le SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer)). Les diamètres médians sont de l'ordre de 60 nm, 115 nm et 150 nm pour un flux d'air de 1 ; 1,2 et 1,5 respectivement.

Flux d'air d'oxydation (l,min ⁻¹)	Nom utilisé dans ce qui suit	EC (%)	OC (%)
1,5	suie(1,5)	92,5	7,5
1,2	suie(1,2)	49,8	50,2
1,0	suie(1)	63,0	47,0

**Tableau 6 : Composition des particules de suie en fonction du flux d'air d'oxydation
(d'après de Barthazy et al. , 2006).**

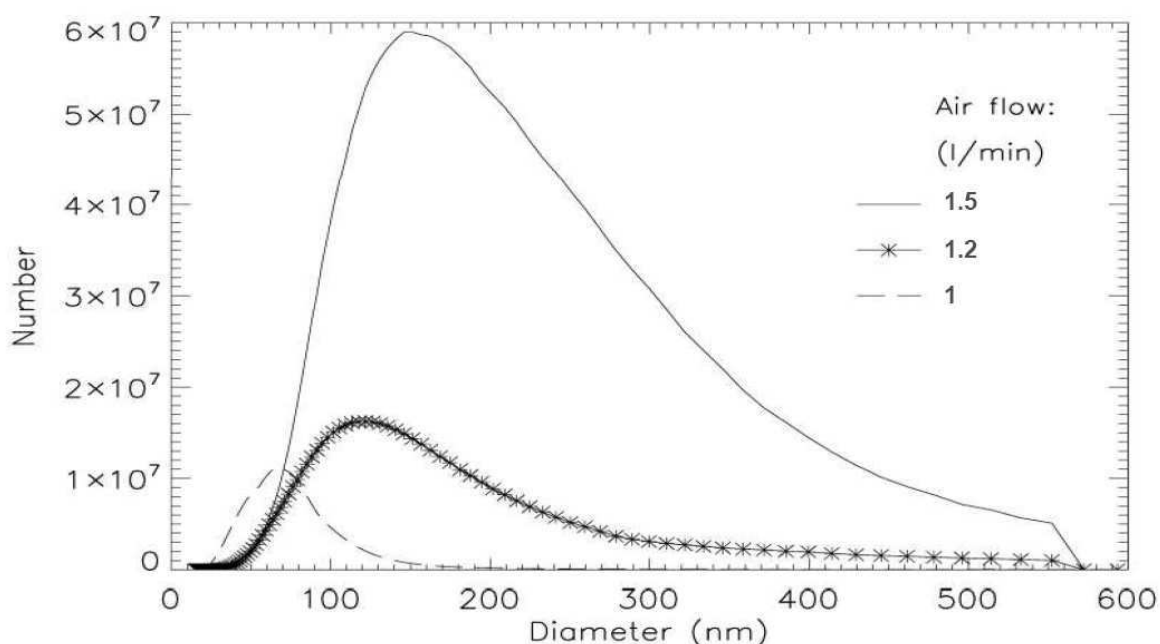


Figure 56 : Distribution en taille des particules de suies générées par miniCAST avec des différents flux d'air. Les diamètres médians sont de l'ordre de 60 nm, 115 nm et 150 nm.

5.2.1.2 Système de mesure

Le système de mesure de la diffusion lumineuse des suies générées par MiniCAST à l'aide de PROGRA2 est illustré dans la figure 57. Une partie des suies produites par Minicast est éjectée directement dans la fiole de PROGRA2 et est aspirée par une pompe permettant aux particules de flotter dans toute la fiole en particulier dans le domaine de faisceau laser (figure 58). Après leur aspiration les particules passent à travers un filtre, puis elles sont extraites. L'autre partie est éjectée dans un SMPS où les particules sont neutralisées à l'aide d'une source radioactive, puis ils entrent dans une colonne DMA (Differential Mobility Analyzer) qui permet de sélectionner la taille des particules qui seront ensuite comptées par le CPC. Le compteur de particules CPC (Condensation Particle Counter) donne la concentration de particules de chaque taille. Le SMPS constitué d'un DMA et d'un CPC est lié à un ordinateur et permet alors de reconstituer le spectre granulométrique des aérosols (voir figure 56). Notons que les tuyaux à travers lesquels passent les suies, réduisent le dépôt des aérosols par effet électrostatique mais

n'agissent pas sur le phénomène d'agglomération des particules; donc les suies peuvent s'agglomérer avant d'atteindre la fiole.

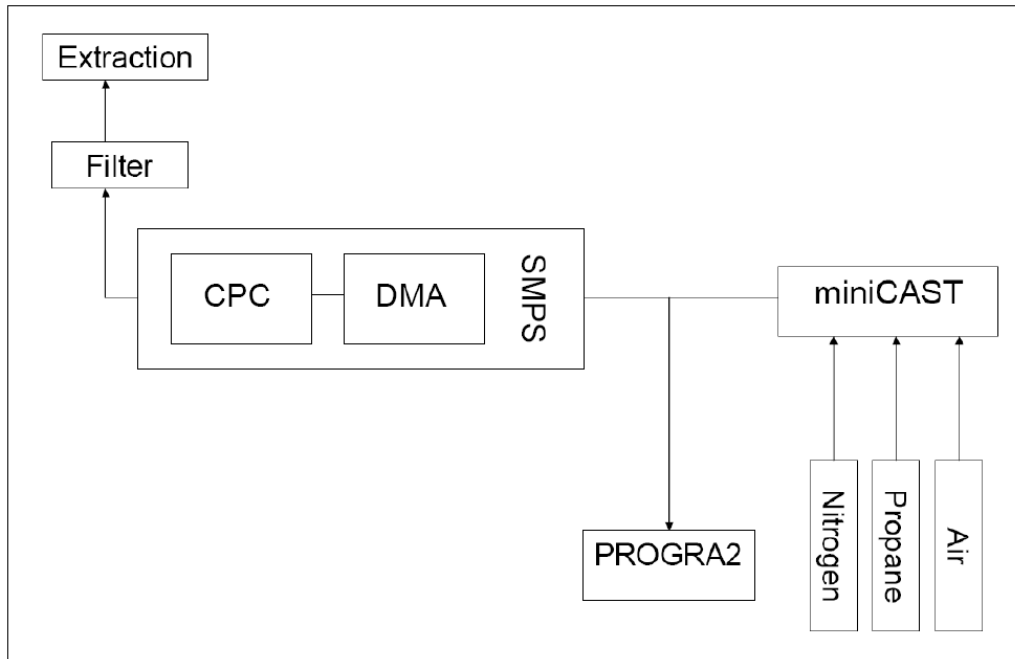


Figure 57 : Montage de l'injection de suies dans la fiole de PROGRA2

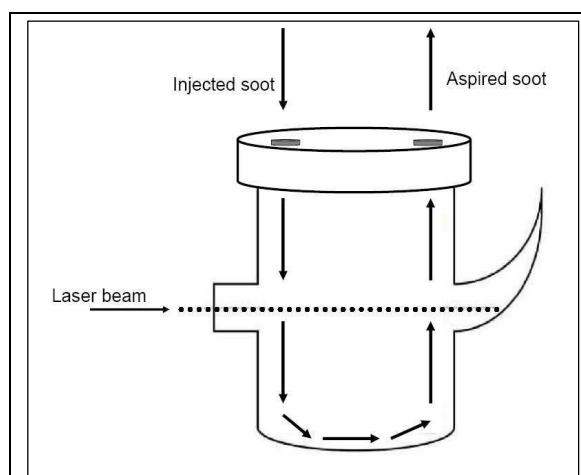


Figure 58 : Fiole utilisée pour pouvoir injecter directement les suies dans PROGRA2

5.2.2 Suies produites dans une chambre de combustion

Dans ce qui suit les suies étudiées ne sont pas injectées directement après leurs formations dans la fiole de PROGRA2 donc les mesures sont faites sur des gros agglomérats.

Des suies issues de deux combustibles différents seront détaillés dans cette partie : le Polyméthyl méthacrylate (PMMA, $C_5H_8O_2$) et le solvant liquide, le toluène (C_7H_8). Les échantillons sont produits suivant différentes conditions de combustion. Les figures 59 et 60 montrent les morphologies des suies provenant du PMMA et de toluène respectivement obtenue avec un microscope électronique en transmission (TEM).

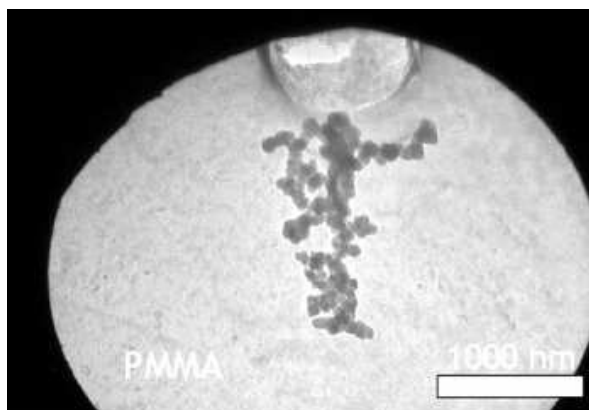


Figure 59 : TEM micrographs des suies produites par la combustion de PMMA.

Extrait de Ouf et al., 2008

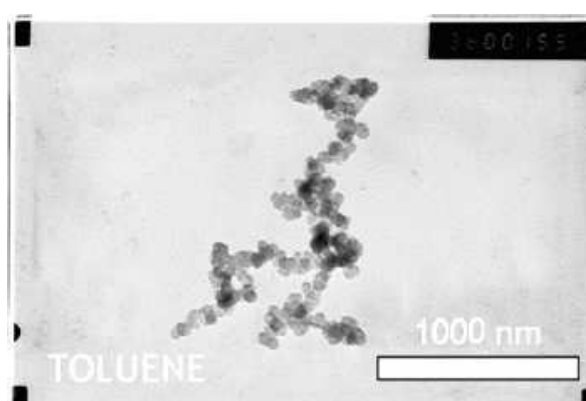


Figure 60 : TEM micrographs des suies produites par la combustion de toluène.

Extrait de Ouf et al., 2008

Les expériences (Ouf, 2006 ; Ouf et al. 2008) ont été effectuées dans une chambre de combustion dans l'installation présentée à la figure 61. La zone d'incendie était située dans un foyer d'environ 1 m^3 couvertes par un capot relié à une conduite de ventilation verticale de 114 mm de diamètre. L'air entre par le bas du foyer et la conduite surmontant ce foyer comporte à la fin des filtres THE (Très Haute Efficacité) qui permettent de limiter les rejets des suies. Un système d'extraction et un jeu de vannes permettent d'ajuster le débit de ventilation entre 50 et 500 m^3/h . Un réseau de cordon chauffant sert à maintenir la température de la ligne de ventilation. Une balance est placée dans le foyer et permet de mesurer en temps réel la perte de masse du combustible.

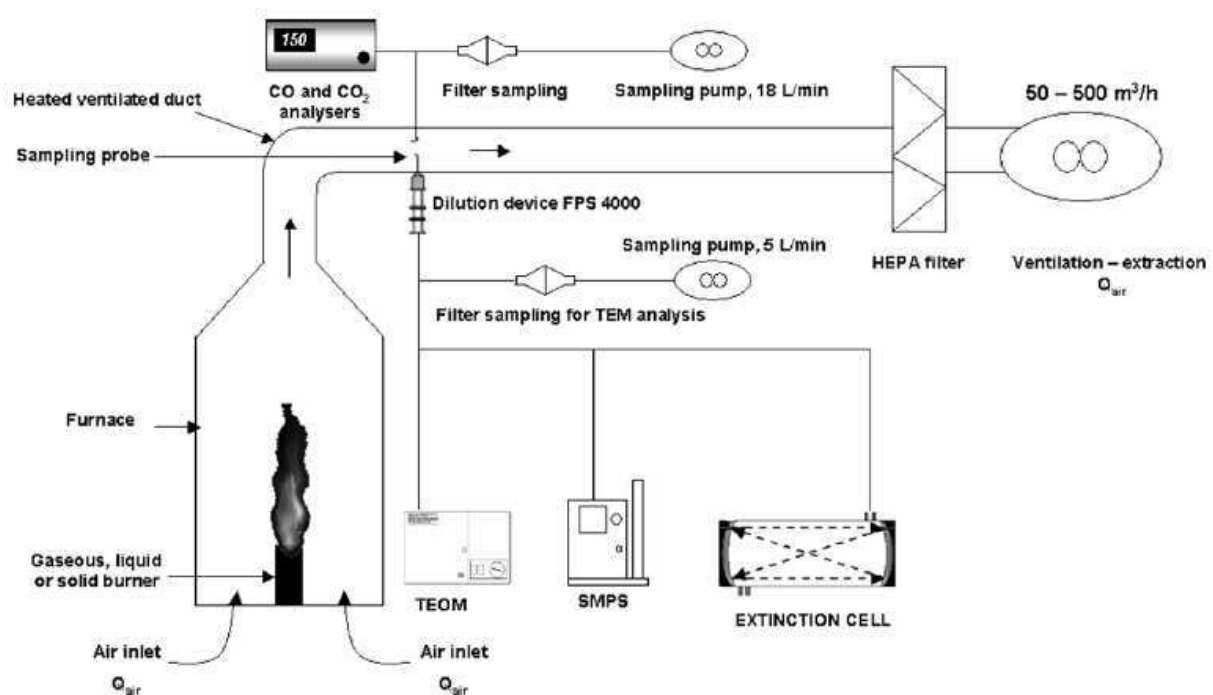


Figure 61 : Schéma descriptif du dispositif expérimental effectué pour produire les suies
Extrait de Ouf et al., 2008.

La richesse globale, en anglais *global equivalence ratio* (GER), un paramètre important de la combustion, est définie comme le rapport entre le ratio de masse du combustible à l'air pendant l'expérience, et le ratio de la masse du combustible à l'air à stoechiométrie.

$$GER = \frac{\left(\frac{m_{\text{combustible}}}{m_{\text{air}}} \right)_{\text{expérience}}}{\left(\frac{m_{\text{combustible}}}{m_{\text{air}}} \right)_{\text{stochio}}} \quad (\text{Equation 5.2})$$

En changeant la richesse des échantillons de différents taux EC/OC sont obtenus (figure 62). En plus ces échantillons montrent de différentes propriétés morphologiques (Tableau 7).

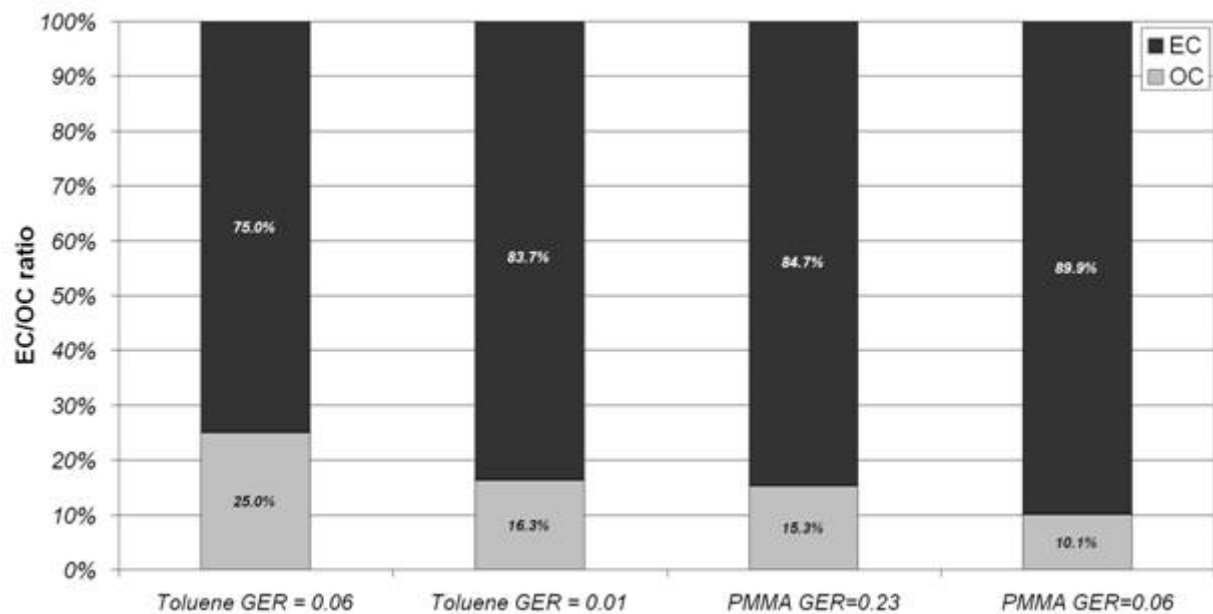


Figure 62 : Dépendance du taux carbone élémentaire/carbone organique de la richesse
Extrait de Ouf, 2006

Combustible	Nom utilisé dans ce manuscrit	Taux de Ventilation (m^3/h)	Richesse globale	Diamètres des particules primaires (nm)	Dimension fractale
Toluene (C_7H_8)	Toluene1	450	0,01	52	1,86
	Toluene2	100	0,06	70	1,81
PMMA ($C_5H_8O_2$)	PMMA1	450	0,06	42	1,78
	PMMA2	50	0,49	56	1,74

Tableau 7 : Informations détaillées sur les échantillons des suies.

Extrait de Ouf, 2006 ; Ouf et al., 2008.

5.2.3 Échantillons de noir de carbone

Les matières premières employées pour obtenir du noir de carbone sont des huiles lourdes, des hydrocarbures liquides, du gaz naturel ou de l'acétylène.

5.2.3.1 Procédé fournaise (®Printex 90)

La formation du noir de carbone s'effectue dans un réacteur clos (four). En effet une flamme est provoquée dans un mélange gaz/air et de l'huile y est pulvérisée. Après refroidissement par pulvérisation d'eau, des gaz de combustion contenant le noir de carbone sont récupérés au niveau des séparateurs (filtres). Les figures 63 et 64 montre la morphologie de cet échantillon obtenue avec un microscope électronique à balayage (MEB) et avec un TEM respectivement.

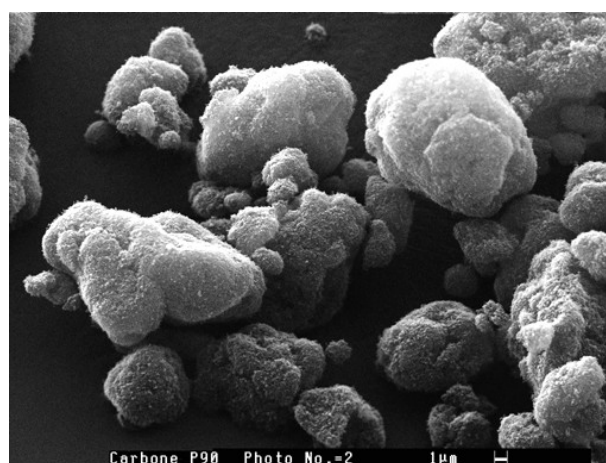


Figure 63 : MEB micrographs de ®Printex 90

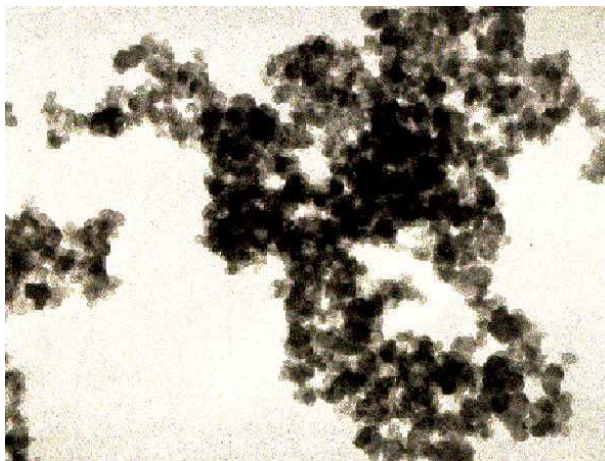


Figure 64 : TEM micrographs de ®Printex 90

5.2.3.2 Procédé noir de fumée (®Lamp black 101)

Le four du procédé noir de fumée est composé d'un bac en fonte où se trouve l'huile et d'une hotte d'évacuation dans laquelle brûle la flamme productrice de noir de carbone. Les gaz d'échappement chauds contenant du noir de carbone sont refroidis et acheminés vers des filtres où s'effectue la séparation par précipitation. La taille des particules du noir de carbone peut être ajustée en faisant varier la quantité de l'air de combustion. Les figures 67 et 68 montrent la morphologie de cet échantillon.

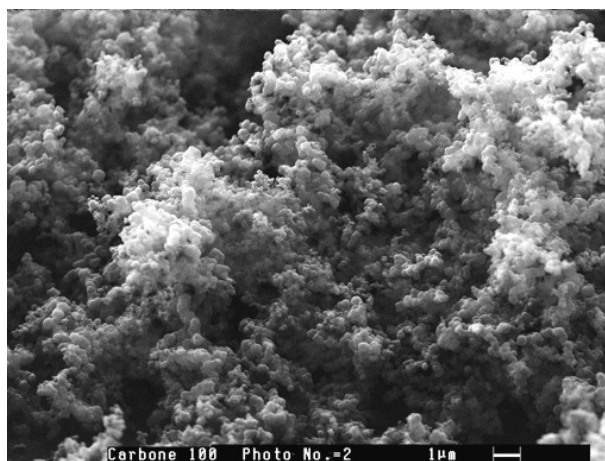


Figure 65 : MEB micrographs de ®Lamp black 101

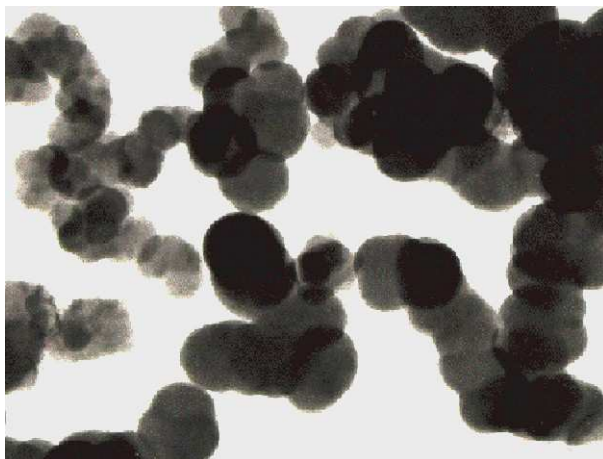


Figure 66 : TEM micrographs de @Lamp black 10

Le facteur DBP (tableau 7) correspond au volume en ml de phthalate de dibutyle adsorbé par 100 g de noir de carbone. Cette adsorption dépend de la structure c'est à dire de l'agrégation plus ou moins prononcée de la particule. Le Tableau 8 montre les diamètres des particules primaires des échantillons de noir de carbone ainsi que le DBP.

Nom Commercial	Nom utilisé dans ce manuscrit	Diamètres des particules primaires (nm)	DBP (ml/g)
®Printex 90	C14	14	95
®Lamp black 101	C95	95	112

Tableau 8 : Informations détaillées sur les échantillons du noir de carbone

5.3 Résultats

5.3.1 Résultats des propriétés optiques des suies produites par MiniCAST

Il convient de rappeler qu'avec l'instrument PROGRA2-vis des mesures sur des petites particules fortement absorbantes telles que les suies de taille inférieure à la longueur d'onde n'ont jamais été effectuées jusqu'à présent. Cette étude est donc dédiée à l'évaluation

de la capacité et des limites de l'instrument PROGRA2-vis en ce qui concerne les particules fortement absorbantes et de faible taille.

5.3.1.1 Courbe d'intensité produite par les 2 caméras de détection

La figure 67 représente les courbes d'intensité détectées par la caméra parallèle et la caméra perpendiculaire produites par l'échantillon suie(1,5) à 150° d'angle de diffusion. Les courbes montrent un accroissement avec le temps. Ceci est également détecté sur les autres angles. Cette augmentation est probablement due à l'agglomération des suies flottant dans la fiole après quelques secondes. Les courbes de polarisation et de radiance représentent alors un mélange de suies de différents diamètres. Le diamètre initial est celui donné dans la figure 56.

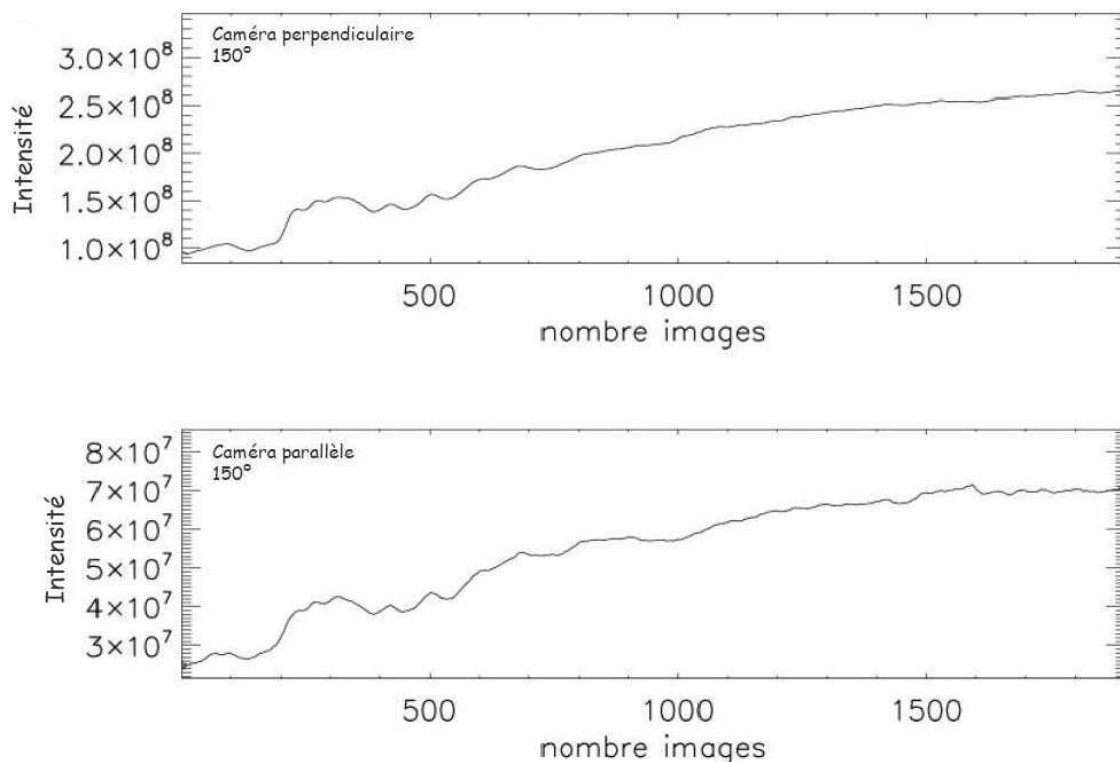


Figure 67 : Courbes d'intensité détectée par la caméra parallèle et la caméra perpendiculaire en fonction du nombre d'image produite par l'échantillon suie(1,5) à 150° d'angle de diffusion.

L'échantillon suie(1,5) représente le diamètre le plus élevé et aussi la concentration la plus élevée, engendrant probablement une agglomération plus importante que les autres échantillons. En effet le Tableau 9 et la Figure 68 montrent l'évolution de l'agglomération en fonction du temps pour une approche mono dispersée (équation 5.3). Ce calcul est fait avec le

programme AEROCALC basé sur les formules qu'on peut trouver dans l'ouvrage « Aerosol Measurement - Principles, Techniques, and Applications (2001) » de Paul A. Baron et Klaus Willeke (Wiley-Interscience).

$$d(t) = d_0 (1 + N_0 \cdot K \cdot t)^{1/3} \quad (\text{Equation 5.3})$$

$d(t)$ étant le diamètre des particules à un temps t

d_0 étant le diamètre des particules initial

K étant le coefficient de coagulation exprimé par l'équation suivante :

$$K = 4 \cdot \pi \cdot D_p \cdot D \quad (\text{Equation 5.4})$$

D étant le coefficient de diffusion des particules (m^2/s)

D_p étant le diamètre géométrique de la particule

La concentration choisie n'est pas réelle (10^{12} particules/ cm^3), la concentration dans la fiole n'est pas connue car le temps d'éjection de particules de suies dans la fiole avant le commencement des mesures n'est pas contrôlé. Donc cette évolution en diamètre n'est qu'un calcul en relatif pour montrer l'évolution du diamètre des particules d'une part et le mélange de particules de différents diamètres d'autre part (les suies « jeunes » continuent à être éjectées dans la fiole).

Température (Kelvin)	Pression (kPA)	Concentration initiale (particules/ cm^3)	Diamètre médian (μm)	Temps (s)	Diamètre à temps (t) en (μm)
293,15	101,3	10^{12}	0,16	60	5,381
293,15	101,3	10^{12}	0,16	120	6,779
293,15	101,3	10^{12}	0,16	180	7,761

Tableau 9 : Paramètres et valeurs utilisés pour calculer le diamètre des particules après agglomération. Ce calcul est fait avec le programme AEROCALC

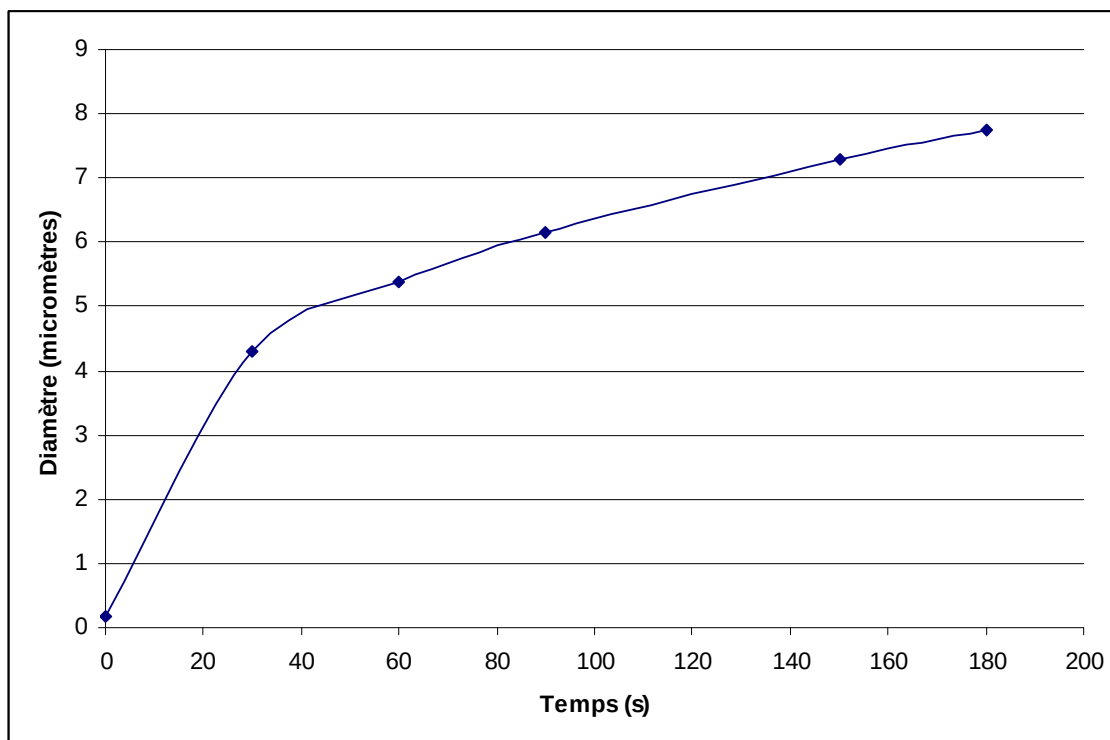


Figure 68 : Evolution du diamètre des particules après agglomération. Ce calcul est fait avec le programme AEROCALC

5.3.1.2 Calcul d'erreur sur les valeurs de polarisation et de radiance

La figure 69 représente les courbes d'intensité détectées par la caméra parallèle et la caméra perpendiculaire produites par l'échantillon suie(1,5) à 100° d'angle de diffusion. Ces courbes n'évoluent pas parallèlement comme c'était le cas dans la figure 67.

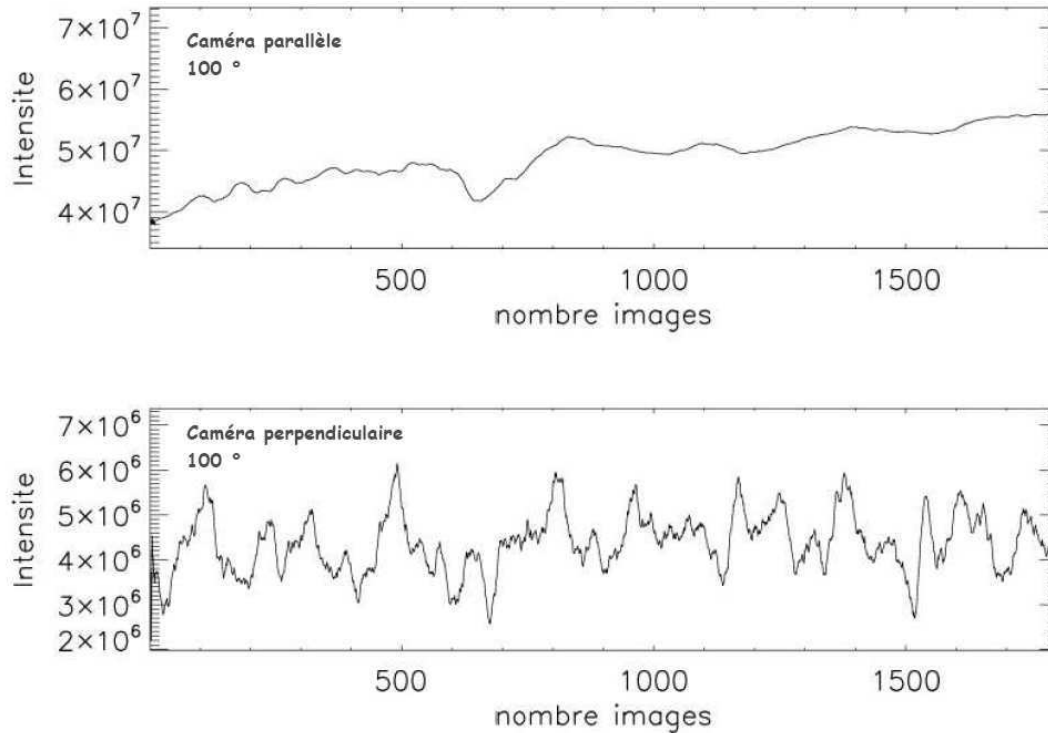


Figure 69 : Courbes d'intensité détectée par la caméra parallèle et la caméra perpendiculaire en fonction du nombre d'image produite par l'échantillon suie(1,5) à 100° d'angle de diffusion

Ce phénomène est détecté à chaque fois que le flux de la lumière passe en dessous d'une valeur autour de 5×10^6 (unité arbitraire). En dessous de cette valeur il semble que le flux affiché par la camera est dominé par l'offset de cette dernière. Ce problème est dû au fait que la quantité de lumière réfléchiée et reçue par une des deux caméras est très faible. On sait donc que cette faible quantité est comprise entre 0 et la valeur limite $((I_{//})_{\text{lim}} = 5 \times 10^6)$ qu'on a définie à partir des images reçues sur tous les angles. On déduit alors :

$$\text{Quand } I_{//} < (I_{//})_{\text{lim}} \quad \text{on a } 0 \leq I_{//} \leq I_{\text{lim}} . \quad (\text{Equation 5.5})$$

On considère alors que la polarisation de chaque image est comprise entre :

$$\frac{I_{\perp} - (I_{//})_{\text{lim}}}{I_{\perp} + (I_{//})_{\text{lim}}} \leq P \leq 100\% \quad (\text{Equation 5.6})$$

5.3.1.3 Courbes de polarisation et de radiances obtenues par suie(1,5)

La figure 71 et la figure 72 représentent les courbes de polarisation et de radiance produites par l'échantillon suie(1,5) comparées à celles produites par un modèle utilisant la théorie de Mie pour des particules de $3,74 \mu\text{m}$ de diamètre et un indice de réfraction de $1,7 - 0,6i$ avec un dispersion en taille de 1,01 (Figure 70) Le mélange de différents diamètres dans

la fiole lors des mesures comme discuté dans le paragraphe précédent, plus la morphologie des suies très complexe, rend inconsistant la comparaison de la courbe mesurée avec le modèle de Mie.

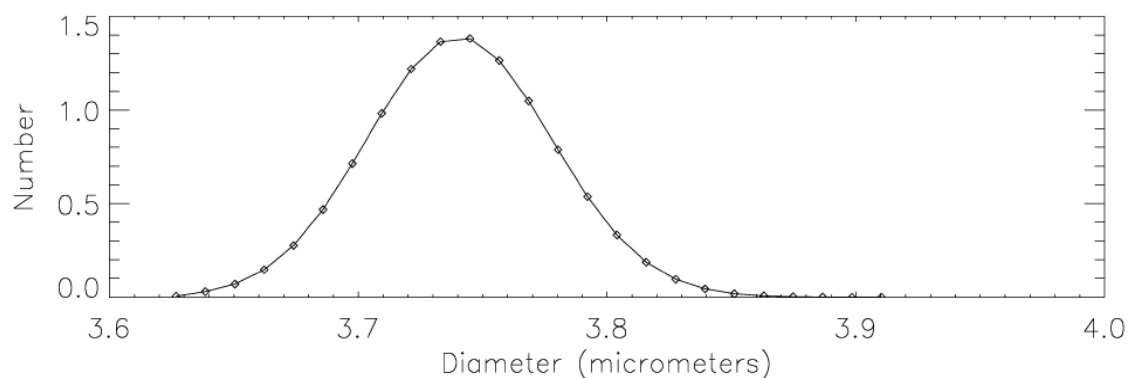


Figure 70 : Granulométrie pour des particules de 3,74 μm de diamètre et une distribution en taille de 1,01

La courbe de radiance (figure 72) semble donner une tendance acceptable par rapport au modèle ; elle diminue jusqu'à atteindre un minimum autour de 80° puis elle montre légère augmentation qui est plus prononcée au delà de 150° d'angle de diffusion.

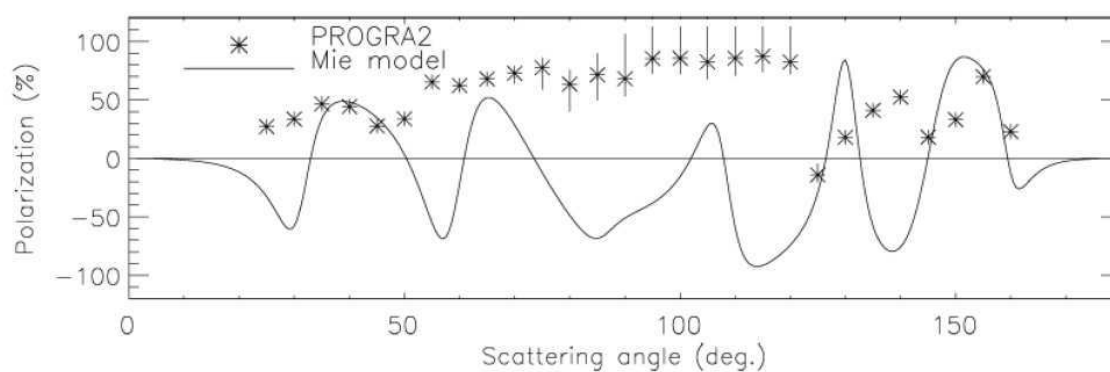


Figure 71 : Courbe de polarisation en fonction de l'angle de diffusion produite par suie(1,5) comparée à un modèle de Mie

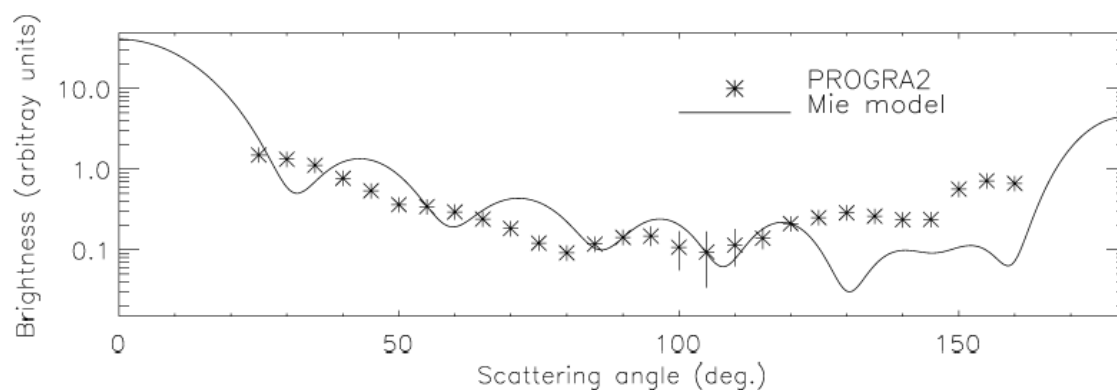


Figure 72 : Courbe de radiance en fonction de l'angle de diffusion produite par suie(1,5) comparée à un modèle de Mie

5.3.1.4 Courbes de polarisation et de radiance obtenues par suie(1,2)

La figure 74 et la figure 75 représente les courbes de polarisation et de radiance produites par l'échantillon suie(1,2) comparées à celles produites par un modèle utilisant la théorie de Mie pour des particules de $3\text{ }\mu\text{m}$ de diamètre et un indice de réfraction de $1,7 - 0,56i$ la distribution en taille étant de 1,03 (figure 73).

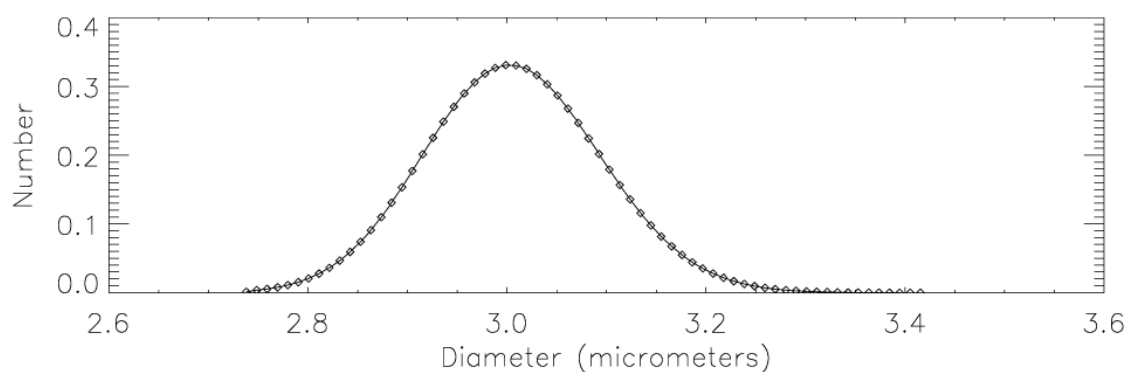


Figure 73 : Granulométrie pour des particules de $3\text{ }\mu\text{m}$ de diamètre et une distribution en taille de 1,03

On remarque que pour des valeurs de radiance relativement importantes présentes sur la figure 75 à des petits angles de diffusion, les valeurs de polarisations correspondantes à ces angles sont en bon accord avec la courbe produite par le modèle de Mie. Pour les faibles valeurs de radiance, les mesures de polarisation sont quasiment impossibles à obtenir (valeurs trop dispersées), ce qui donne la limite de détection de PROG2.

Le fait d'obtenir un accord entre la mesure et les calculs théoriques en considérant des particules bien plus grosses que celles produites par le générateur de suies pourrait indiquer que les suies se sont agrégées dans la fiole avant le commencement et durant les mesures.

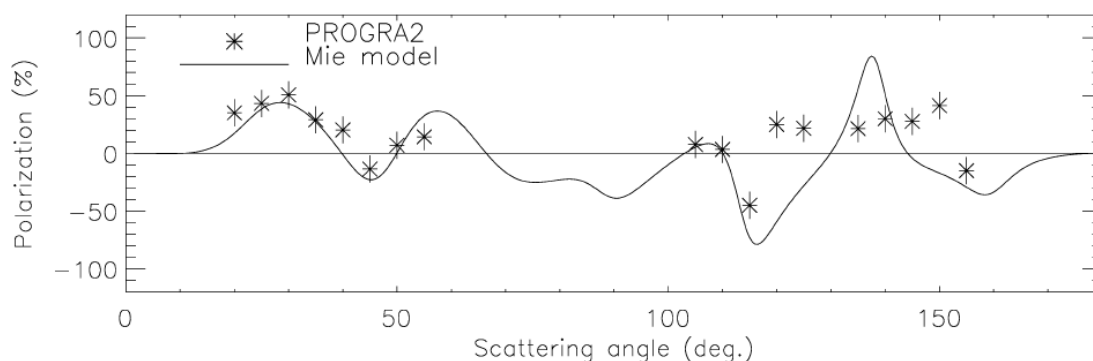


Figure 74 : Courbe de polarisation en fonction de l'angle de diffusion produite par suie(1,2) comparée à un modèle de Mie

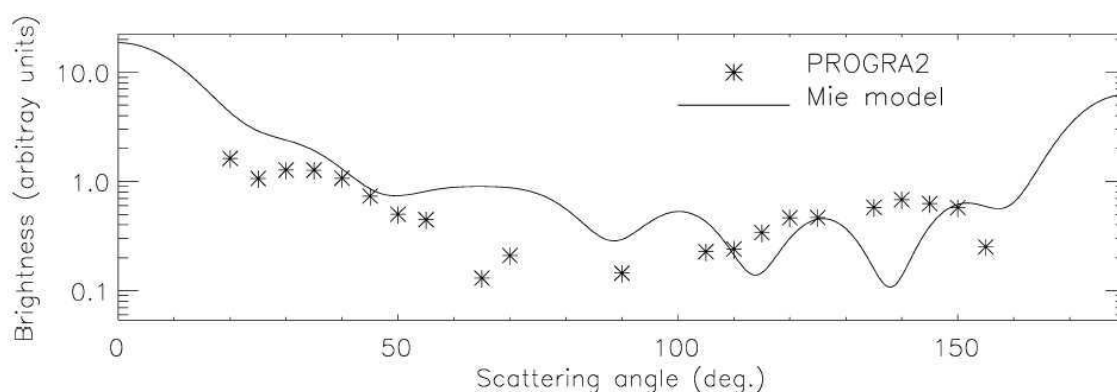


Figure 75 : Courbe de radiance en fonction de l'angle de diffusion produite par suie(1,2) comparée à un modèle de Mie

5.3.1.5 Courbes de polarisation et de radiance obtenues par suie(1)

La figure 77 et la figure 78 représentent les courbes de polarisation et de radiance produites par l'échantillon suie(1) comparées à celles produites par un modèle utilisant la théorie de Mie pour des petites particules (avec un indice de réfraction de $1.57 - 0.56i$). Cet échantillon possède le plus faible diamètre médian des agglomérats (voir figure 56) comparé aux autres échantillons ainsi que la plus faible concentration en particules. Il provoque des valeurs de polarisations très élevées pour les angles moyens et des plus basses valeurs aux angles extrêmes et semble diffuser dans le régime de Rayleigh. Ainsi l'agglomération même

si elle existe dans ce cas, le diamètre des particules reste faible comparé à la longueur d'onde et les oscillations de Mie ne sont pas évidentes.

La courbe de radiance présentée dans la figure 78 montre une tendance de la courbe : la radiance est descendante et atteint son minimum vers 100° d'angle de diffusion, puis elle est très légèrement ascendante.

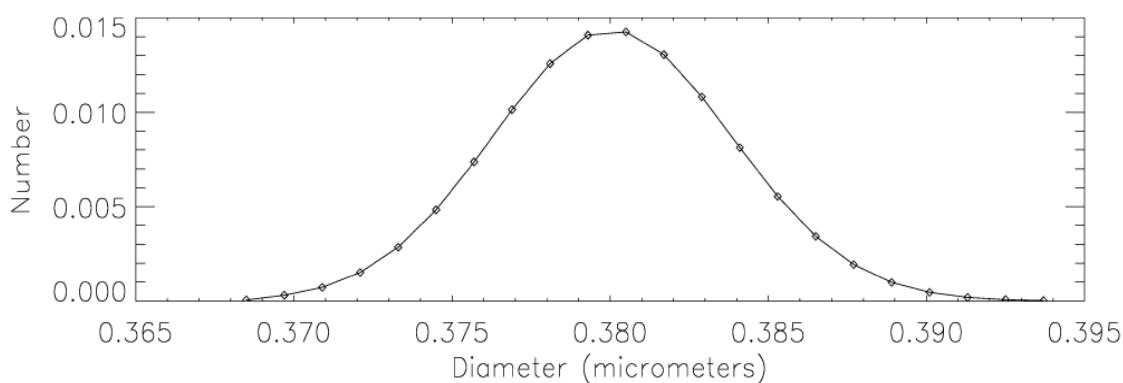


Figure 76 : Granulométrie pour des particules de $0,38 \mu\text{m}$ de diamètre et une distribution en taille de 1,01

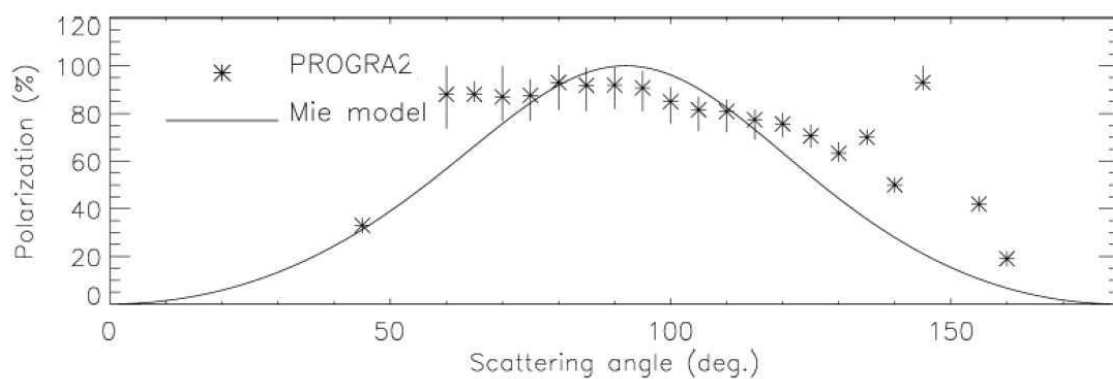


Figure 77 : Courbe de polarisation en fonction de l'angle de diffusion produite par suie(1) comparé à un modèle de Mie

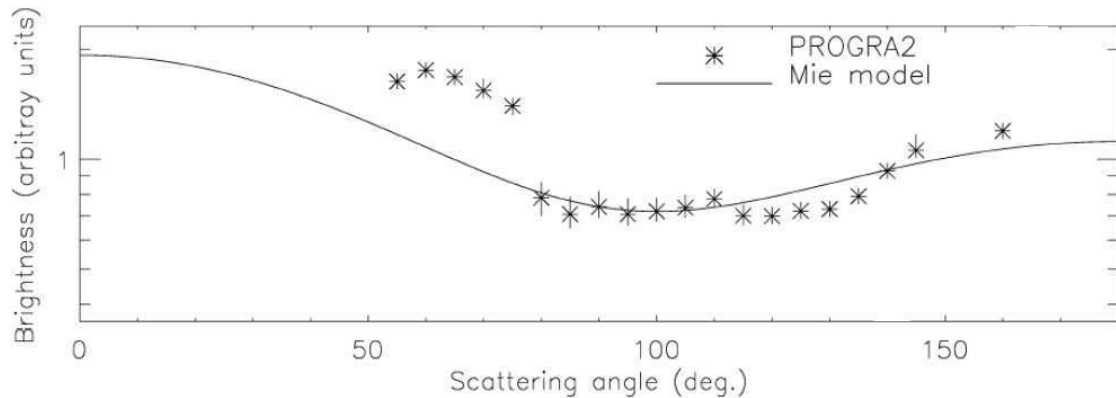


Figure 78 : Courbe de radiance en fonction de l'angle de diffusion produite par suie(1,2) comparée à un modèle de Mie

Pour tenter d'expliquer l'accord entre les valeurs de polarisation et de radiance sur certains angles d'un ensemble d'agglomérats de suies de petite taille avec les calculs théoriques de diffusion de Mie, nous pourrions proposer en première approximation qu'un nuage de petites particules de suie avec des formes diverses et orientées de façon aléatoire peut être assimilé à un ensemble de particules sphériques. Dans ce cas l'écart à la sphéricité semble être moins contraignant que pour des grosses particules prises isolément. Il convient de citer que pour la validation des mesures de suies détectées par MicroRADIBAL, le modèle de Mie était utilisé en considérant des particules sphériques de 2 μm de diamètre minimum et un indice de réfraction de $1,75 + 0,43i$ (Renard et al., 2008). Les auteurs expliquent l'accord trouvé par le fait que les petites particules de suies considérées globalement peuvent agir comme une plus grosse particule quasi-sphérique.

Finalement PROGRA2 est capable de donner des valeurs de polarisation produites par des particules de suies de très petite taille (de l'ordre de 100 nm) assez compatible avec un modèle de Mie. Notons que la caméra de référence est moins sensible que les autres caméras et le flux réfléchi par ces particules n'est pas détecté ce qui fait que les valeurs de radiance montrées dans les figures 72, 75 et 78 ne sont pas normalisées par rapport au flux à 90°. Pour plus d'investigation sur ce type de particules il s'avèrera important de remplacer la caméra de référence par une autre ayant plus de sensibilité.

5.3.2 Résultats des propriétés optiques des suies produites dans une chambre de combustion

Dans ce qui suit les suies étudiées ont des diamètres de l'ordre de quelques μm jusqu'à quelques dizaines de μm . La comparaison avec le modèle de Mie devient maintenant impossible à cause de la taille très élevée des suies ; l'expérimentation est le seul moyen d'étudier les propriétés optiques de tels échantillons.

Comme mentionné dans le chapitre 4 la réponse optique des échantillons dépend des conditions de mesures (échantillon déposé en surface et échantillon en lévitation). Pour bien documenter les propriétés optiques des suies, des mesures sous différentes conditions sont nécessaires. Nous commençons par le milieu le plus épais, c'est-à-dire des échantillons déposés en surface et tassés, puis nous continuerons par des échantillons déposés en surface et saupoudrés, un épais nuage d'échantillon en lévitation, un ensemble complet d'échantillon en lévitation (mais moins épais) et nous finirons par les particules les plus petites de l'échantillon en lévitation.

5.3.2.1 Effet de support portant l'échantillon étudié en surface sur la polarisation et la radiance

Avant d'étudier les courbes de polarisation et de radiance produites par les suies déposées en surface il est important d'évaluer l'effet du support qui porte les échantillons. Dans cette partie on présente les courbes de polarisation et les courbes de radiance obtenue par un support vide et avec deux épaisseurs différentes de suie déposées sur le même support: 0,5 μm et 3 μm , dans le but d'évaluer l'effet de support montré dans la photo de la figure 79.



Figure 79 : Photo du support

5.3.2.2 Courbes de polarisation

La Figure 80 montre la courbe de polarisation obtenue à 632,5 nm avec le support vide (aucun échantillon déposé sur le support), celle obtenue avec des suies déposées sur le support et formant une épaisseur de 0,5 μm et celle obtenue avec les mêmes suies déposées sur le support et formant une épaisseur de 3 μm

La courbe obtenue avec le support vide est descendante. Elle est positive avant 50° d'angle de diffusion puis devient négative ensuite. Les amplitudes maximales de polarisation pour les 2 autres courbes sont obtenues entre 70 ° et 80 ° d'angle de diffusion. L'amplitude la plus élevée est obtenue par les suies formant une faible épaisseur de 0,5 μm . Pour une épaisseur plus importante (3 μm) l'amplitude est inférieure à celle obtenue avec la faible épaisseur d'environ 20%.

Le support comme le montre la figure 79 représente une surface rugueuse. Les premières particules de suies éjectées sur cette surface vont se déposer sur les trous rendant ainsi la surface moins rugueuse mais pas encore lisse. L'effet d'ombre intervient sur les valeurs de polarisation donnant ainsi des valeurs plus importantes en polarisation que dans un cas d'une surface lisse (ou plus lisse). Plus l'épaisseur est importante, plus on se rapproche d'une surface lisse et l'effet d'ombre est moins détecté. En effet Grynko et al., 2006 montrent par des calculs théoriques et expérimentaux que les particules isolées (sans effet d'ombre) provoquent des valeurs de degré de polarisation nettement plus faibles que les particules partiellement ombragées. Ces dernières produisent aussi une valeur maximale de polarisation déplacée vers les petits angles de diffusion.

Les mêmes mesures sont réalisées avec une longueur d'onde différente; 543,5 nm comme le montre la figure 81. L'ordre des courbes est confirmé, les valeurs les plus élevées sont également obtenues avec la faible épaisseur correspondant au même angle (entre 70 ° et 80 °). Les valeurs sont légèrement inférieures à celle obtenue à 632,8 nm.

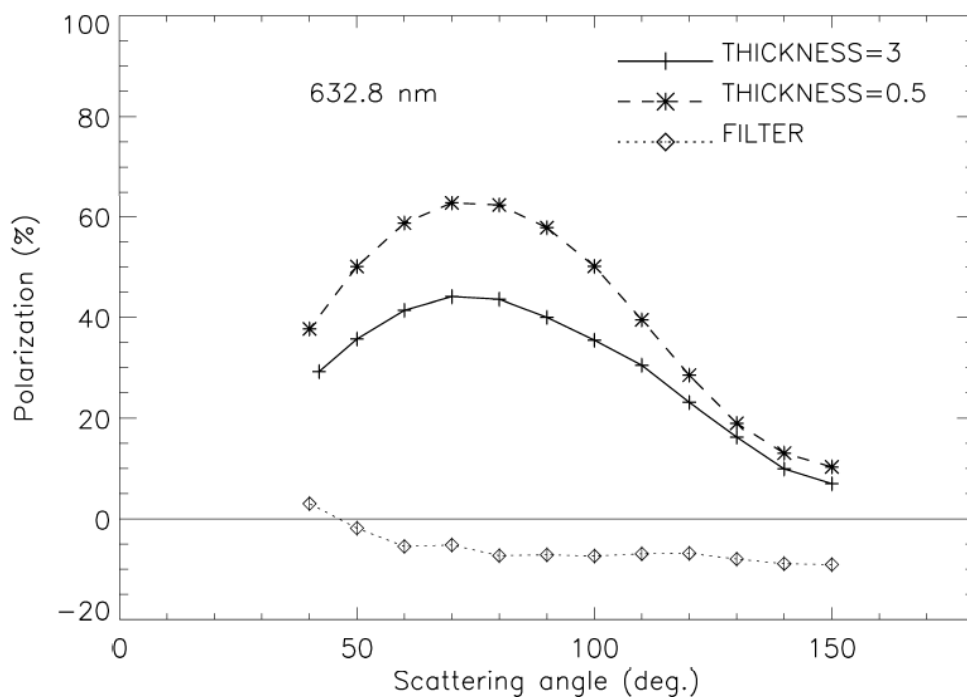


Figure 80 : Courbes de polarisation obtenues par le support vide, des suies déposées sur le support et formant une épaisseur de : 0,5 μm et les mêmes suies formant une épaisseur de 3 μm . $\lambda=632,8$ nm

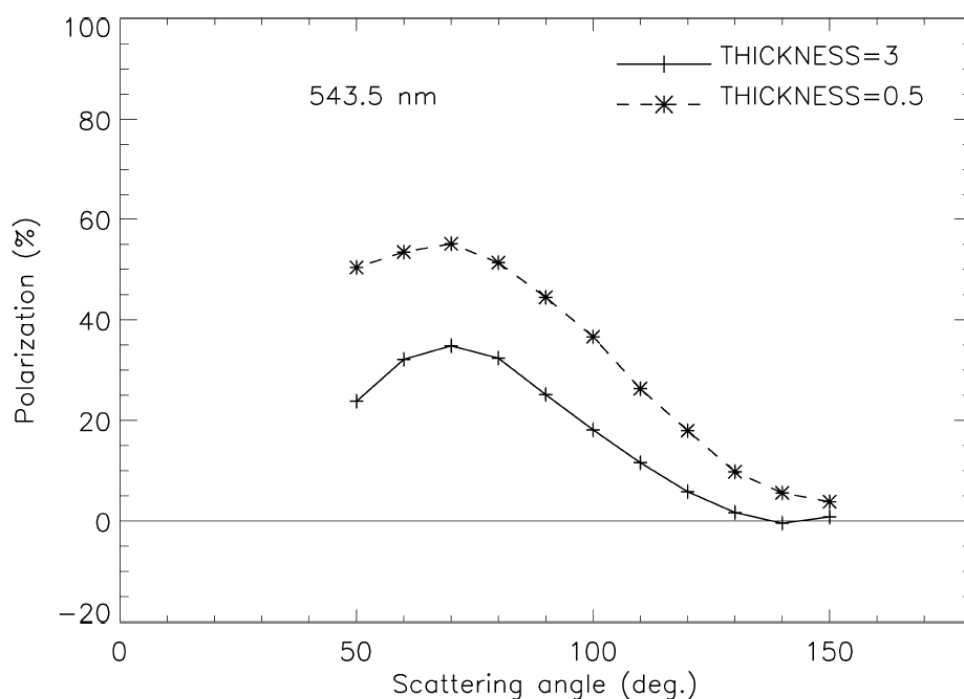


Figure 81 : Courbes de polarisation obtenues par le support vide, des suies déposées sur le support et formant une épaisseur de : 0,5 μm et les mêmes suies formant une épaisseur de 3 μm .

5.3.2.3 Courbes de radiance

La Figure 82 montre la courbe de radiance obtenue à 632,5 nm avec le support vide, celle obtenue avec des suies déposées sur le support et formant une épaisseur de 0,5 μm et celle obtenue avec les mêmes suies déposées sur le support et formant une épaisseur de 3 μm . Les courbes de radiance produites par les deux épaisseurs différentes sont quasiment égales pour les angles de diffusion inférieurs à 100°. Après cet angle la courbe de radiance produite par l'épaisseur la plus élevée montre des valeurs légèrement inférieures à celles produites par l'autre épaisseur. Cette légère différence est due à l'absorption plus importante par une épaisse couche de particule de suies (particules très absorbantes) par rapport à une couche mince.

Les mêmes mesures sont réalisées avec une longueur d'onde différente; 543,5 nm comme le montre la figure 83. La courbe de radiance produite par l'épaisseur la plus élevée montre une pente de croissance inférieure à celle produite par la petite épaisseur due à l'augmentation de l'absorption.

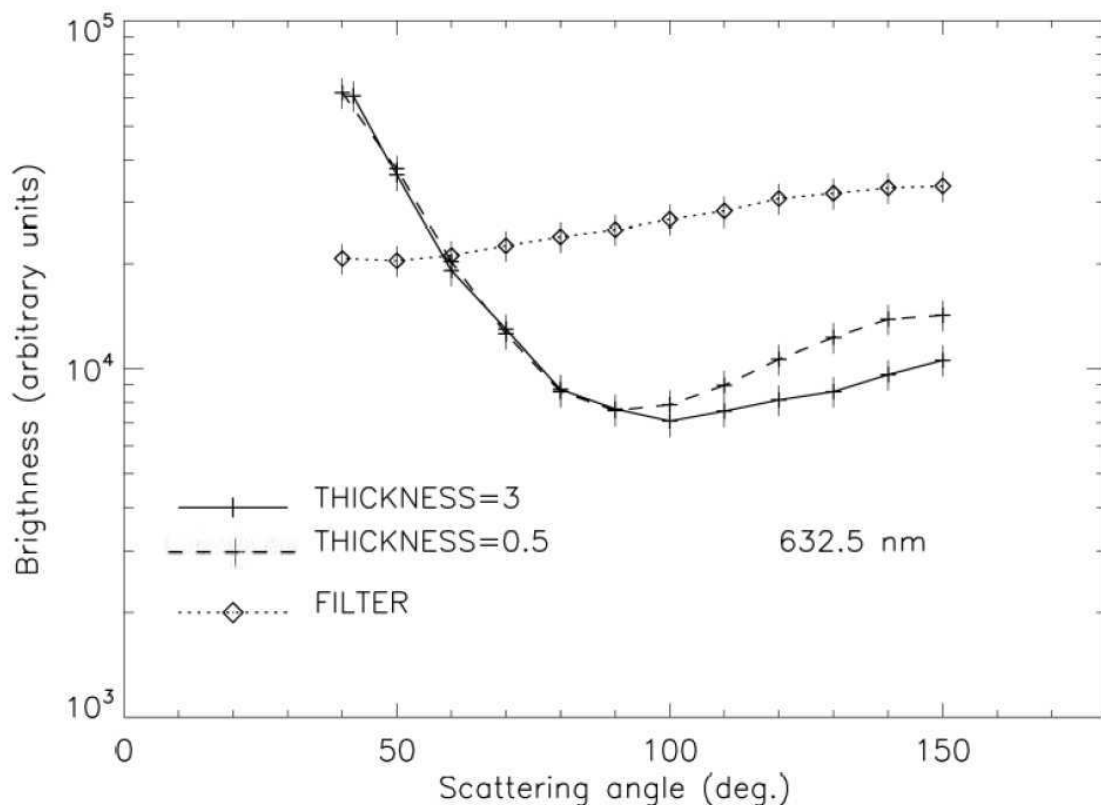


Figure 82 : Courbes de radiance obtenues par le support vide, des suies déposées sur le support et formant une épaisseur de : 0,5 μm et les mêmes suies formant une épaisseur de 3 μm . $\lambda=632,8$ nm

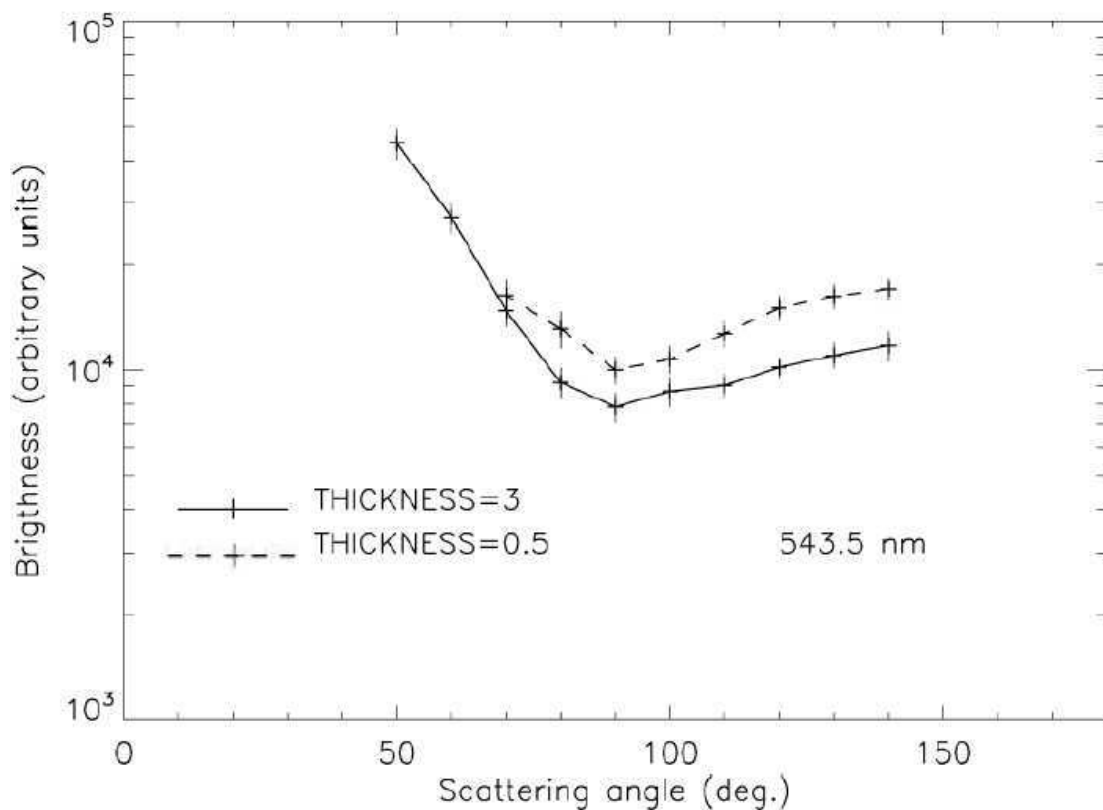


Figure 83 : Courbes de radiance obtenues par le support vide, des suies déposées sur le support et formant une épaisseur de : 0,5 μm et les mêmes suies formant une épaisseur de 3 μm . $\lambda=543,5 \text{ nm}$

L'épaisseur des échantillons étalés en surface influe alors sur les valeurs de polarisation et de radiance. Il est important de pouvoir quantifier une épaisseur à partir de laquelle la réponse optique de ce type d'échantillon se stabilise. Il pourrait intuitivement sembler qu'une épaisseur de quelques grains pourrait suffire, mais ce travail devra être poursuivi par l'équipe de PROGRA2. D'autre part, on pourrait proposer de nouveaux travaux dans le but de pouvoir déduire l'épaisseur d'une couche à partir de sa réponse optique.

Dans ce qui suit pour les études des courbes de polarisation et des courbes de radiance des particules déposées en surface une épaisseur entre 3 mm et 5 mm (dépendant de la quantité d'échantillon) a été utilisée par prudence, et les échantillons étaient étalés d'une façon à avoir une surface lisse pour éliminer l'effet du support et l'effet d'ombre.

5.3.2.4 Courbes de polarisation des échantillons déposées en surface

La figure 84 présente les courbes de polarisation à $\lambda = 632,8$ nm, pour les suies déposées en surface. Dans ce cas, les échantillons sont dits saupoudrés car ils ont été simplement déposés sur une surface, sans être tassés. Les deux échantillons PMMA1 et PMMA2 montrent un comportement similaire pour les courbes de polarisation avec une amplitude d'environ 72%. Les échantillons toluene1 et toluene2 montrent également un comportement similaire pour les courbes de polarisation avec une amplitude d'environ 52%. Toutes les courbes montrent des valeurs négatives pour les grands angles de diffusion avec un angle d'inversion autour de 158 °.

Les amplitudes les plus faibles sont produites par les échantillons ayant la dimension fractale la plus élevée. Ainsi les particules sont moins aérées et plus compactes. Ce qui induit, en les déposant en surface, du vide entre les agglomérats plus important que ce qui est obtenu par des agglomérats de dimension fractale plus faible. En créant du vide entre les agglomérats on a une diffusion multiple plus importante engendrant ainsi des faibles valeurs de polarisation. Cela a été vérifié dans la figure 85 qui montre les valeurs de polarisation produites par les échantillons issus de PMMA en les tassant. Ces valeurs sont plus élevées de 10% que celles montrées en figure 84.

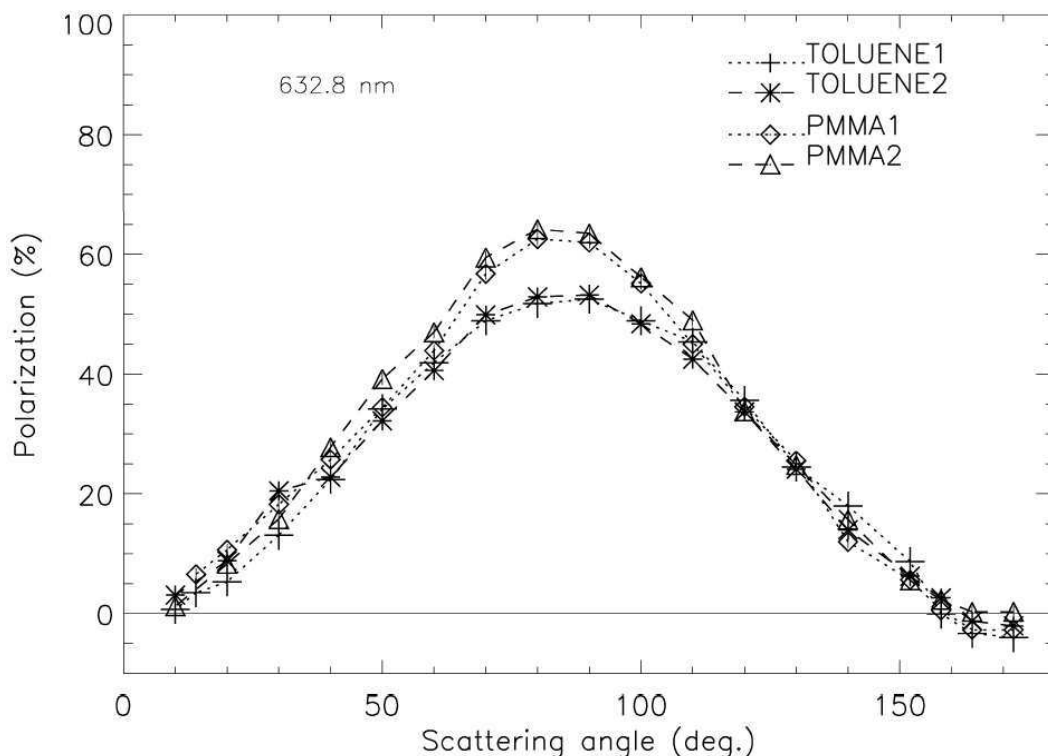


Figure 84 : Courbes de polarisation à $\lambda = 632,8$ nm produites par les échantillons de suies déposées en surface

La différence entre les courbes produites par des suies saupoudrées et des suies tassées sur une surface sont en bon accord avec les mesures précédentes faites avec les deux échantillons de noir de carbone où les valeurs de polarisation montrent que l'amplitude produite par le carbone noir tassé est supérieure à celle produite par le carbone noir saupoudré (Hadamcik et al., 2005).

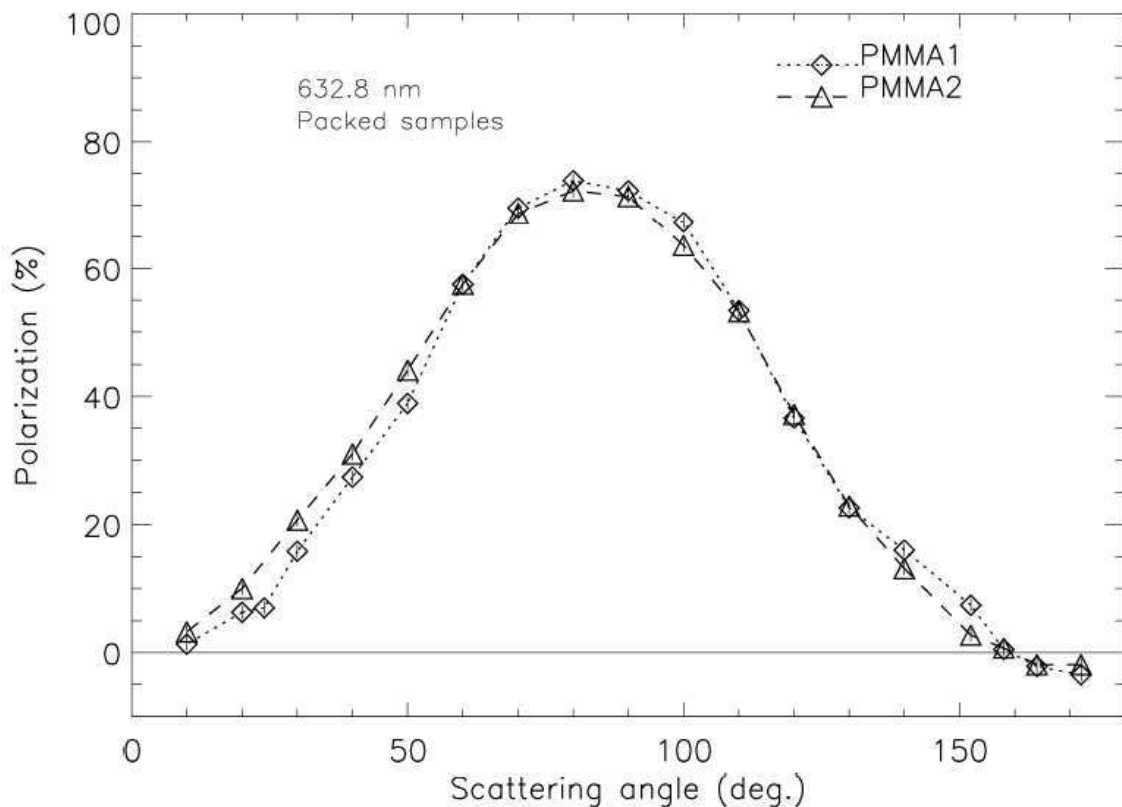


Figure 85 : Courbes de polarisation à $\lambda = 632,8$ nm produites par les échantillons de suies tassées en surface

5.3.2.5 Courbes de polarisation produites par les plus petits agglomérats de suies en lévitation

La figure 86 présente la variation de la polarisation produite par de petits agglomérats de quelques μm de diamètre en fonction de l'angle de diffusion. Ce travail est fait en utilisant les images enregistrées 30 secondes après l'injection d'azote, où seuls les petits agglomérats restent en lévitation. En effet après 30 secondes le nombre de particules qui couvre au moins 2 pixels est bien plus faible que juste après l'injection. Les quelques particules qui couvrent plus que 2 pixels présentent un flux surfacique très faible par rapport celui d'une grande

particule juste après l'injection. Un faible flux surfacique traduit en fait une juxtaposition fortuite de petites particules ne pouvant être résolues optiquement.

La figure 86 montre que les deux échantillons produits avec un débit de ventilation qui est relativement élevé, PMMA1 et toluene1, produisent un comportement similaire et les valeurs de polarisation les plus élevées. Les deux autres échantillons, PMMA2 et toluene2, obtenus par un taux de ventilation plus faible, produisent des valeurs de polarisation inférieures. Le Tableau 7 montre que, pour deux échantillons issus du même combustible, un débit de ventilation élevé entraîne une diminution de diamètre des particules primaires. L'échantillon de suie produisant la plus grande amplitude de polarisation dans la figure 86 est le PMMA1 échantillon qui a le plus faible diamètre de particules primaires (42 nm). La plus faible amplitude est produite par toluene2 qui a le diamètre le plus élevé de particules primaires (70 nm). L'amplitude de la polarisation de la suie semble diminuer lorsque le diamètre des particules primaires augmente.

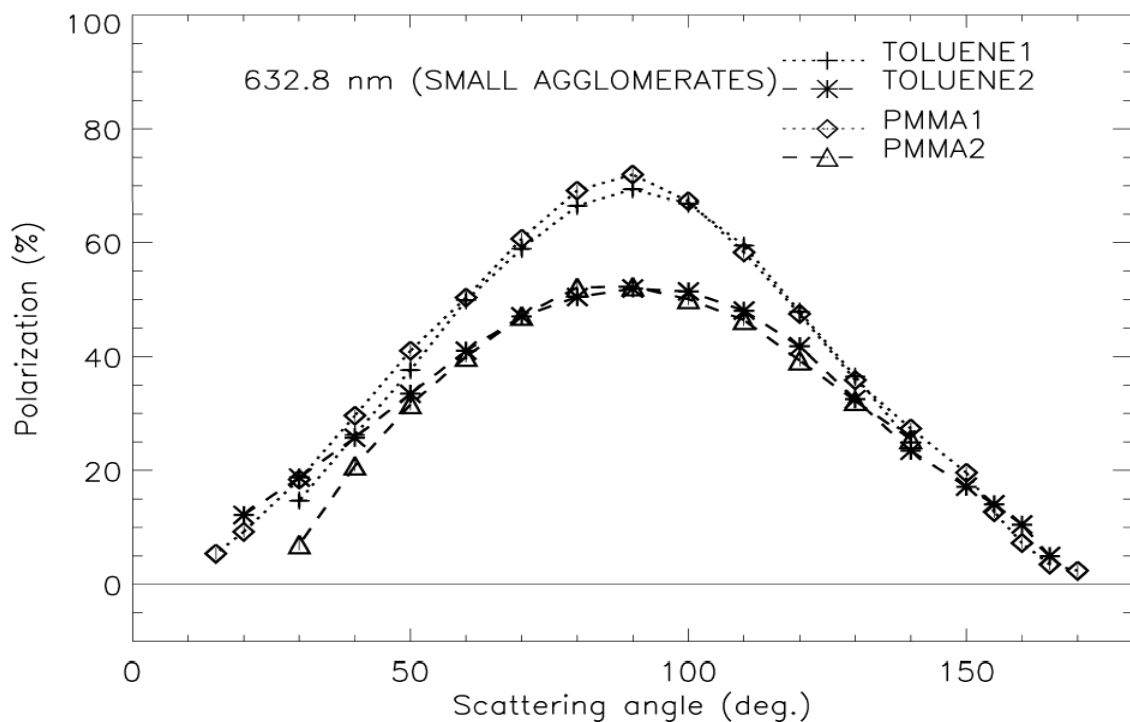


Figure 86 : Courbes de polarisation à $\lambda = 632,8$ nm produite par les petits agglomérats de suie en lévitation.

5.3.2.6 Courbes de polarisation produites par les agglomérats de suies de toutes les tailles en lévitation

La distribution en taille des particules de suies qui peuvent être trouvées dans la stratosphère est inconnue. Il est donc intéressant d'étudier les valeurs de polarisation produites par l'ensemble complet des échantillons de suies en lévitation. La Figure 87 présente la variation de la polarisation produite par des agglomérats de suie en lévitation en fonction de l'angle de diffusion à $\lambda = 632,8$ nm. Ces mesures ont été effectuées environ une seconde après l'injection d'azote afin que l'ensemble des agglomérats de quelques μm de diamètre jusqu'à quelques dizaines de μm soit en lévitation. Le terme ensemble complet des agglomérats utilisé ici indique que les agglomérats en lévitation sont de diamètres différents (de quelques μm à quelques dizaines de μm) et non qu'il y aurait une grande quantité d'agglomérats qui provoquerait un épais nuage de suies.

Une différence évidente est constatée entre les amplitudes de polarisation obtenues dans ce cas qui sont inférieures à celles présentées dans la figure 86 pour les petits agglomérats. L'amplitude de polarisation la plus importante est produite par l'échantillon toluene1, suivie d'un comportement similaire de la polarisation produite par toluene2 et PMMA1. La plus faible amplitude de la polarisation est obtenue avec PMMA2. Toutes les amplitudes maximales sont obtenues pour des angles de diffusion compris entre 80° et 90° .

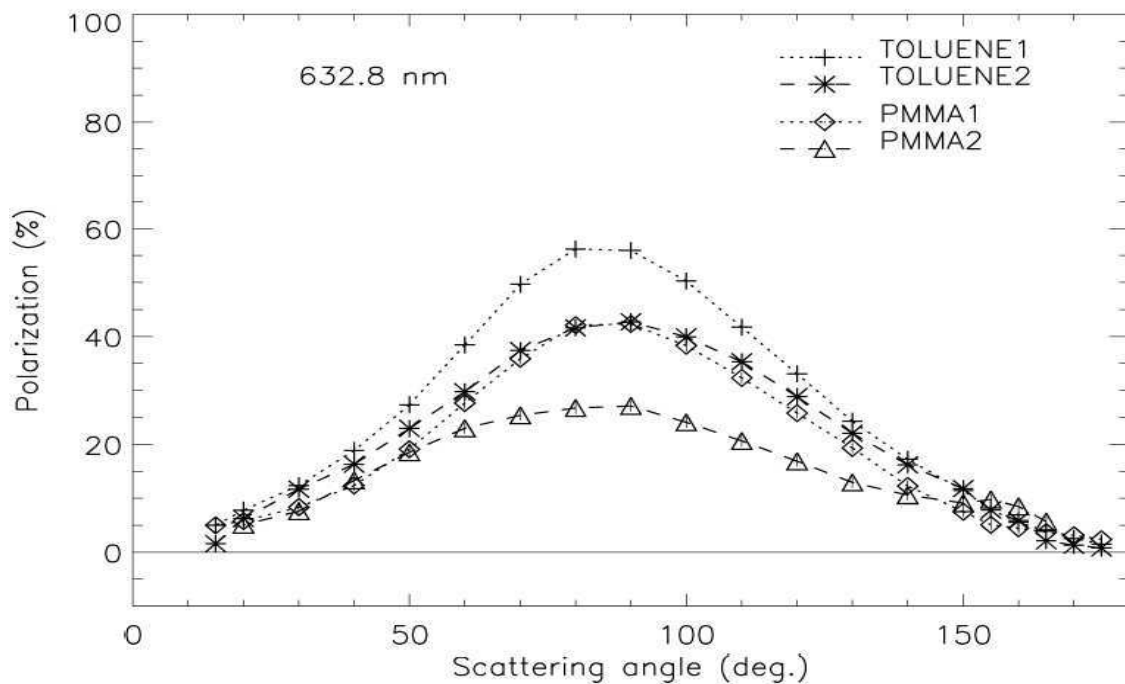


Figure 87 : Courbes de polarisation à $\lambda = 632,8$ nm produite par l'ensemble complet d'agglomérats de suies en lévitation.

5.3.2.7 Effet de taille de gros agglomérats de suie sur la polarisation

Il est nécessaire d'étudier l'effet de taille des agglomérats de suie sur la polarisation. Pour les agglomérats de diamètre supérieur à 20 μm le système d'imagerie permet de donner la polarisation produite par un agglomérat en lévitation en fonction de son diamètre pour les angles de diffusion entre 40° à 150°. En moyennant la polarisation sur un intervalle de taille de 50 μm , et en traçant un ajustement exponentiel on peut déduire la tendance de la polarisation en fonction de la taille des agglomérats à chaque angle de diffusion entre 40° et 150°.

La Figure 88 présente l'effet de la taille des agglomérats sur la polarisation moyennée sur les angles de diffusion de 80° jusqu'à 100° suivant un ajustement (fit) exponentiel pour les échantillons de suie. La polarisation produite par les quatre échantillons de suie augmente avec le diamètre. Cet effet de taille où les grands agglomérats floconneux et absorbants produisent des valeurs de polarisation qui augmentent avec le diamètre a déjà été détecté avec ce type de particules (Hadamcik et al., 2006 ; 2009b).

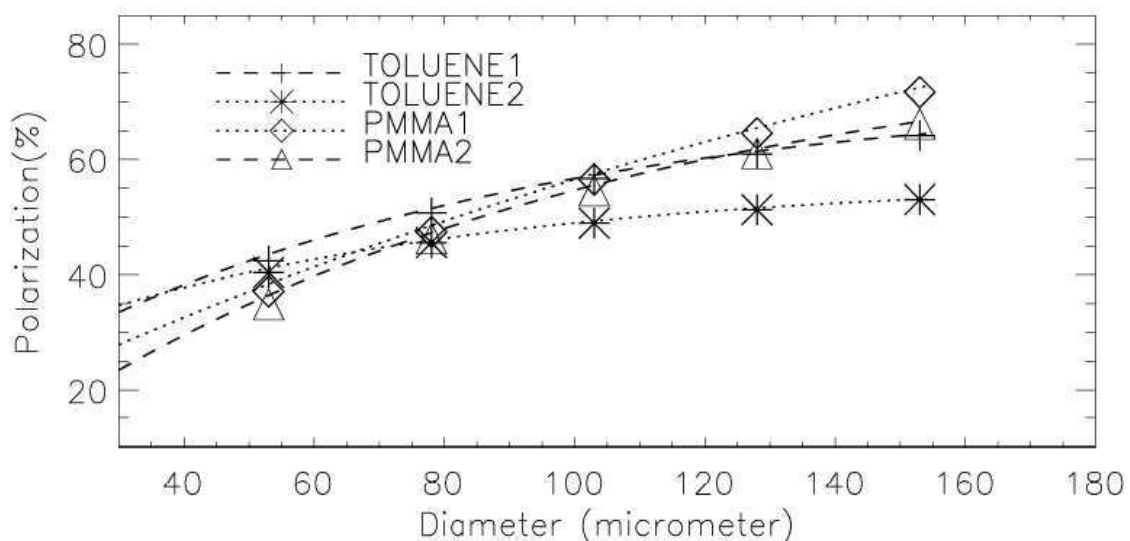


Figure 88 : Effet de taille des agglomérats sur la polarisation suivant un ajustement exponentiel pour les quatre échantillons de suie.

La normalisation des courbes présentées dans la figure 88 à 52 μm (figure 89) montre une plus forte augmentation de la polarisation pour les échantillons issus de PMMA, ce qui pourrait être due à des valeurs inférieures de dimensions fractales de ces échantillons donnant ainsi des particules moins compactes et plus aérées.

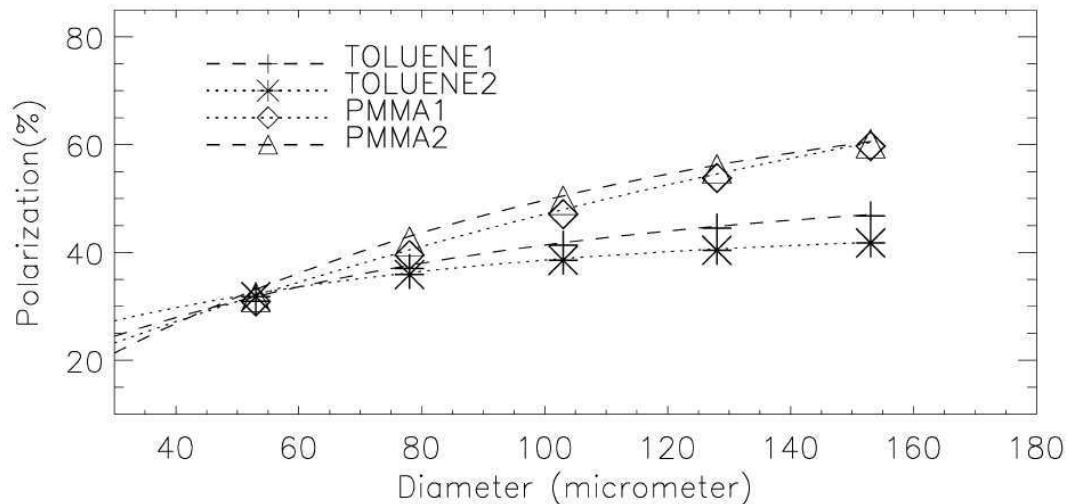


Figure 89 : Effet de la taille des agglomérats sur la polarisation suivant un ajustement exponentiel pour les quatre échantillons de suie. Les courbes sont normalisées à 52 μm de diamètre.

Ainsi, le pourcentage d'agglomérats en fonction de leurs diamètres croissant peut biaiser l'analyse des mesures. La Figure 90 montre le pourcentage d'agglomérats normalisés sur le nombre total compté par le système d'imagerie en fonction de leurs diamètres. L'échantillon toluène1 contient le pourcentage le plus élevé des agglomérats ayant un grand diamètre (supérieur à 80 μm) et produit l'amplitude la plus élevée (figure 87). Tandis que le PMMA2 contient le pourcentage le plus élevé des agglomérats ayant un faible diamètre et produit l'amplitude la plus faible (figure 87). En conséquence, ce que nous avons présenté dans la figure 87 est la polarisation dominée par le pourcentage de gros agglomérats (supérieur à 80 μm) donnant les valeurs de polarisation plus élevées pour le Toluene1.

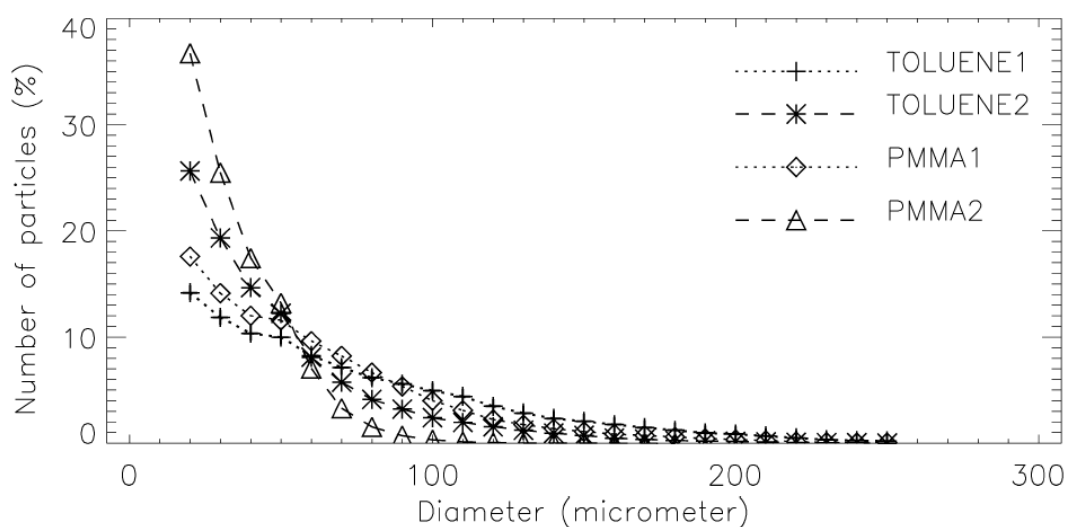


Figure 90 : Nombre des agglomérats de suie en pourcentage en fonction de leurs diamètres.

5.3.3 Courbes de polarisation produites par le noir de carbone en lévitation et effet de la taille des agglomérats

5.3.3.1 Courbes de polarisation produite par C14 et par C95 (tableau 7)

Une comparaison des courbes de polarisation produite par les échantillons de suie à celles produites par du noir de carbone est réalisée afin de documenter la différence de leurs propriétés optiques. La Figure 91 présente la dépendance de la polarisation linéaire en fonction de l'angle de diffusion produite par l'ensemble complet des agglomérats de C14 lévitant une seconde après l'injection d'azote et celle produite par les mesures faites 30 secondes après l'injection de l'azote. Le même travail a été effectué sur le C95 et est présenté sur la figure 92. A l'opposé de ce qui est obtenue avec les suies, les amplitudes dans ces 2 cas obtenues avec le C14 présentent une faible différence. Il en est de même pour les courbes produites par le C95 où la différence entre les amplitudes est quasiment nulle. Ceci peut être expliqué par le fait qu'à l'opposé des suies l'ensemble complet de noir de carbone reste en lévitation 30 secondes après l'injection ou bien les petits agglomérats de noir de carbone

Il semble, l'ensemble complet de noir de carbone reste en lévitation 30 secondes après l'injection.

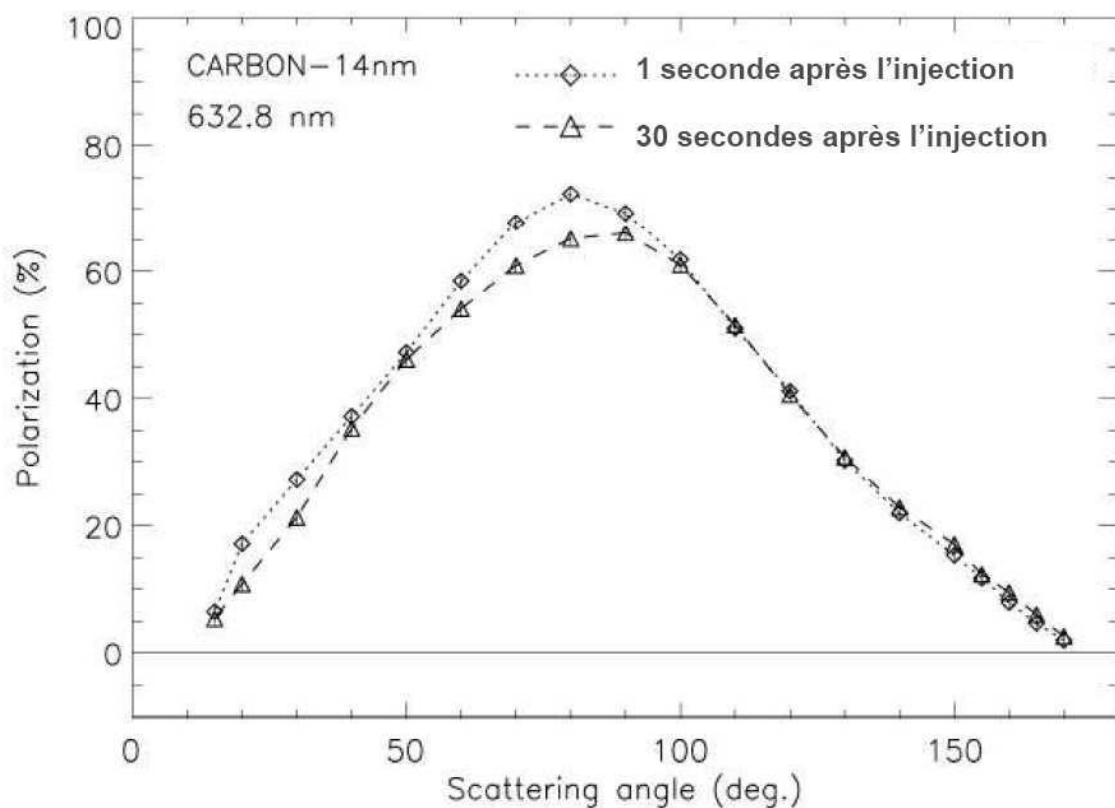


Figure 91 : Courbes de polarisation à $\lambda = 632,8$ nm produite par C14 en lévitation.

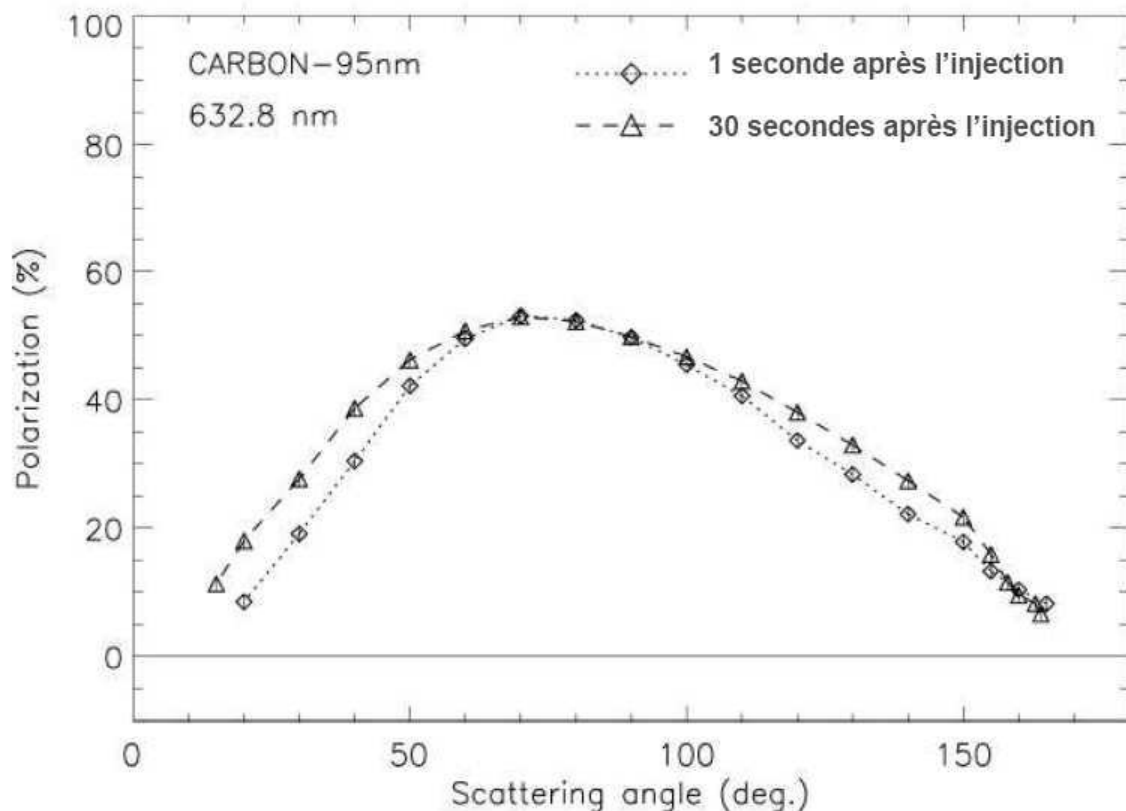


Figure 92 : Courbes de polarisation à $\lambda = 632,8$ nm produite par C95 en lévitation.

La figure 93 compare la dépendance de la polarisation avec l'angle de diffusion à $\lambda = 632,8$ nm produite par C14 et par C95 en lévitation. L'échantillon qui a le plus faible diamètre de particules primaires (14 nm) montre des valeurs plus élevées en polarisation que celui à 95 nm de diamètre. La plus grande amplitude de la polarisation est obtenue avec le C14 de; 72% à un angle de diffusion de 80° . Cette valeur est plus élevée que les amplitudes obtenues par les échantillons de suies présentées dans la figure 86. L'angle de diffusion correspondant à l'amplitude de la polarisation la plus importante produite par les échantillons de noir de carbone diminue de 80° à 70° lorsque la taille des particules primaires augmente, ce qui n'était pas le cas avec les suies présentées dans la figure 86 et la figure 87, où les angles de diffusion correspondant aux amplitudes de polarisation sont les mêmes entre les différents échantillons.

Notons que la différence entre la courbe produite par C14 (figure 86) et celle publiée précédemment dans (Hadamcik et al., 2006, 2009b) pourrait être due à une distribution de taille différente des agglomérats et / ou le vieillissement de l'échantillon, qui est aujourd'hui moins floconneux.

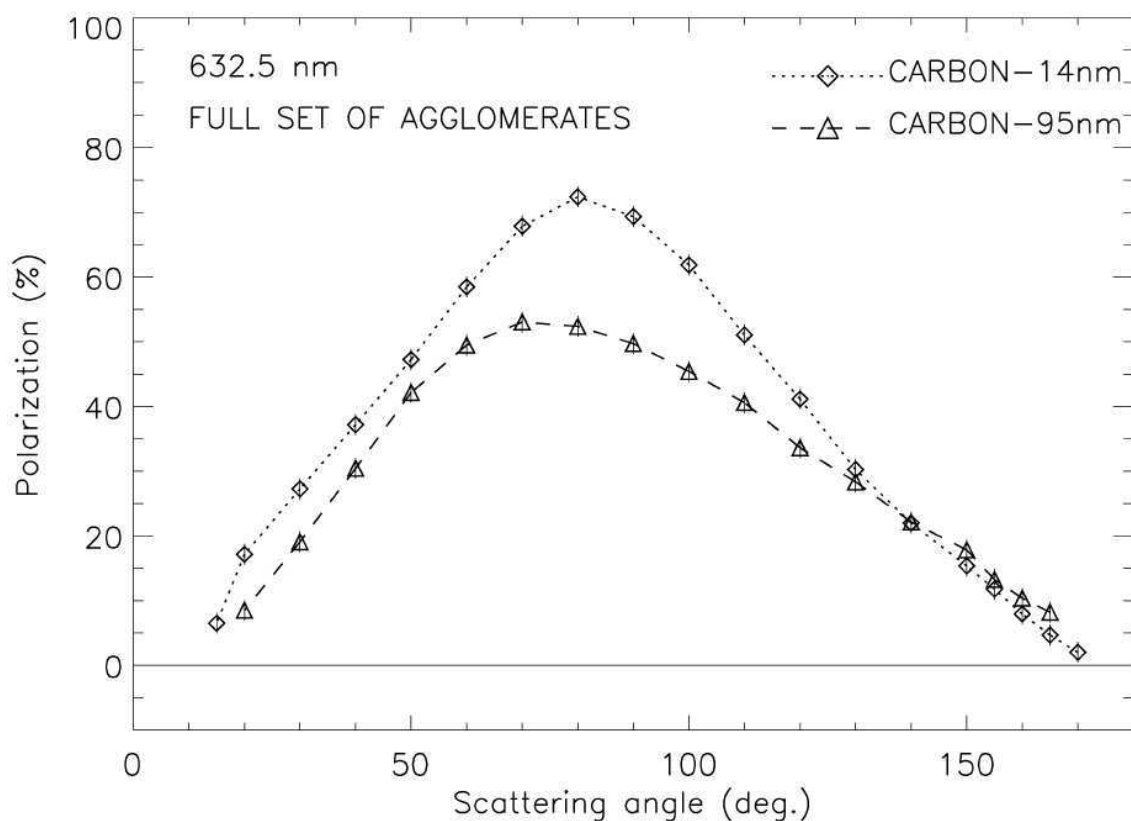


Figure 93 : Courbes de polarisation à $\lambda = 632,8$ nm produites par l'ensemble complet d'agglomérats des deux échantillons de noir de carbone: C14 et C95 en lévitation.

5.3.3.2 Effet de la taille de gros agglomérats du noir de carbone sur la polarisation

De même que pour les échantillons de suie, l'effet de la taille des agglomérats de noir de carbone sur la polarisation est étudié. La figure 94 présente l'effet de taille des agglomérats sur la polarisation moyennée sur les angles de diffusion de 80° jusqu'à 100° suivant un ajustement exponentiel pour les échantillons de suie. La polarisation produite par les deux échantillons de noir de carbone augmente avec le diamètre. L'effet de la taille semble être commun pour ce type d'agglomérats très absorbants.

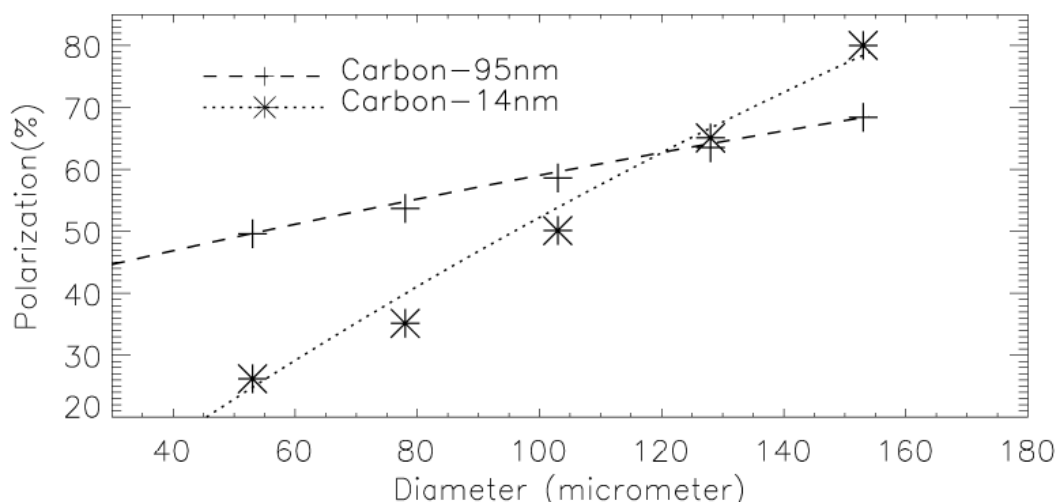


Figure 94 : Effet de taille des agglomérats sur la polarisation suivant un ajustement exponentiel pour les deux échantillons de noir de carbone

La normalisation des courbes présentées dans la figure 94 à 52 μm (figure 95) montre une différence flagrante dans l'augmentation de la polarisation en fonction du diamètre entre le C14 et le C95 ainsi qu'entre les C14 et les échantillons de suies, l'augmentation étant bien plus marquée avec les C14. Cette dernière pourrait être liée à la dimension fractale offrant différents degrés de compacité et des particules plus ou moins aérées et / ou à la faible valeur du diamètre des particules primaires de cet échantillon. Malheureusement, la dimension fractale pour les échantillons de noir de carbone n'est pas connue et plus d'investigations sur la dimension fractale seront nécessaires pour évaluer son effet.

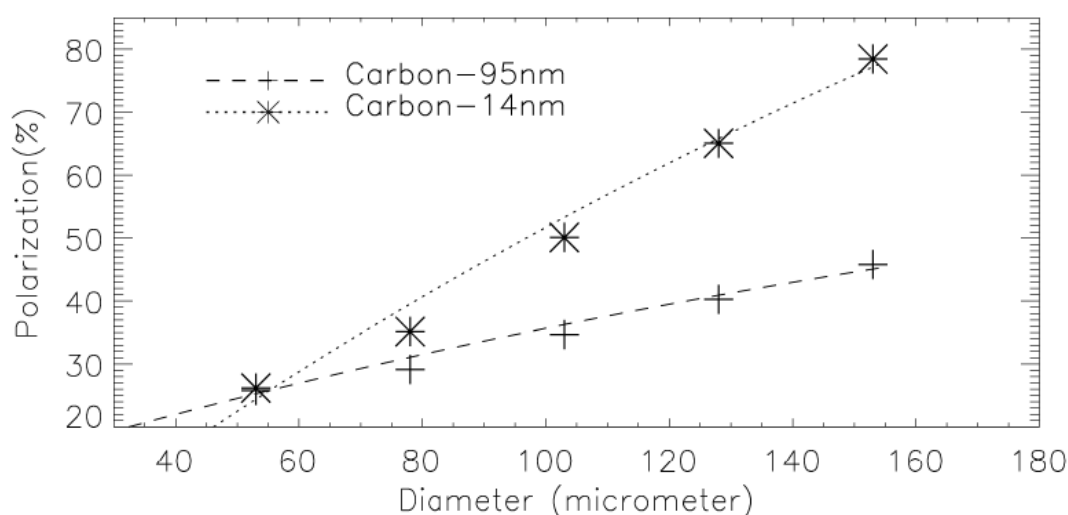


Figure 95 : Effet de la taille des agglomérats sur la polarisation suivant un ajustement exponentiel pour les deux échantillons de noir de carbone. Les courbes sont normalisées à 52 μm de diamètre.

De même que pour les échantillons de suies, les courbes de polarisation des échantillons de noir de carbone pourraient varier en fonction de la répartition (en pourcentage) des agglomérats mis en lévitation par rapport à leur diamètre. La Figure 96 montre la distribution en taille des agglomérats en lévitation obtenue avec les deux échantillons de noir de carbone. La forme des deux courbes est différente de ce qui est obtenu avec de la suie dans la figure 90. La distribution de la taille des suies est différente de la distribution de la taille du noir de carbone. Ainsi des agglomérats de noir de carbone ne peuvent pas être considérés comme une bonne approximation des suies.

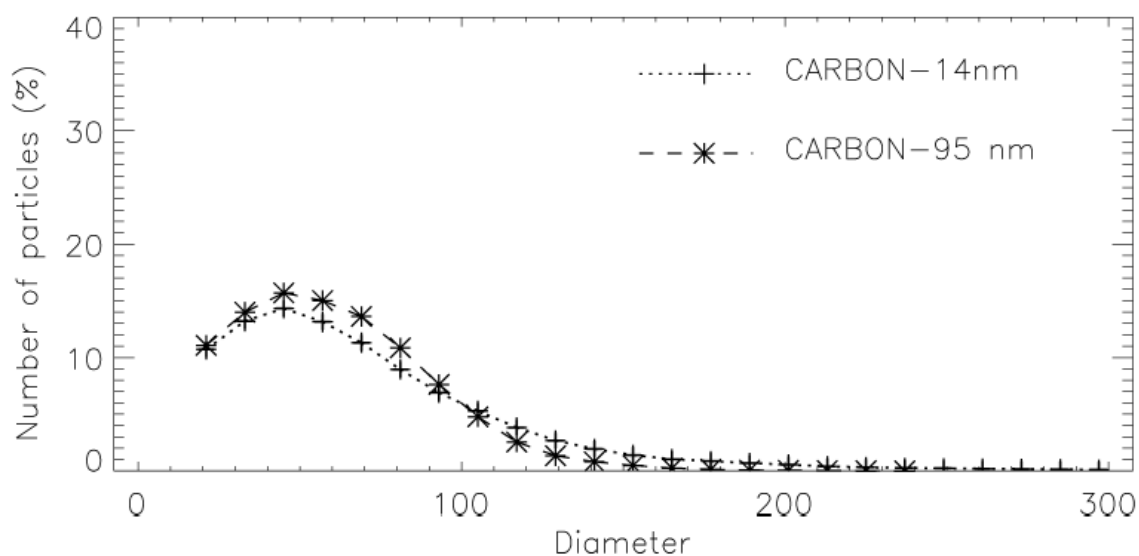


Figure 96 : Nombre des agglomérats en pourcentage de noir de carbone en fonction de leurs diamètres.

5.3.3.3 Comparaison des courbes de polarisation de C14 et C95 avec les mesures faites sur les mêmes échantillons 5 ans plus tôt

Les courbes de polarisation produites par le C14 et le C95, 5 ans plus tôt ont été faites par Hadamcik et al. (2006, 2009b) comme montré dans la figure 97. Le C14 montre une amplitude supérieure à celle obtenue dans la figure 93 de 10%. Comme discuté dans la figure 90 et la figure 96, la distribution en taille des particules en lévitation influe directement les valeurs de polarisation. Ainsi, cette augmentation peut être due à une différence en distribution en taille lors des mesures. Rappelons que le jet d'azote que l'on injecte avant les mesures est produit à partir d'un pistolet à main, ce qui peut donner des jets plus ou moins fort influençant le nombre des particules mises en lévitation. Pour minimiser ce problème, une

modification a été faite très récemment au système d'injection permettant de donner la même quantité d'azote avec la même pression lors des mesures.

D'autre part l'humidité influe sur la lévitation des particules (mettre les particules en suspension dans des conditions humides est plus compliqué que dans une ambiance sèche). De plus, les échantillons étaient exposé à l'air ambiant pendant ces années ce qui influe leurs morphologie puisque le diamètre de giration diminue avec le temps (Ouf et al., 2010).

Cette étude montre la difficulté de comparer des mesures effectuées à des périodes de temps éloignées et dans des conditions différentes pour des échantillons où la polarisation est très dépendante de la taille des grains et des agrégats. Il est donc recommander d'effectuer ces mesures avec le même protocole et dans un intervalle de temps court.

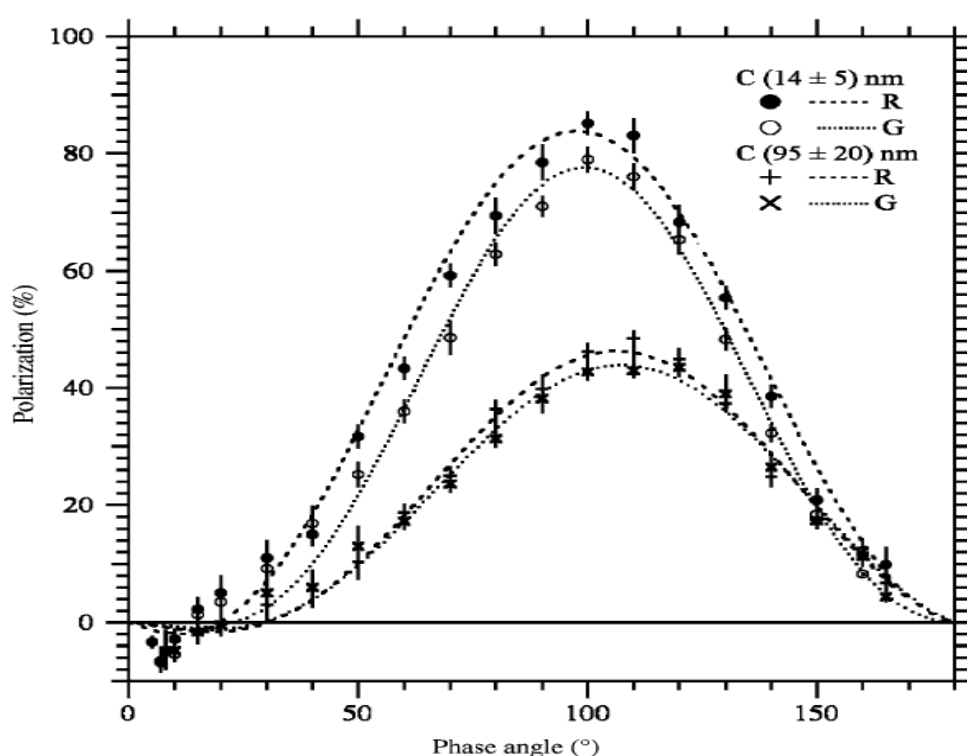


Figure 97: Courbes de polarisation en fonction de l'angle de phase produites par C14 et C95 en lévitation. Extrait de Hadamcik et al. 2006.

5.3.3.4 Effet du diamètre des particules primaires sur l'amplitude de la polarisation

La figure 98 montre l'effet du diamètre des particules primaires sur l'amplitude de polarisation obtenu à partir des 4 échantillons de suies présentés dans la figure 86 et des

échantillons de noir de carbone présentés dans la figure 93. L'amplitude de la polarisation diminue lorsque le diamètre des particules primaires augmente entre 14 nm et une valeur d'environ 50 nm. Au-delà de cette valeur, les amplitudes de la polarisation ne diminuent plus et les valeurs sont proches les unes des autres en prenant en compte de la marge d'erreur.

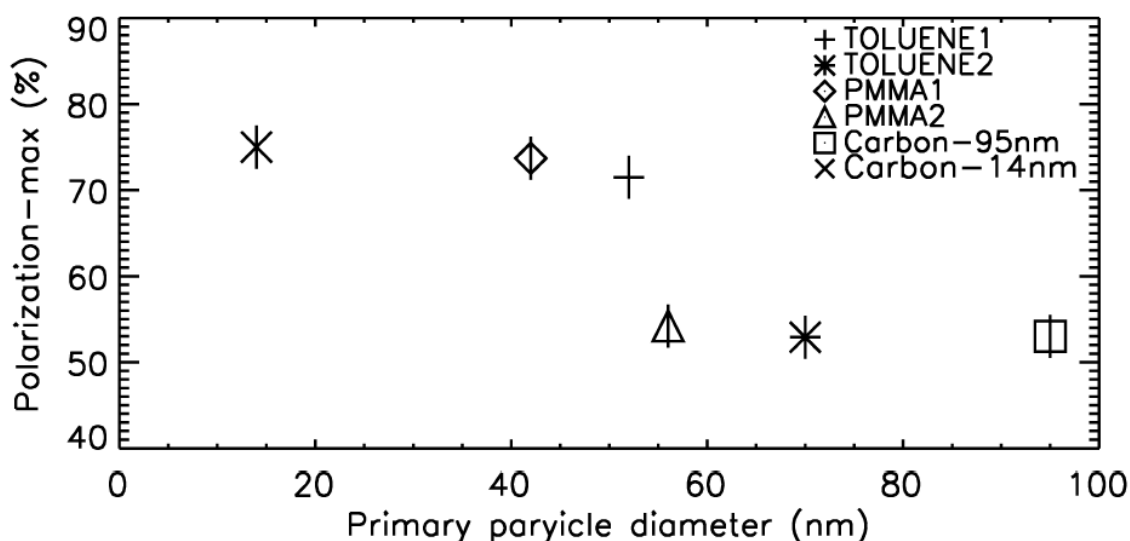


Figure 98 : Amplitudes de polarisation en fonction du diamètre des particules primaires produites par les échantillons de suie et les échantillons de noir de carbone ($\lambda=632,8$ nm).

5.3.3.5 Dépendance de la polarisation avec la longueur d'onde

Afin d'évaluer l'effet de la longueur d'onde sur les courbes de polarisation, les mêmes échantillons de suie ont été étudiés avec le laser vert. La figure 99 et la figure 100 présente un exemple des courbes de polarisation produites par lévitation de l'ensemble complet des agglomérats de toluene2 à $\lambda = 543,5$ nm et à $\lambda = 632,8$ nm et celle produites par le PMMA1. L'amplitude obtenue dans le domaine vert sur la figure 99 est inférieure à celle obtenue dans le domaine rouge d'une valeur d'environ 6%. Le comportement des deux courbes est similaire : les amplitudes maximales sont obtenues à un angle de diffusion autour de 90° . Ces résultats sont en bon accord avec l'étude précédente sur l'effet de la longueur d'onde sur les courbes de polarisation produite par la suie, où l'amplitude obtenue dans le domaine rouge est d'environ 5% plus élevé que celui obtenu dans le domaine vert (Renard et al., 2005b). Par contre, la figure 100 ne montre quasiment pas de différence entre les courbes produites par PMMA1 illuminé par le laser rouge et par le laser vert. Toutefois, la distribution de la taille dans le domaine vert n'a pas été étudiée de sorte que cette légère différence entre les deux courbes présentées dans la figure 99 n'est pas nécessairement due à la longueur d'onde et

pourrait être provoquée par la différence dans la distribution des tailles d'agglomérats entre les mesures dans le domaine rouge et celles dans le domaine vert.

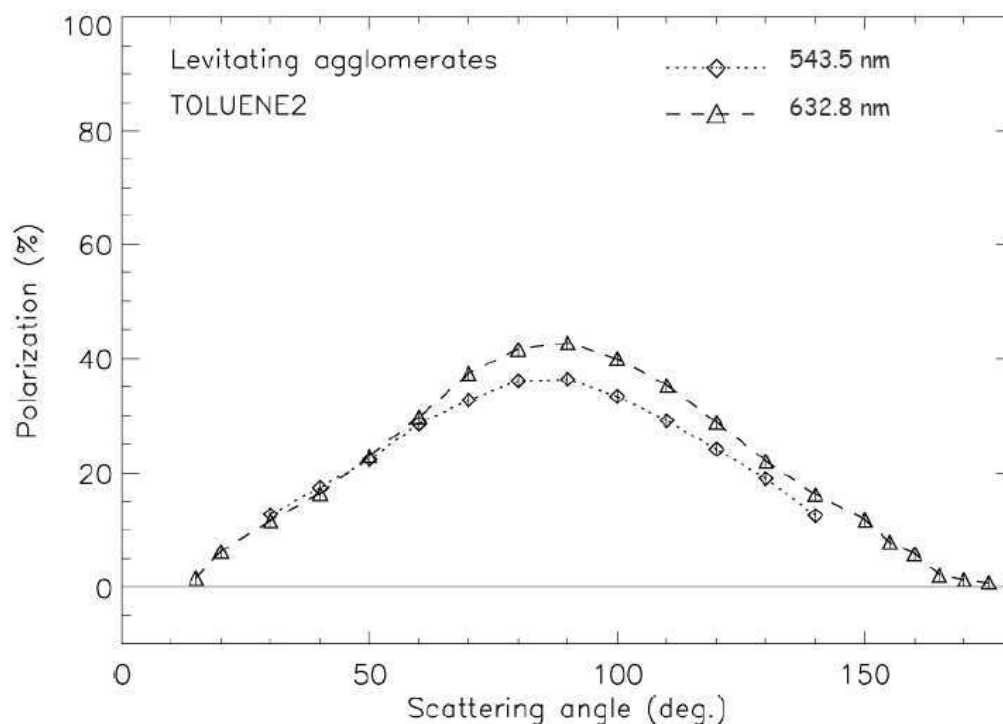


Figure 99 : Courbes de polarisation à $\lambda = 543,5 \text{ nm}$ et à $\lambda = 632,8 \text{ nm}$ produites par l'ensemble complet d'agglomérats toluène2 en lévitation

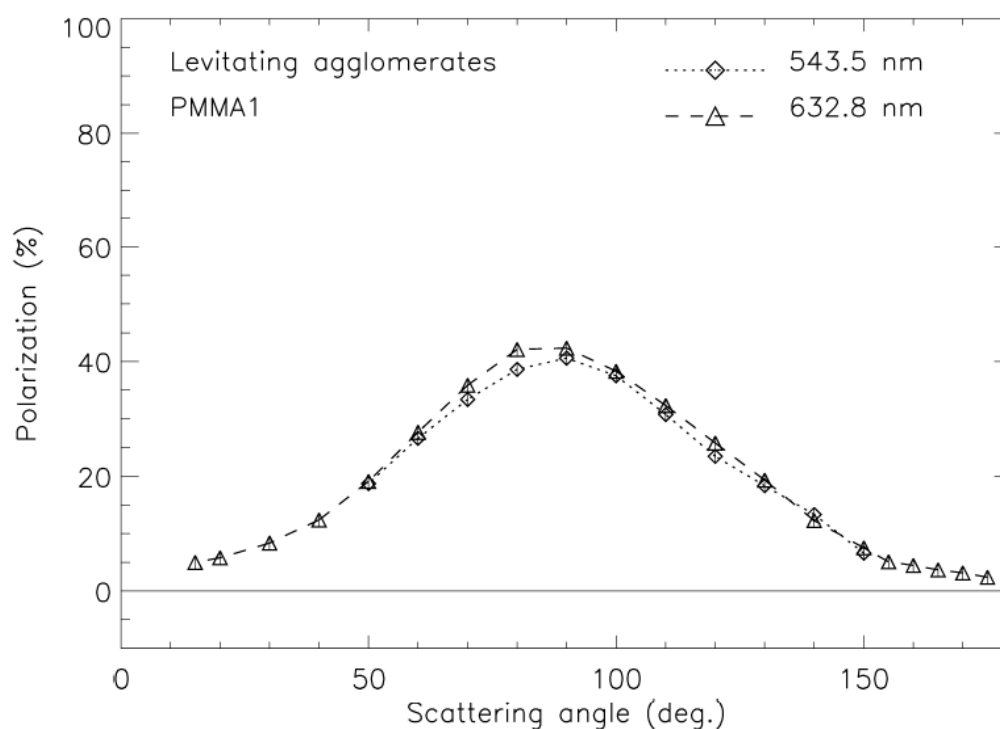


Figure 100 : Courbes de polarisation à $\lambda = 543,5 \text{ nm}$ et à $\lambda = 632,8 \text{ nm}$ produites par l'ensemble complet d'agglomérats PMMA1 en lévitation

5.3.3.6 Courbes de polarisation pour le même échantillon PMMA1 en lévitation mesurées sous différentes conditions

Les courbes de polarisation sont donc relatives aux conditions de mesures. Il est possible de tracer la courbe produite par un nuage dense de particules en lévitation. Ceci est fait en donnant une forte injection d'azote et en faisant les mesures juste après l'injection. Un exemple obtenu avec le PMMA1 est donné dans la figure 101 en comparant les courbes produites par les plus petits agglomérats en lévitation et celles produites par l'ensemble complet des agglomérats en lévitation. Les plus fortes amplitudes de polarisation sont obtenues avec les courbes produites par les plus petits agglomérats en lévitation. L'amplitude de cette courbe est d'environ 72%. La courbe de polarisation produisant la plus faible amplitude est celle produite par un nuage dense d'agglomérats et ceci est dû à la diffusion multiple entre les particules. Il est donc important durant les mesures d'avoir une concentration minimale d'échantillon flottant dans la fiole afin de pouvoir représenter le cas le plus proche de ce qu'on pourrait trouver dans la moyenne atmosphère

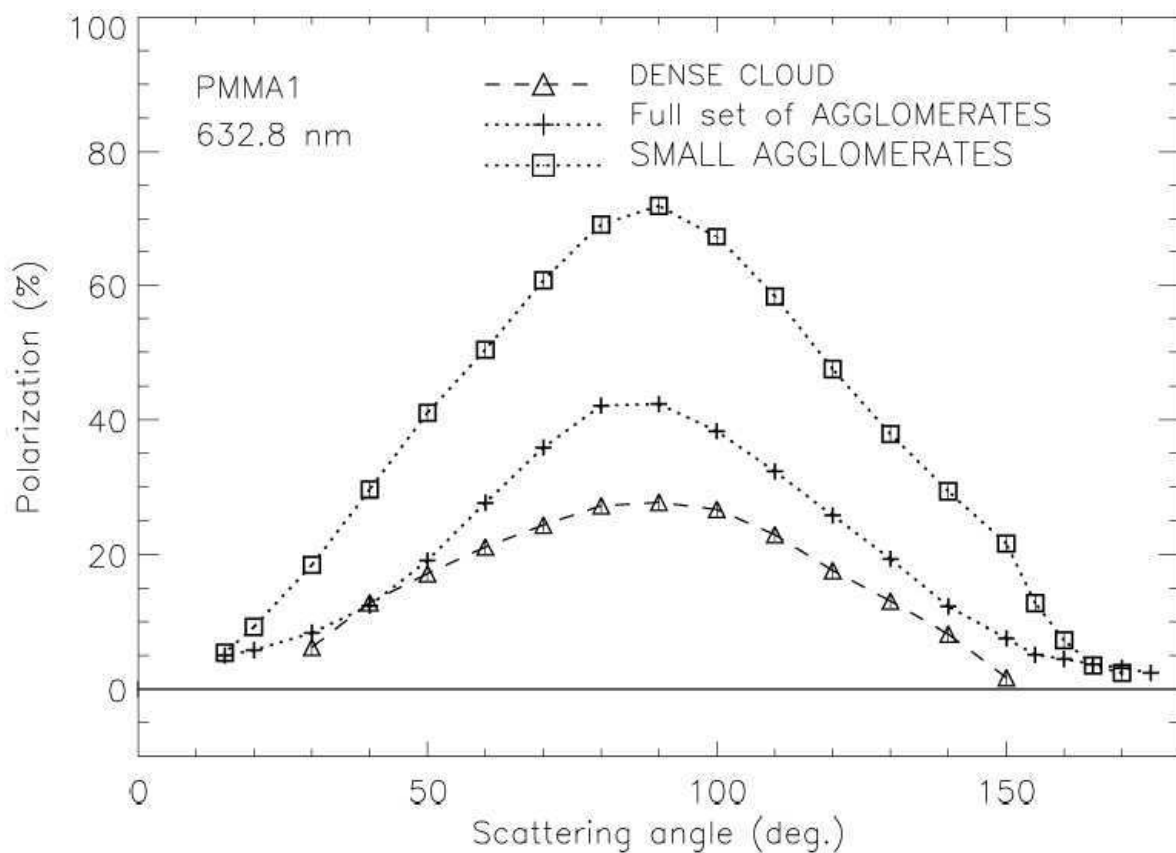


Figure 101 : Courbes de polarisation à $\lambda = 632,8$ nm produites par l'échantillon PMMA1 mesurée dans des différentes conditions

5.3.3.7 Comparaison entre courbes de polarisation et courbe de radiance de PMMA1 en lévitation et en surface

La figure 102 et la figure 103 comparent les courbes de polarisation et de radiance de PMMA1 mesurées à $\lambda = 632,8$ nm en lévitation et déposé en surface. Les angles de diffusion correspondants aux amplitudes maximales sont proches pour les deux courbes (80 et 90°), ce qui n'est pas le cas dans ce qui est montré avec les sables (voir section 4). Les différences entre les courbes produites par les échantillons en surface et les échantillons en lévitation sont claires :

- la valeur maximale produite par l'échantillon en surface est supérieure à celle produite par l'échantillon en lévitation ;
- la courbe produite par l'échantillon en surface montre des valeurs négatives aux grands angles de diffusion.

Enfin, les courbes de radiance, présentées sur la figure 102 (normalisées à 80°) montre une forte descente vers le minimum aux petits angles ainsi que une forte augmentation aux grands angles. Il convient de rappeler que la diffusion multiple provoque des valeurs de radiance faibles par conséquent, les pentes de la courbe de radiance des particules en surface sont inférieures à celles des particules dans l'air (Shkuratov et al., 2004)

La différence entre les courbes de polarisation des échantillons en lévitation et des échantillons déposés en surface est due à l'effet d'ombre, à la diffusion multiple entre les particules et la diffusion simple par les particules individuelles (Shkuratov et al., 2004, 2006). Les valeurs de polarisation négatives produites par les échantillons de sable (figure 40) montrent des valeurs négatives à partir de 130° d'angle de diffusion tandis que les valeurs négatives produites par les suies sont observées à partir de 158° (figure 84). En raison du fort albedo des échantillons de sable relativement à l'albedo des suies, la diffusion multiple est plus prononcée engendrant ainsi des valeurs négatives à des angles plus faibles. On remarque aussi en tassant les échantillons (figure 85) que la valeur de l'angle d'inversion est légèrement augmentée (dû au fait qu'en créant une surface lisse on diminue la diffusion multiple)

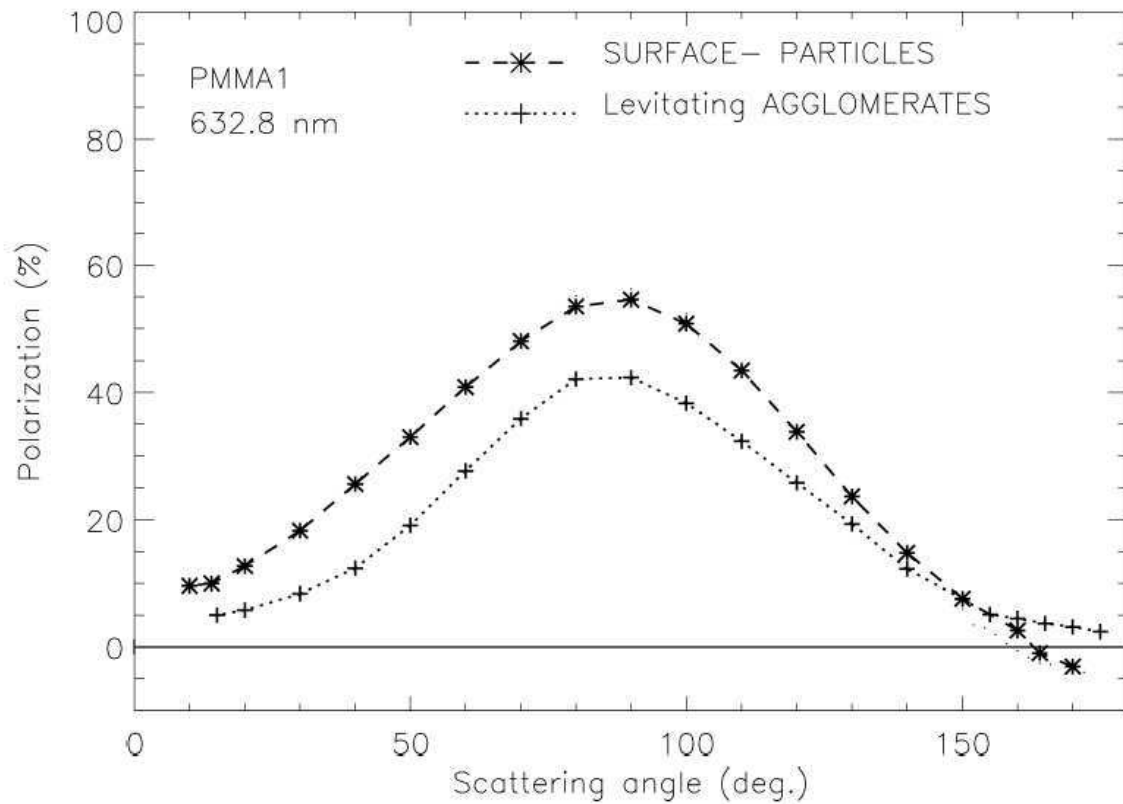


Figure 102 : Courbes de polarisation à $\lambda = 632,8$ nm produites par l'échantillon PMMA1 mesurée en surface et en lévitation

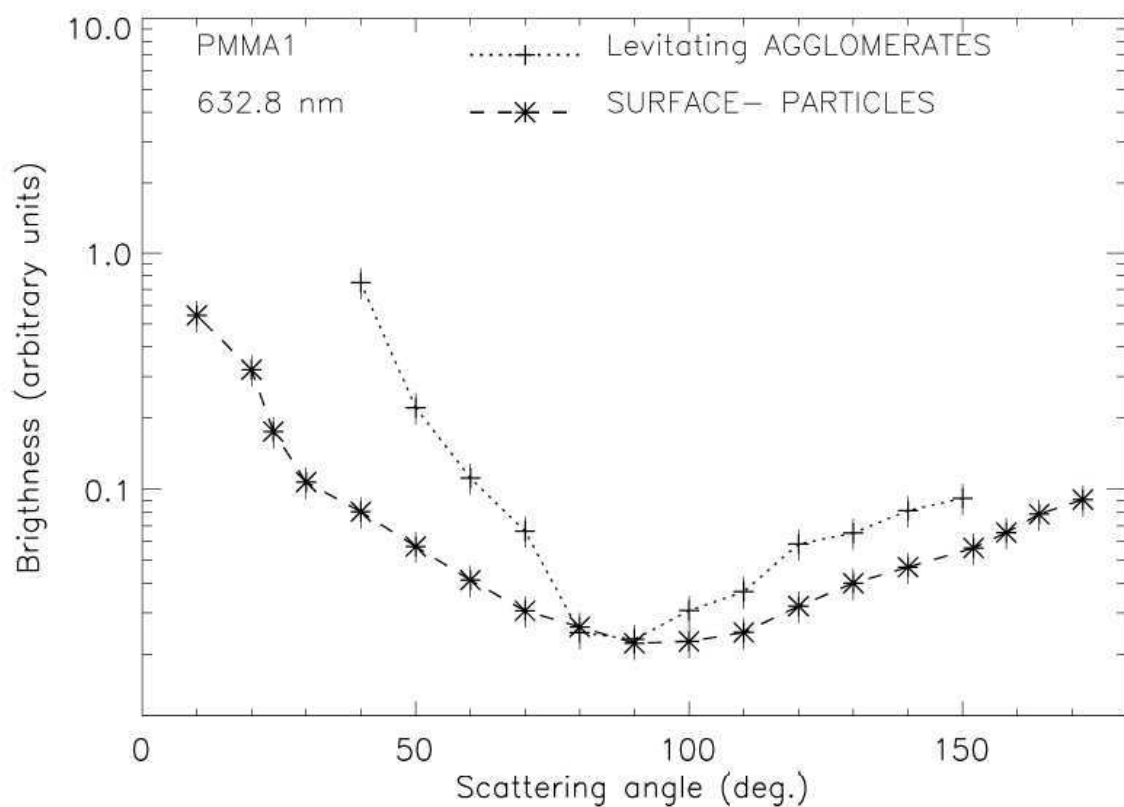


Figure 103 : Courbes de radiance à $\lambda = 632,8$ nm produites par l'échantillon PMMA1 mesurée en surface et en lévitation

5.3.3.8 Courbes de radiance produites par les suies et le noir de carbone

La Figure 104 présente la dépendance de la radiance par rapport à l'angle de diffusion à $\lambda = 632,8$ nm pour les radiances produites par l'ensemble des agglomérats des échantillons de suies et de noir de carbone en lévitation. Les courbes de radiance sont normalisées à 90° d'angle de diffusion. Ces courbes sont en accord avec les mesures faites avec le néphélomètre instrument du Laboratoire de Météorologie Physique (LaMP) (Daugeron, 2006) sur un autre type de suie (Renard et al., 2005b)

Toutes les courbes montrent une forte diminution de radiance en augmentant le diamètre jusqu'à atteindre un minimum à 90° d'angle de diffusion, puis elles augmentent légèrement par rapport à leur forte baisse avant le 90° . La courbe de radiance produite par C14 montre une diminution plus rapide que les autres courbes jusqu'à atteindre 90° d'angle de diffusion, puis montre une augmentation plus forte que les courbes produites par les autres échantillons. La courbe de radiance produite par C95 montre une diminution plus lente que les autres courbes jusqu'à atteindre 90° d'angle de diffusion, puis une augmentation plus lente que les courbes produites par les autres échantillons. Cette courbe est en bon accord avec la suie étudiée dans (Renard et al., 2005b) où un diamètre élevé de particules (100 nm) montre une augmentation très lente à grands angles de diffusion.

L'intensité des courbes produites par les noirs de carbone en lévitation semble être sensible au diamètre des particules primaires. Par contre, celles produites par les échantillons de suie montrent de légères différences entre elles mais il est difficile de conclure à un effet significatif de la taille sur ces différences.

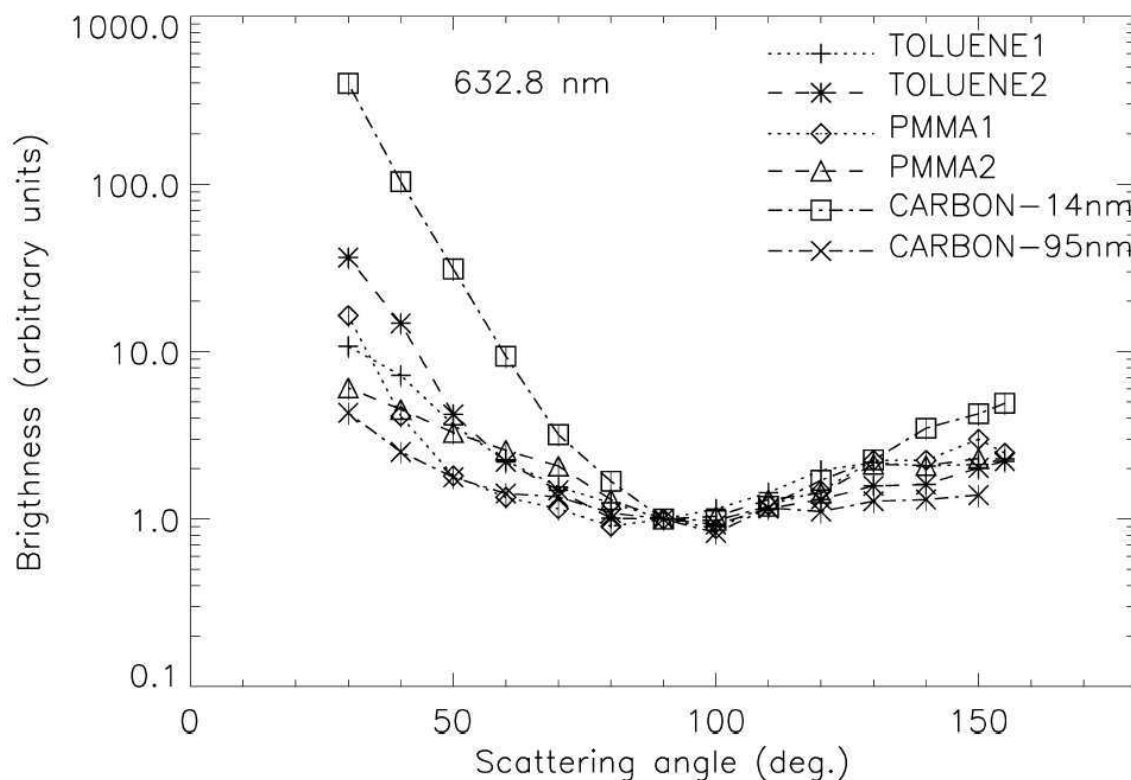


Figure 104 : Les courbes d'intensité normalisées à 90° d'angle de diffusion produite par l'ensemble complet d'agglomérats de suie en lévitation et de noir de carbone à $\lambda = 632,8$ nm.

La figure 105 présente les courbes de radiance à $\lambda = 632,8$ nm, pour les échantillons de suie en surface. Les courbes sont normalisées à 80° d'angle de diffusion. Toutes les courbes présentent le même comportement, le minimum est obtenu à 80°. Aux petits angles de diffusion, les courbes diminuent plus rapidement jusqu'au minimum puis elles augmentent. Les augmentations semblent être plus importantes que celles montrées sur la figure 104 pour les particules en lévitation. Les courbes présentent quelques différences mineures, notamment pour l'échantillon de suie qui a le diamètre le plus élevé de particules primaires, le toluène2, avec décroissance plus lente que les autres courbes jusqu'à 80° d'angles de diffusion. Toutefois, l'effet taille est moins évident sur les autres échantillons et il est difficile de tirer une conclusion claire de cet effet sur ces courbes d'intensité.

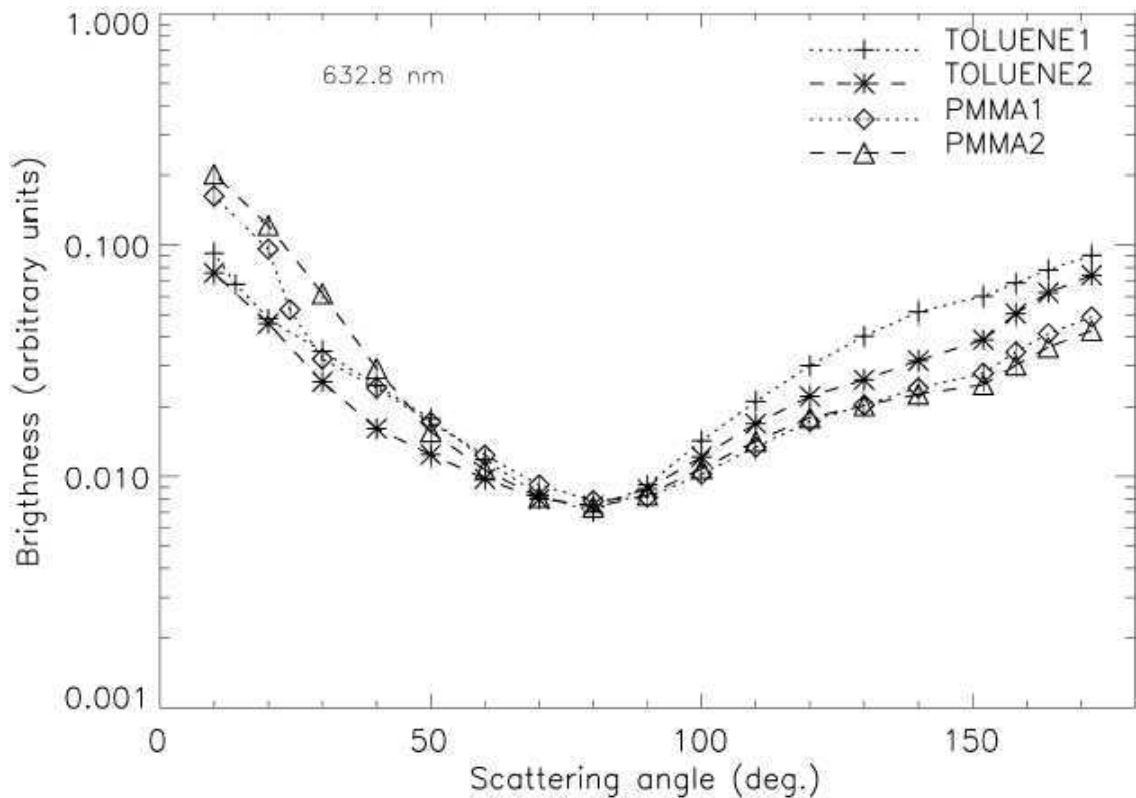


Figure 105 : Les courbes de radiance normalisées à 80° d'angle de diffusion produites par les suies en surface à $\lambda = 632,8$ nm.

5.4 Conclusion

Pour les suies de quelque nm de diamètre les courbes d'intensité détectées par les caméras de PROGRA2 montrent une augmentation avec le temps. Ceci est probablement dû à l'agglomération des suies flottant dans la fiole après quelques secondes. Les courbes de polarisation et de radiance représentent alors un mélange de suies de différents diamètres. Ce qui rend les courbes produites par l'échantillon suie(1,5) ayant un diamètre médian relativement important (~ 150 nm) et une concentration importante incompatible avec le modèle de Mie. D'une part à cause de la morphologie des suies d'autre part à cause de mélange de plusieurs diamètres dans la fiole.

Pour l'échantillon suie(1,2) ayant un diamètre inférieur (~ 115 nm) et une concentration moins importante (voir figure 56) l'agglomération est plus lente et moins prononcée ce qui donne une certaine compatibilité pour quelques valeurs avec une courbe produite par le modèle de Mie. Cependant cette compatibilité n'est remarquée que pour les petits angles de diffusion qui présentent une radiance relativement importante. Pour les autres angles, et

lorsque la radiance diminue on est en dessous de la sensibilité des cameras et la limite de l'instrument et les valeurs ne sont plus fiables.

Pour l'échantillon suie(1) possédant un diamètre médian autour de 60 nm, les valeurs de polarisations sont très élevées pour les angles moyens et plus basses pour les angles extrêmes. Ce type de polarisation est dû au fait que le diamètre médian est inférieur à la longueur d'onde donc on se rapproche de la diffusion de Rayleigh.

Pour les études des courbes de polarisation et des courbes de radiance des particules déposées en surface il est important d'avoir une épaisseur maximale pour éliminer l'effet du support et essayer d'étaler les échantillons d'une façon à avoir une surface lisse pour éliminer l'effet d'ombre.

Les valeurs de polarisation produites par les suies en surface montrent des valeurs négatives à partir de 158° d'angle de diffusion. En raison de leurs faibles valeurs d'albedo la diffusion multiple est moins prononcée qu'avec les sables ce qui explique la valeur plus élevée de l'angle d'inversion.

La différence entre les courbes de polarisation et de radiance produites par la suie déposée et par la suie en lévitation est inférieure à la différence constatée entre sable déposé et en surface. Cela est probablement dû au fait que les échantillons de suie ont un albédo plus faible que le sable, donc l'effet de diffusion multiple est moins observée avec la suie déposée qu'avec le sable déposé. La diffusion multiple provoque des valeurs de radiance plus faibles, par conséquent les pentes de la courbe de radiance des particules en surface sont inférieures à celles des particules dans l'air.

Les courbes de polarisation produites par le noir de carbone diffèrent de celles produites par les échantillons de suie, les angles de diffusion correspondant aux amplitudes sont différents, principalement dû à la différence de la taille des particules primaires. La distribution en taille pour les agglomérats en lévitation est également différente entre les échantillons de suies et les échantillons de noirs de carbone et montre un effet sur les valeurs de polarisation.

L'amplitude de la polarisation diminue quand le diamètre des particules primaires augmente, et ce jusqu'à un diamètre d'environ 50 nm. Après cette valeur, l'amplitude de polarisation semble rester stable. D'autre part, la polarisation augmente avec le diamètre des agglomérats de suie et de noir de carbone.

Les amplitudes de polarisation produites avec les suies en lévitation étudiées ici varient en amplitude d'une valeur autour de 20% pour l'ensemble des agglomérats. Les

courbes de polarisation ne sont donc pas suffisantes pour estimer la nature des agglomérats solides qui pourraient être détectés par des mesures à distance dans la stratosphère. De plus, les courbes d'intensités produites par ces échantillons montrent un comportement similaire entre elles et sont moins sensibles à la taille de l'agglomérat et au diamètre des particules primaires que les courbes de polarisation.

Les courbes de radiance et de polarisation produites par les suies diffèrent de celle produites par d'autres types de poussières qui peuvent être trouvées dans la stratosphère comme le sable (Renard et Francis et al., 2010) et la poussière interplanétaire (Rosenbush et al., 2006 ; Hadamcik et al., 2007 ; J. Lasue et al. 2007). Ainsi, les courbes de radiance et les courbes de polarisation doivent être combinées lors de l'analyse des mesures de télédétection.

Il a été démontré que le vieillissement a un impact sur les propriétés morphologiques de la suie (Ouf et al, 2010) donc de nouvelles mesures sur les suies plus ou moins jeunes seront nécessaires, afin de disposer d'une base de données qui sera utilisée à l'avenir pour identifier le type de suie détectée dans l'atmosphère à l'aide de mesures de télédétection.

Conclusions et perspectives

Conclusion sur les courbes de polarisation

Dans ce travail les courbes de polarisation et de radiance des particules de suies de quelques nm de diamètre produites par la combustion du propane par le générateur de suie MiniCAST ont été étudiées avec l'instrument PROGRA2-vis. Les suies générées ont été injectées directement dans la fiole de PROGRA2-vis afin d'éviter une forte agglomération ou « des agglomérats d'agglomérats » entre les particules affectant ainsi leurs propriétés optiques. Néanmoins, après quelques secondes de lévitation les radiances détectées par les caméras ont montré une augmentation non négligeable du flux indiquant la présence de l'agglomération entre les particules qui commence juste après quelques secondes de lévitation.

Les courbes de polarisation et de radiance obtenues représentent alors un mélange de suies de différents diamètres. Ceci rend les courbes incompatibles avec un modèle simple de diffusion de Mie (en considérant un seul diamètre médian), d'une part à cause de la morphologie des suies et d'autre part à cause de mélange de plusieurs diamètres de particules dans la fiole. En diminuant le diamètre et la concentration des suies générées, l'agglomération entre les particules est diminuée ce qui donne une certaine compatibilité pour quelques valeurs avec une courbe produite par le modèle de Mie. Cependant cette compatibilité n'est remarquée que pour les petits angles de diffusion qui présentent une radiance relativement importante.

Les propriétés optiques de 4 types d'agglomérats de suies bien documentées ont été étudiées. Les suies proviennent de 2 combustibles différents : le Polyméthyl méthacrylate (PMMA, $C_5H_8O_2$) et le solvant liquide, le toluène (C_7H_8) et sous différentes conditions de combustion donnant ainsi des morphologies différentes. Une comparaison avec les propriétés de 2 types de noir de carbone a aussi été menée.

- Des différences ont été trouvées:

- Les courbes de polarisation produites par le noir de carbone diffèrent de celles produites par les échantillons de suie, les angles de diffusion correspondant aux amplitudes de polarisation maximale sont différents.

- La distribution en taille pour les agglomérats en lévitation est différente entre les échantillons de suies et les échantillons de noir de carbone et montre un effet sur les valeurs de polarisation.
- Les amplitudes de polarisations produites par les plus petites particules de suie sont supérieures à celles produites par l'ensemble complet des agglomérats. Tandis que pour les échantillons de noir de carbone aucune différence n'a été trouvée entre les courbes de polarisation produites par les plus petites particules et par l'ensemble complet des particules.

- Des similitudes ont été trouvées:

- L'effet de taille est commun pour les particules de suies et de noir de carbone : la polarisation augmente avec la taille. Cependant la pente de l'augmentation diffère entre les échantillons ; ceci pourrait être dû aux différences entre les dimensions fractales des échantillons
- La distribution en taille des particules lévitant durant les mesures affectent les courbes de polarisation. Un échantillon contenant un grand nombre de particules ayant un large diamètre montre une amplitude de polarisation supérieure à celle produite par un échantillon ayant un grand nombre de particules de petit diamètre
- L'amplitude de la polarisation diminue quand le diamètre des particules primaires augmente, et ce jusqu'à un diamètre d'environ 50 nm. Après cette valeur, l'amplitude de polarisation semble rester stable.

Les courbes de polarisation et de radiance produites par les suies en lévitation sont comparées avec celles produites par les suies déposées en surface mesurées avec l'instrument PROGRA2surf :

- Des valeurs de polarisation négatives sont produites par les suies déposées en surface, à partir de 158° (angle d'inversion).
- En tassant les échantillons de suies on diminue l'effet de la diffusion multiple ce qui engendre une légère augmentation de la valeur de l'angle d'inversion.
- En déposant les échantillons en surface, un effet d'ombre apparaît donnant ainsi des amplitudes supérieures à celles produites par les courbes des suies en lévitation.

- La diffusion multiple provoque des faibles valeurs de radiance ; par conséquent, les pentes de la courbe de radiance des particules en surface sont inférieures à celle des particules dans l'air.

Les courbes de polarisation et de radiance pour différents échantillons de sable ont aussi été étudiées. Les courbes de polarisation des échantillons de gros grains de sable déposés et celles des mêmes échantillons en lévitation diffèrent fortement à tous les angles de diffusion. De plus, les courbes de polarisation et de radiance produites par du sable déposé diffèrent entre sable sec et sable humide. Il est ainsi possible de distinguer entre sable déposé sec, sable déposé et humide et sable en lévitation par l'analyse de la polarisation des valeurs notamment autour de 90° d'angle de diffusion et aux grands angles (la polarisation négative n'existant seulement que pour le sable sec déposé).

Une comparaison des propriétés optiques des différents types de sable et des suies est aussi discutée dans le but de bien différencier les signatures optiques des différentes particules solides que l'on peut trouver dans l'atmosphère:

- Les amplitudes de polarisation produite par les suies et le noir de carbone sont supérieures à celles produites par les sables (à l'exception du sable noir).
- Les angles de diffusion correspondant aux amplitudes de polarisation maximale diffèrent entre les échantillons de sable en surface et les échantillons de suies en surface: pour le sable ils sont entre 30° et 50° tandis que pour les suies ils sont entre 80° et 90° .
- L'albédo du sable étant plus important que celui des suies, la diffusion multiple est plus prononcée. Ce qui explique le fait que les amplitudes du sable déposé et du sable en lévitation montrent une différence supérieure à celles produites par les suies déposées et les suies en lévitation.
- Les angles de diffusion correspondant aux amplitudes de polarisation maximale du sable déposé et du sable en lévitation montrent une grande différence, tandis qu'ils sont quasiment identiques pour les suies.

Le Tableau 10 résume les principaux résultats des polarisations obtenus avec les échantillons de suies, les échantillons de noir de carbone et les échantillons de sable.

Echantillon	Description des mesures	Amplitude de polarisation ($\lambda=632,8$ nm)	Angle de diffusion correspondant à l'amplitude maximale	Angle d'inversion (vers des valeurs négatives)
Suies (ensemble complet de particules)	Déposées	Entre 52 et 65%	Entre 80 et 90°	~158°
	Phase aérosols (en lévitation)	Entre 25 et 55%	Entre 80 et 90°	
Suies (les plus petites particules)	Phase aérosols (en lévitation)	Entre 50 et 72%	Autour de 90°	
Noir de Carbone	Phase aérosols (en lévitation)	Entre 54 et 74%	Entre 70 et 80°	
Sable (à l'exception du sable noir d'Hawaii)	Déposé	Entre 3 et 25%	Entre 20 et 40°	Entre 130 et 150°
	En lévitation	Entre 7 et 15%	Autour de 90°	

Tableau 10 : Résumé des principaux résultats obtenus avec les courbes de polarisation

Conclusion sur les courbes de brillances

Une comparaison des courbes de radiance produites par les échantillons de suies, le noir de carbone, l'argile (*fine clay*), et la courbe de radiance de synthèse produite par les autres échantillons de sable, est montrée dans la figure 106.

Toutes les courbes produites par les suies et le noir de carbone montrent un comportement similaire : une descente rapide vers les minimums (entre 80 et 90°) suivie d'une lente et légère augmentation. Cependant le noir de carbone qui a un diamètre de particules primaires inférieur aux autres, montre des pentes plus fortes.

Les courbes produites par les échantillons de sable montrent un comportement différent de celles produites par les suies et le noir de carbone. La courbe produite par l'argile fine montre une descente vers ~90° (angle correspondant à l'amplitude de polarisation maximale). Après cet angle la courbe continue sa descente mais moins rapidement. Un comportement similaire est détecté sur la courbe de synthèse des autres échantillons de sable.

Les courbes de radiance ont servi comme base de données pour la conception des nouveaux compteurs d'aérosols LOAC et CPA maintenant en fin de développement au LPC2E.

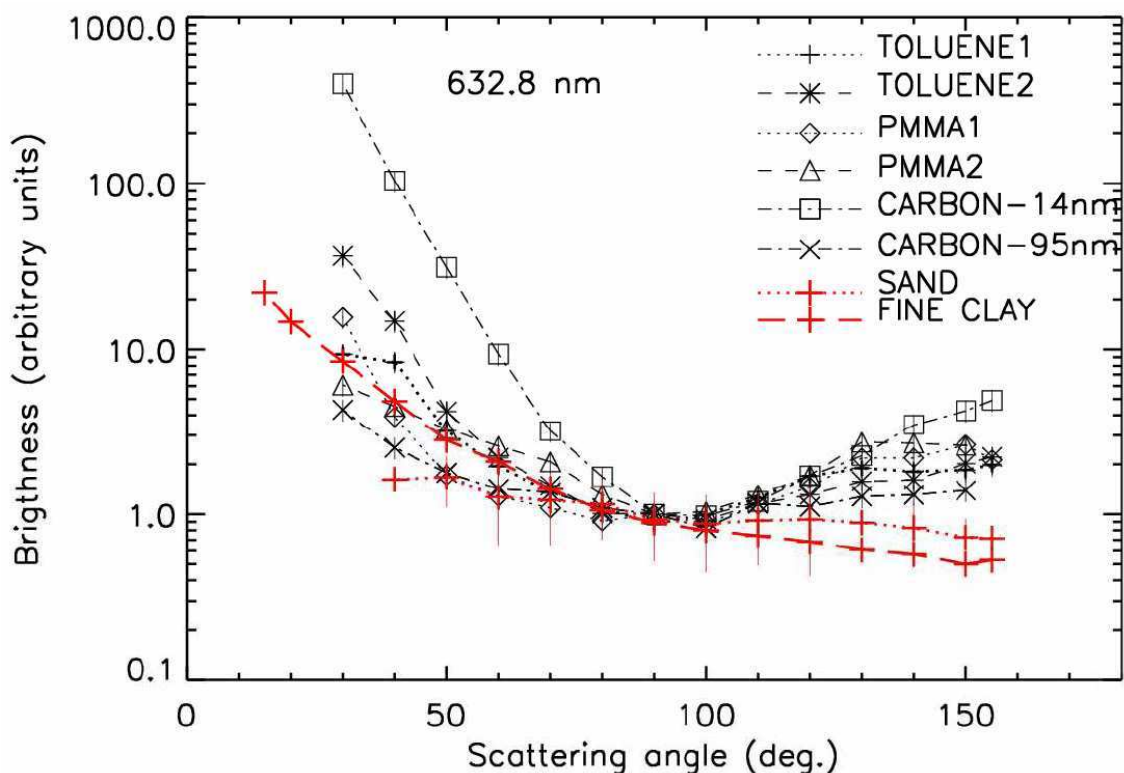


Figure 106 : courbes de radiances produites par les échantillons de suies et les échantillons de sable normalisées à 90°

Conclusion générale

Lors de ce travail les courbes de polarisation et de radiance de différents types de suies et de noir de carbone ont été obtenues et documentées. L'étude est faite avec les instruments PROGRA2-vis et PROGRA2-surf afin de comparer entre ces résultats lorsque les échantillons sont en lévitation et lorsque les échantillons sont déposés en surface. Le même travail est fait avec plusieurs types de sables permettant ainsi de comparer les résultats pour des particules solides de natures et de morphologies très différentes. Pour tous les échantillons les mesures faites en surface diffèrent de celles des particules en lévitation. Les courbes en surface ne reflètent pas donc les propriétés optiques des particules en lévitation quel que soit l'albédo des particules. Il est donc indispensable d'effectuer des mesures pour les échantillons en lévitation même si celles-ci sont plus coûteuses en temps et en prix (car l'échantillon est en partie perdu) si l'on veut disposer de mesures de référence pour les particules dans l'air.

Les amplitudes de polarisation maximale produites avec les suies diffèrent significativement selon la distribution en taille et selon la taille des particules primaires. Ces courbes seules ne sont donc pas suffisantes pour estimer la nature des agglomérats solides qui pourraient être détectés par des mesures à distance dans la stratosphère. D'autre part les courbes de radiance produites par ces échantillons montrent un comportement qui diffère de celles produites par les échantillons de sable ainsi que celle produite par de la poussière interplanétaire. Il est donc important lors de l'interprétation de mesures stratosphériques de combiner les courbes de radiance permettant d'identifier la nature des agglomérats avec les courbes de polarisation permettant de donner des informations sur la nature des suies détectées comme la taille de la particule primaire et la distribution en taille.

Les mesures sur les sables semblent plus simples à utiliser. Pour tous les échantillons mesurés (hormis le sable noir), les courbes de diffusion lumineuse sont similaires si les grains individuels sont d'au moins quelques micromètres de diamètre. Ce résultat rend facile l'identification des sables lors de mesures de diffusion lumineuse, mais par contre ne permet pas d'accéder à une information sur leur diamètre.

Perspectives

Il a été montré que le vieillissement a un impact sur les propriétés morphologiques de la suie (Ouf et al, 2010) donc de nouvelles mesures sur les suies plus ou moins jeunes seront nécessaires. Il s'avère nécessaire d'étudier l'impact de l'ozone sur les propriétés optiques des suies cela pourrait aider à estimer le temps de résidence des suies détectées dans la stratosphère. D'autre part des études sur les suies ayant une morphologie très semblable (diamètre des particules primaire et dimension fractale) provenant de différent type de combustible seront très intéressantes à mener dans le but d'essayer d'identifier le type de combustible suivant les courbes de polarisation et de radiances. En plus des études sur les suies de différent rapport EC/OC seront nécessaires afin de relier la réponse en polarisation à leur proportion en EC/OC. Plus d'investigations sont nécessaire pour évaluer l'effet (s'il existe) de la dimension fractale des suies.

La présence des suies dans la stratosphère est maintenant un fait auquel s'attendent les chercheurs, ainsi qu'à la poussière interplanétaire qui est omniprésente dans la stratosphère. Mais aussi quelques grains de sable sont des candidats probables dans la stratosphère. Une détection des grains de sable seuls (non mélangé avec d'autres particules) donne un maximum en degré de polarisation qui est faible. Par contre une détection des particules de suies seules donne un maximum en degré de polarisation élevé, cependant la valeur de ce dernier dépend de plusieurs facteurs. En effet comme discuté dans le chapitre 5 la distribution en taille des particules ainsi que la taille des particules primaires influent considérablement sur les valeurs de polarisation et en particulier le maximum de polarisation. Par contre les courbes de radiance sont moins dépendantes de ces paramètres et peuvent permettre d'identifier plus facilement les suies sans ambiguïté. Enfin une détection de valeurs de polarisation inférieures à celles attendus pour les suies pourrait être expliquée par un mélange des suies avec d'autres types de particules (sable ou poussière interplanétaire). Cette baisse en polarisation pourrait être aussi expliquée par un dense nuage de particules de suies, néanmoins ceci est peu probable pour des mesures dans la stratosphère. Plus d'investigations sur l'effet d'un mélange des suies avec d'autres types de particules sur les courbes de radiance et les courbes de radiances sont à prévoir avec PROGRA2.

Ces courbes pourraient servir à des mesures satellites détectant le rayonnement solaire réfléchi par des particules lévitant dans la troposphère ou en surface. Par exemple, pour le sable il faudrait examiner les valeurs de polarisation autour de 90° d'angle de diffusion et aux grands angles (la polarisation négative n'existant que pour le sable sec déposé), ainsi qu'un rapport entre les valeurs de brillance suivant plusieurs angles spécifiques.

Les données expérimentales comme celles de PROGRA2 pourraient présenter un outil supplémentaire pour l'interprétation des mesures des radiomètres embarqués sur des satellites détectant les aérosols troposphériques. Citons par exemple le capteur POLDER (*POLarization and Directionality of the Earth's Reflectances*) embarqué sur le satellite PARASOL (*Polarization & Anisotropy of Reflectances for Atmospheric Sciences coupled with Observations from a Lidar*). POLDER fournit des données de radiance et de polarisation de la lumière dans le spectre visible et proche-infrarouge. Pour une même cible observée les données sont acquises selon plusieurs angles d'observation.

Enfin, les courbes de polarisation et de radiance obtenues par des instruments effectuant des mesures à distance impliquent la détection de différentes natures de lumière diffusée. Pour pouvoir identifier le signal net des aérosols, la contribution de la diffusion de Rayleigh ainsi que la contribution de la diffusion de la surface doivent être retranchées du signal détecté par l'instrument. L'idéal serait donc d'utiliser un instrument sous ballon effectuant des mesures in situ, c'est-à-dire un compteur d'aérosols capable de faire des mesures à plusieurs angles en radiance et en polarisation. Un CPA sous ballon faisant des mesures sur 4 angles pourrait être une première étape. Un PROGRA-ballon serait une possibilité à prévoir pour mieux identifier les types d'aérosols présents dans la troposphère et la stratosphère.

Les données seront disponibles dans la base de données de PROGRA2: <http://www.icare.univ-lille1.fr/progra2/>.

Bibliographie

- Andreae M.O. et P. J. Crutzen, Atmospheric aerosols: biogeochemical sources and role in atmospheric chemistry, *Science*, 276, 1052-1058, (1997)
- Barthazy E., O. Stetzer, C. Derungs, H. Saathoff¹, U. Lohmann. Water uptake of soot particles emitted from a jing-CAST soot generator (2006)
- Baumgardner, D., G. Kok, and G. Raga, Warming of the Arctic lower stratosphere by light absorbing particles, *Geophys. Res. Lett.*, 31, L06117, doi:10.129/2003GL0118883, (2004)
- Bekki, S., On the possible role of aircraft-generated soot in the middle latitude ozone depletion, *J. Geophys. Res.*, 102, 10,751-10,758., (1997)
- Bemer, D., J. F. Fabries, and A. Renoux, Calculation of the theoretical response of an optical particle counter and its practical usefulness, *Journal Aerosol Sci.*, 21, 689-700, (1990)
- Berthet G., J.-B. Renard, C. Brogniez, C. Robert, M. Chartier, and M. Pirre, Optical and physical properties of stratospheric aerosols from balloon measurements in the visible and near-infrared domains. I. Analysis of aerosol extinction spectra from the AMON and SALOMON balloonborne spectrometers, *Applied Optics*, 41, 7522-7539, (2002)
- Biermann U.M., T. Presper, T. Koop, J. Möhler, P. J. Crutzen, and T. Peter, The unsuitability of meteoritic and other nuclei for polar stratospheric cloud freezing, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 1693-1696, (1996).
- Bingen C., D. Fussen, and F. Vanhellemont, A global climatology of stratospheric aerosol size distribution parameters derived from SAGE II data over the period 1984-2000: 2. Reference data, *Journal Geophys. Res.*, 109, D06202.1-D06202.13, (2004)
- Blake D.F. and K Kato, Latitudinal distribution of black carbon soot in the upper troposphere and lower stratosphere. *Journal Geophys. Res.*, 100, 7195-7202, (1995)

- Brasil A.M, T.L Farias., M.G.Carvalho, A recipe for image characterization of fractal-like aggregates, *Journal of Aerosol Science*, 30, 1379-1389 (1999)
- Brasil A.M, T.L. Farias T.L., M.G.Carvalho. Evaluation of the fractal properties of cluster-cluster aggregates, *Aerosol Science and Technology*, 33, 440-454 (2000)
- Brasil A.M, T.L. Farias T.L., M.G.Carvalho, Ü.Ö Koylu, Numerical characterization of the morphology of aggregated particles, *Journal of Aerosol Science*, 32, 489-508 (2001)
- Bréon F. M., J. L. Deuzé, D. Tanré, and M. Herman, Validation of spaceborne estimates of aerosol loading from Sun photometer measurements with emphasis on polarization, *Journal Geophys. Res.* 102, 17,187-17,195 (1997).
- Brogniez, C., N. Huret, S. Eckermann, E. D. Rivière, M. Pirre, M. Herman, J.-Y. Balois, C. Verwaerde, N. Larsen, and B. Knudsen, PSC microphysical properties measured by microRadibal instrument on January 25, 2000 above Esrange and modeling interpretation, *Journal Geophys. Res.*, 108, D6, 8332, doi :10.1029/2001JD001017, (2003)
- Brownlee D., Cosmic dust: collection and research, *Ann. Rev. Earth Planet. Sci.*, 13, 147-173, (1985)
- Chiapello I., C. Moulin, and J. M. Prospero, Understanding the long-term variability of African dust transport as recorded in both Barbados surface concentrations and large-scale Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) optical thickness, *Journal Geophys. Res.* 110, D18S10, doi: 10.1029/2004JD005132 (2005).
- Curtius J., et al., Observations of meteoric material and implications for aerosol nucleation in the winter Arctic lower stratosphere derived from in situ particle measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 3053-3069, (2005)
- Cziczo D. J., D. S. Thomson, and D. M. Murphy, Ablation, flux and atmospheric implication of meteors inferred from stratospheric aerosols, *Science*, 291, 1772-1775, (2001)

- D. Daugeron., Réalisation d'un néphélomètre de laboratoire pour l'étude des propriétés radiatives de la lumière diffusée par les aérosols, Engineering certificate. Conservatoire national des arts et métiers, Saint-Etienne, France (2001)
- Daugeron D., J.-B. Renard, B. Gaubicher, B. Couté, E. Hadamcik, F. Gensdarmes, G. Basso, and C. Fournier, "Scattering properties of sands, 1. Comparison between different techniques of measurements," *Applied Optics* 45, 8331-8337 (2006).
- Delmas R., G. Mégie, V.-H. Peuch, *Physique et chimie de l'atmosphère*, Belin, (2005)
- Deshler T., M. E. Hervig, D. J. Hofmann, J. M. Rosen, and J. B. Liley, Thirty years of in situ stratospheric aerosol size distribution measurements from Laramie, Wyoming (41°N) using balloon-borne instruments, *Journal Geophys. Res.*, 108, 4167, doi:10.1029/2002JD002514, (2003)
- Draine B. T. and P. J. Flatau. Discrete dipole approximation for scattering calculations, *Journal Opt. Soc. Am. A* , 11, 1491-1499, (1994)
- Dobbins R.A., C.M. Megaridis, Morphology of flame-generated soot as determined by thermophoretic sampling, *Langmuir*, 3, 254-259 (1987)
- Duprat J., Engrand C., Maurette M., Kurat G., Gounelle M., and Hammer C. Micrometeorites from Central Antarctic snow: The Concordia collection, *Adv. Space Res.*, 39, 605-611., (2007)
- Dutton E.G., P. Reddy, S. Ryan, and J. J. DeLuisi, Features and effects of aerosol optical depth observed at Mauna Loa, Hawaii: 1982-1992, *Journal Geophys. Res.*, 99, 8295-8306, (1994)
- Francis M., J.-B. Renard, E. Hadamcik, B. Couté, B. Gaubicher and Matthieu Jeannot, New studies on scattering properties of different kinds of soot and carbon-black, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfert*, doi:10.1016, (2011).

- Gerding, M., G. Baumgarten, U. Blum, J. P. Thayer, K.-H. Fricke, R. Neuber, and J. Fiedler, Observation of an unusual mid-stratospheric aerosol layer in the Arctic: possible sources and implication for polar vortex dynamics, *Ann. Geophys.*, 21, 1057-1069, (2003)
- Girolamo Di, G. Pappamardo, N. Spinelli, V. Berardi, and R. Velotta, Lidar observations of the stratospheric aerosol layer over southern Italy in the period 1991-1995, *Journal Geophys. Res.*, 101, 18,765-18,773., (1996)
- Grynko Y., Y. Shkuratov and G. Videen, Polarization of near-forward-scattered light from particulate substrates illuminated at near-grazing angles. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 101, 522-526 (2006)
- Guilloteau A., Etude multiphasique de polluants organiques aromatiques : répartition des Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques dans les suies et formation d'aérosols dans l'ozonolyse du catéchol, Université d'Orléans, France, 2007
- Hapke B., Theory of reflectance and emittance spectroscopy, chez Cambridge university press, (1993)
- Hadamcik, E.; Renard, J.-B.; Levasseur-Regourd, A. C.; Worms, J.-C., PROGRA2 experiment: New results for dust clouds and regoliths analogs, *Advances in Space Research*, 38, 2006-2012, (2005)
- Hadamcik E., J.B. Renard, A.C. Levasseur-Regourd, J.C. Worms, Laboratory light scattering measurements on « natural » particles with the PROGRA2 experiment: an overview. *Journal Quant. Spectrosc. Rad. Transfer* 79-80, 679-693, (2003)
- Hadamcik E., J.-B. Renard, A.-C. Levasseur-Regourd, and J.-C. Worms, Laboratory measurements of the light scattered by clouds of solid particles by imaging technique, in *Light Scattering Review 4*, A. A. Kokhanovsky ed., (Springer/), 31-70, (2009a)
- Hadamcik E., J.B. Renard, A.C. Levasseur-Regourd, J.C. Worms, Polarimetric study of levitating dust aggregates with the PROGRA2 experiment. *Planet. Space Sci.* 50, 895-901., (2002)

- Hadamcik E., J.-B. Renard, A.C. Levasseur-Regourd and J. Lasue. Light scattering by fluffy agglomerates with the PROGRA2 experiment: Mixtures of materials, *Journal Quant Spectrosc Radiat Transfer* 100, 143-156 (2006)
- Hadamcik E., J.-B. Renard, A.C. Levasseur-Regourd, J. Lasue, G. Alcouffe and M. Francis. Light scattering by agglomerates: Interconnecting size and absorption effects (PROGRA2 experiment). *Journal Quant Spectrosc Radiat Transfer*, 110, 1755-1770 (2009b).
- Hadamcik H., J.-B. Renard, J. Lasue, A.C. Levasseur-Regourd, J. Blum, R. Schraepler, Light scattering by low-density agglomerates of micron-sized grains with the PROGRA2 experiment, *Journal Quant Spectrosc Radiat Transfer*, 106, 74–89, (2007)
- Hapke B., *Theory of reflectance and emittance spectroscopy*, Cambridge University Press, (1993)
- Hanson D.R., A. R. Ravishankara, and S. Solomon, Heterogeneous reactions in sulphuric acid aerosols: a framework for model calculation, *Journal Geophys. Res.*, 99, 3615-3629. (1994)
- Hanson D.R., A. R. Ravishankara, and E. R. Lovejoy, Reactions of BrONO₂ with H₂O on submicron sulphuric acid aerosol and implication for the lower stratosphere, *Journal Geophys. Res.*, 101, 9063-9069, (1996)
- Haynes B.S, H. GG. Wagner, Soot formation, *Progress in Energy and Combustion Science*, 7, 229-273 (1981)
- Haywood J.M., and O. Boucher, Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: A review. *Rev. Geophys.*, 38, 513- 543, (2000)
- Hu B., B. Yang, U. Koylu, Soot measurements at the axis of an ethylene/air nonpremixed turbulent jet flame, *Combustion and Flame*, 134, 93-106 (2003)

- Hendricks, J., B. Kärcher, A. Döpelheuer, J. Feichter, U. Lohmann, and D. Baumgardner, Simulating the global atmospheric black carbon cycle: A revisit to the contribution of aircraft emission, *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 2521-2541, (2004)
- Hervig M.E. and T. Deshler, Stratospheric aerosol surface area and volume inferred from HALOE, CLAES, and ILAS measurements, *Journal Geophys. Res.*, 103, 25,345-25,352, (1998)
- Huard S., *Polarisation de la lumière chez Masson*, (1993)
- Hunten D.M., R. P. Turco, and O. B. Toon, Smoke and dust particles of meteoric origin in the mesosphere and stratosphere, *J. Atmos. Sci.*, 37, 1342-1356, (1980),
- IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change) Third Assessment Report, WG I. Climate Change: The Scientific Basis (J. T. Houghton et al. Eds) Cambridge University Press, (2001)
- Jäger H., O. Uchino, T. Nagai, T. Fujimoto, V. Freudenthaler, and F. Homburg, Ground-based remote sensing of the decay of the Pinatubo eruption cloud at three Northern Hemisphere sites, *Geophys. Res. Lett.*, 22, 607-610, (1995)
- Jullien R., R. Botet, *Aggregation and fractal aggregates*, World Scientific Pub Co Inc, ISBN 9971-50-248-8 (1987)
- Kennedy I.A., models of soot formation and oxidation, *Progress in Energy and Combustion Science*, 23, 95-132 (1997)
- Kiehl, J. T. and K. E. Trenberth, Earth's Annual Global Mean Energy Budget, *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 78, 197-208., (1997)
- Klekociuk, A., P. G. Brown, D. W. Pack, D. O. ReVelle, W. N. Edwards, R. E. Spalding, E. Tagliaferri, B. B. Yoo, and J. Zagari, Meteoritic dust from the atmospheric disintegration of a large meteoroid, *Nature*, 436, doi:10.1038/nature03881., (2005)

- Köylü Ü. Ö, and G. M. Faeth, Structure of overfire soot in buoyant turbulent diffusion flames at long residence times. *Combust. Flame* 89 140-152 (1992)
- Köylü Ü. Ö, and G. M. Faeth, Spectral extinction coefficients of soot aggregates from turbulent diffusion flames, Fall Meeting of the Eastern States Section of the Combustion Institute, 211-214 (1995)
- Kusaka T. , F. Satou, and Y. Hayato, Optical properties of Kosa aerosols estimated from multispectral polarization, *Proc. SPIE* 4891, 413, doi:10.1117/12.466348 (2003)
- Kusaka T., T. Ema, and N. Taniguchi, Extraction of optical properties of yellow sand dust from satellite-level data over east Asia, in proceedings of Geoscience and Remote Sensing Symposium IGARSS '98, (IEEE 1998), 2, 876-878.
- Lary D. J., D. E. Shallcross, and R. Toumo, Carbonaceous aerosols and their potential role in atmospheric chemistry, *Journal Geophys. Res.*, 104, 15,929-15,940., (1999)
- Lasue J., Lunar and Planetary Institute, 3600 Bay Area Boulevard, Houston, Texas 77058
- Lasuea J., A.C. Levasseur-Regourd, E. Hadamcik, J.-B. Renard, Light scattering by coated spheres: Experimental results and numerical simulations, *Journal Quant. Spectrosc. Rad. Transfer*, 106, 212-224, (2007)
- Li X., H. Maring, D. Savoie, K. Voss, and J.M. Prospero, Dominance of mineral dust in aerosol light scattering in the North Atlantic trade winds, *Nature* 380, 416-419 (1996).
- Lohmann U. and J. Feichter, Global indirect aerosol effects: A review. *Atmos. Chem. Physics*, 5, 715-737., (2005)
- Love S.G. and Brownlee D.E., A direct measurement of the terrestrial mass accretion rate of cosmic dust. *Science*, 262, 550-553, (1993)

- Lumme, K., J. Rahola, Light scattering by porous dust particles in the discrete-dipole approximation, *Astrophysical Journal*, 425, 653-667, (1994)
- Maugendre M., Etude des particules de suies dans les flammes de kérosène et de diester, Institut National de Sciences Appliquées de Rouen, France, (2009)
- Maurette M., C. Olinger, M. Michel-Levy, G. Kurat, M. Pourchet, F. Brandstätter, and M. Bourot-Denise, A collection of diverse micrometeorites recovered from 100 tons of Antarctic blue ice, *Nature*, 351, 44-47, (1991)
- Medalia A.I., F.A. Heckman, Morphology of aggregates – II. Size and Shape factors of carbon black aggregates from electron microscopy, *Carbon*, 7, 567-582 (1969)
- Megaridis C. M. and R. A. Dobbins, “Morphological Description of Flame-Generated materials,” *Combustion Science and Technology* 71, 95-109, (1990)
- Mishchenko, M. I., J. W. Hovenier and L. D. Travis, *Light Scattering by Nonspherical Particles: Theory, Measurements, and Applications*, Academic Press, (2000)
- Mishchenko, M. I., L. D. Travis, et D.W. Mackowski, T-matrix computations of light scattering by nonspherical particles: A review, *Journal Quant. Spectrosc. Radiat. Transfert*, 55, 535-575, (1996)
- Muñoz O., H. Volten, J.W. Hovenier, K. Muinonen, G. Guirado, F. Moreno, and L.B.F.M. Waters, “Scattering matrix of large Saharan dust particles: experiment and computations,” *Journal Geophys. Res.* 112, D13215, doi:10.1029/2006JD008074, (2006).
- Murphy, D. M., D. J. Cziczo, P. K. Hudson, and D. S. Thomson, Carbonaceous material in aerosol particles in the lower stratosphere and tropopause region, *Journal Geophys. Res.*, 112, D04203, doi:10.1029/2006JD007297., (2007)
- Ouf F-X, Caractérisation des aérosols émis lors d’un incendie, Faculté des Sciences et Techniques de l’Université de Rouen, France, (2006)

- Ouf F-X, J. Vendel ; A. Coppalle ; M. Weill ; J. Yon, Caracterization of Soot Particles in the Plumes of over-Ventilated Diffusion Flames. *Combustion Science and Technology*, 180, 674-698, (2008)
- Ouf F-X, J. Yon, P. Ausset, A. Coppalle, M. Maille, Influence of Sampling and Storage Protocol on Fractal Morphology of Soot. Studied by Transmission Electron Microscopy. *Aerosol Science and Technology*, 44, 1005 – 1017, (2010)
- Ovarlez, J., and H. Ovarlez , Water vapour and aerosol measurements during SESAME, and the observation of low water vapour content layers, *Polar Stratospheric Ozone*, proceedings of the Third European Workshop, Air Pollution Rep. 56, J. A. Pyle, N. R. P. Harris and G. T. Amanatidis eds., European Commission, 205-208., (1995)
- Paul A. Baron et Klaus Willeke, *Aerosol Measurement - Principles, Techniques, and Applications*, Wiley-Interscience, (2001)
- Platt, U., Differential optical absorption spectroscopy (DOAS), *Chem. Anal. Series*, 127, 27-83., (1994)
- Prospero J. M. and P. J. Lamb, P.J., African droughts and dust transport to the Caribbean: climate change implications, *Science* 302, 1024-1027 (2003)
- Pueschel, R. F., S. Verma, H. Rohatschek, G. V. Ferry, N. Boiadjieva, S. D. Howard, and A. W. Strawa, Vertical transport of anthropogenic soot aerosol into the middle atmosphere, *Journal Geophys. Res.*, 105, 3727-3736., (2000)
- Renard J.-B., C. Brogniez, G. Berthet, Q. Bourgeois, B. Gaubicher, M. Chartier, J.-Y. Balois, C. Verwaerde, F. Auriol, P. Francois, D. Daugeron, and C. Engrand, Vertical distribution of the different types of aerosols in the stratosphere: Detection of solid particles and analysis of their spatial variability, *Journal Geophys. Res.*, 113, D21303, doi:10.1029/2008JD010150., (2008)

- Renard J.-B., C. Thauray, J.-L. Mineau, et B. Gaubicher, Small-angle light scattering by airborne particulates: Environnement S.A. continuous particulate monitor, *Measurement Science and Technology*, 21, doi:10.1088/0957-0233/21/8/085901, (2010)
- Renard, J. B., G. Berthet, C. Robert, M. Chartier, M. Pirre, C. Brogniez, et al., Optical and physical properties of stratospheric aerosols from balloon measurements in the visible and near infrared domains. II Comparison of extinction, reflectance, polarization and counting measurements, *Appl. optics*, 41, 7540-7549, (2002a)
- Renard J.-B., J.C. Worms, T. Lemaire, E. Hadamcik, N. Huret, Light scattering by dust particles in microgravity: polarization and brightness imaging with the new version of the PROGRA2 instrument. *Appl. Opt.* 41, 609-618, (2002b)
- Renard J.-B., J. Ovarlez, G. Berthet, D. Fussen, F. Vanhellemont, C. Brogniez, E. Hadamcik, M. Chartier, and H. Ovarlez, Optical and physical properties of stratospheric aerosols from balloon measurements in the visible and near-infrared domains. III. Presence of aerosols in the middle stratosphere, *Appl. Optics*, 44(19), 4086-4095., (2005a)
- Renard J.-B., D. Daugeron, P. Personne, G. Legros, J. Baillargeat, E. Hadamcik, J.-C. Worms . Optical properties of randomly distributed soot: improved polarimetric and intensity scattering functions. *Appl Opt.*, 44, No. 4 (2005b).
- Rohatschek, H., Levitation of stratospheric and mesospheric aerosols by gravito-photophoresis, *Journal Aerosol Sci.*, 27, 467-475., (1996)
- Rosenbush V., N. Kiselev, V. Avramchuk , Similarity and diversity in photometric and polarimetric opposition effects of small Solar System bodies, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 100, 325-339, (2006)
- Russell P. B., et al., Global to microscale evolution of the Pinatubo volcanic aerosol derived from diverse measurements and analyses *Journal Geophys. Res.*, 101, 18745-18763., (1996)

- Salazar V., Étude des propriétés physiques des aérosols de la moyenne et haute atmosphère à partir d'une nouvelle analyse des observations de GOMOS-ENVISAT pour la période 2002-2006, Université d'Orléans, France, (2010)
- Schwarz, J. P., et al., Single-particle measurements of mid-latitude black carbon and light-scattering aerosols from the boundary layer to the lower stratosphere, *Journal Geophys. Res.*, 111, D16207, doi:10.1029/2006JD007076., (2006)
- Serge Huard, *Polarisation de la lumière*, Masson, (1993).
- Sorensen C. and G. Roberts, The Prefactor of Fractal Aggregates, *Journal of colloid and interface science*, 186, 447–452 (1996)
- Shkuratova Yu., A. Ovcharenkoa, E. Zubkoa, H. Voltenb,c, O. Muñozd, G. Videene, The negative polarization of light scattered from particulate surfaces and of independently scattering particles, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* , 88, 267–284, (2004)
- Shkuratova Yu., S. Bondarenkoa, A. Ovcharenkoa, C. Pietersb, T. Hiroib, H. Voltenc, O. Munoz, G. Videen, Comparative studies of the reflectance and degree of linear polarization of particulate surfaces and independently scattering particles, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 100, 340–358, (2006)
- Silvester, P.P., et R.L. Ferrari, *Finite Elements for Electrical Engineers*, Cambridge Univ. Press, New York6, (1996)
- SPARC report N°4, Assessment of Stratospheric Aerosols Properties, WCRP124, WMO/TD N°1295, (2006)
- Steele H. M., J. D. Lumpe, R. P. Turco, R. M. Bevilacqua, and S. T. Massie, Retrieval of aerosol surface area and volume densities from extinction measurements: application to POAM II and SAGE II, *Journal Geophys. Res.*, 104, 9325-9336., (1999)

- VanderWood T. B., M. Maurette, J. P. Bradley, C. Engrand, G. Kurat, J. R. Petit, and N. I. Barkov, Automated SEM analysis of fine grained dust from Antarctica ice cores, Lunar Planet. Sci., XXVII, 1355-1356., (1996)
- Wentzel M, H. Gorzawski H, K.H. Naumann, H. Saathoff, S. Weinbruch, Transmission electron microscopical and aerosol dynamical characterization of soot aerosols, Journal of Aerosol Science, 34, 1347-1370, (2003)
- Worms J.C. J.-B. Renard, A.C. Levasseur-Regourd, E. Hadamcik, Light scattering by dust particles in microgravity: the PROGRA2 achievements and results. Adv. Space Res. 23, 1257-1266., (1999)
- Worms J.-C, J.-B. Renard, E. Hadamcik, N. Brun-Huret, and A.-C. Levasseur-Regourd, Light scattering by dust particles with the PROGRA2 instrument – Comparative measurements between clouds under microgravity and layers on the ground, Planet. Space Sci. 48, 493-505, (2000).
- Yang, P., et K. N. Liou, An efficient algorithm for truncating spatial domain in modeling light scattering by finite-difference technique, Journal Comput. Phys., 140, 346-369, (1998)
- Zahoransky R., S. Kerzenmacher, G. Benali, R. Lavigne, J. Kassab, D. Henneke, On-line particle emission analysis of the CAST burner using LPM2E (2002)

Contribution à la caractérisation des propriétés optiques des sables et des suies atmosphériques avec les instruments PROGRA2

Résumé :

Des nouvelles courbes de polarisation et de radiance en fonction de l'angle de diffusion sont étudiées à $\lambda = 632,8$ nm et 543,5 nm en utilisant des instruments PROGRA2 (Propriétés Optiques des GRains Astronomiques et Atmosphériques) pour différents types d'échantillons de suie et de noir de carbone en lévitation dans l'air et déposés sur une surface. Les échantillons de suie sont produits dans des conditions de combustion différentes, affectant ainsi leurs propriétés morphologiques. Un générateur de suie a été également utilisé pour étudier des suies 'jeunes' émises par la combustion du propane. Une comparaison des propriétés optiques entre les suies en lévitation et déposées sur une surface a été discutée. Enfin, ces courbes sont comparées à celles produites par différents types de sable.

Les amplitudes de polarisation produites par la suie diffèrent en fonction du diamètre des particules primaires et de la distribution en taille. Ces courbes seules sont donc insuffisantes pour estimer la nature des agglomérats solides qui pourraient être détectés par des mesures à distance dans la stratosphère. D'autre part les courbes de radiance produites par ces échantillons montrent un comportement différent de celles produites par les échantillons de sable et par la poussière interplanétaire. Il est donc important lors de l'interprétation des mesures stratosphériques de combiner les courbes de radiance avec les courbes de polarisation pour déterminer la nature des agglomérats et de fournir des informations sur la nature de suie détectée telle que la taille des particules primaires ainsi que la distribution en taille.

Mots clés : polarisation, radiance, suies de carbone, sable, atmosphère

Contribution to the characterization of optical properties of atmospheric sand and soot with the instruments PROGRA2

Summary :

New polarization and brightness curves as function of scattering angle are studied at $\lambda = 632.8$ nm and 543.5 nm using PROGRA2 instruments (Propriétés Optiques des Grains Astronomiques et Atmosphériques) for different kinds of soot samples and carbon-black samples levitating in a cloud and deposited on a surface. The soot samples are generated under different combustion conditions, thus affecting their optical properties. A soot generator was also used to study fresh samples issued from propane combustion. A comparison between soot levitating on a cloud and deposited on surface was discussed. Finally these curves are compared to those produced by different kind of sand.

The amplitudes of polarization produced by soot differ significantly depending on the primary particle diameter and on size distribution. These curves alone are then not sufficient to estimate the nature of the solid agglomerates that could be detected by remote measurements in the stratosphere. On the other hand the curves of brightness produced by these samples show a behavior different from those produced by the sand samples and that produced by interplanetary dust. It is therefore important in the interpretation of stratospheric measurements to combine the brightness with the polarization curves to identify the nature of the agglomerates and to provide information on the nature of soot detected as the primary particle diameter and size distribution.

Key words: polarization, brightness, soot, sand, atmosphere



LPC2E/CNRS
3A, Avenue de la
Recherche Scientifique
45071 Orléans Cedex 2
FRANCE

